

02;12

Атомные эффекты при бета-распаде трития

© Ю.А. Акулов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 14 января 1999 г.)

Представлены результаты первого эксперимента по измерению разности постоянных бета-распада атомарного и молекулярного трития $\Delta\lambda = \lambda_a - \lambda_m$. Схема эксперимента предполагала создание двух идентичных образцов газовой смеси, содержащей гелий-4 и молекулярный тритий, и последующее воздействие на один из них с целью перевода трития в атомарное состояние. Величина $\Delta\lambda$ определялась путем сопоставления скоростей роста отношения концентрации радиогенного гелия-3 к концентрации гелия-4 в образцах с молекулярным и атомарным тритием. Получено значение $\Delta\lambda = (4.6 \pm 0.8) \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$, что соответствует относительному изменению постоянной распада на $\sim 0.26\%$.

Предметом рассмотрения в настоящей работе является процесс взаимодействия формируемого атомным ядром бета-электрона с электронами и электронными вакансиями атомно-молекулярной системы, окружающей бета-активное ядро. Согласно фермиевской теории бета-распада, вероятность испускания ядрами электронов и их спектр зависят от структуры доступного виртуальному бета-электрону электронного фазового пространства в атомно-молекулярной системе. При этом определяемые в эксперименте значения фундаментальных параметров бета-перехода — постоянной распада (λ) и граничной энергии бета-спектра (E_{\max}) оказываются чувствительными к состоянию электронного окружения ядра (так называемый эффект химического сдвига λ и E_{\max}). Наиболее перспективным, с точки зрения решения экспериментальных и теоретических задач в области исследования химических сдвигов при бета-распаде, является рассмотрение тритийсодержащих атомно-молекулярных систем. Поскольку избыток массы второго нейтрона в ядре трития близок к кулоновской энергии второго протона в ядре гелия, то высвобождаемая при бета-распаде трития энергия относительно мала (${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu} + 18.6 \text{ keV}$). В этом случае заметная часть виртуальных бета-электронов генерируется с длинами волн, характерными для атомных электронных систем, что приводит к существенным изменениям в реальном бета-спектре и делает химические сдвиги λ и E_{\max} измеримыми. При измерении граничной энергии сдвиги E_{\max} маскируются неизбежным изменением энергии реального бета-электрона на его пути до детектора, что принципиально осложняет идентификацию наблюдаемых изменений E_{\max} . Подобных трудностей не возникает при измерениях химических сдвигов постоянной распада, поскольку темп распада определяется только плотностью вакансий для виртуального бета-электрона и с очевидностью не зависит от судьбы реального электрона, покинувшего околоядерное пространство. Здесь представлены результаты первого эксперимента по измерению разности постоянных распада для атомарного (λ_a) и молекулярного (λ_m) трития $\Delta\lambda = \lambda_a - \lambda_m$.

Для определения $\Delta\lambda$ использовался гелиевый дифференциальный изотопный масс-спектрометрический ме-

тод. Суть метода состоит в том, что для двух образцов, каждый из которых содержит гелий-4 и некое химическое соединение трития, сопоставляются скорости роста отношений содержания радиогенного гелия-3 к содержанию гелия-4. Важным преимуществом такого подхода являются полное исключение абсолютных измерений и существенное упрощение учета потерь гелия, тем самым устраняются основные источники систематической погрешности. В рассматриваемом случае схема эксперимента предполагала создание в момент времени t_0 двух идентичных образцов газовой смеси, содержащей гелий-4 и молекулярный тритий, и последующее воздействие на один из них с целью перевода трития в атомарное состояние. В качестве момента начала отсчета времени принимался момент прохождения тритием палладиевой мембраны, имевшей активную площадь 12 cm^2 , толщину 0.01 cm и температуру $\sim 530^\circ\text{C}$. Прошедший мембрану тритий смешивался с гелием-4, после чего смесь распределялась по ампулам из молибденового стекла, имевшим внутренний диаметр 8 mm и длину 350 mm . Парциальное давление трития в ампулах составляло 93 Pa , гелия — $4\text{--}6 \text{ Pa}$. Диссоциация молекул ${}^3\text{H}_2$ осуществлялась за счет энергии ВЧ разряда, создаваемого в ампуле синусоидальным полем с частотой 1 MHz и напряженностью $\sim 100 \text{ V/cm}$, образованным кольцевыми внешними электродами. Для получения термализованных свободных атомов трития использовался механизм резонансной диссоциации, когда молекулы ${}^3\text{H}_2$ получают энергию, необходимую для разрыва межатомной связи, за счет удара второго рода при взаимодействии с возбужденными в разряде атомами ртути, введенной предварительно в ампулы и испаряемой самим разрядом. Действующее значение тока в разряде поддерживалось на уровне $\sim 40 \text{ mA}$, при этом выделяемая в разряде мощность составляла $140\text{--}145 \text{ W}$.

Для определения степени диссоциации молекул были разработаны масс-спектрометрические и оптическая методики. При масс-спектрометрических измерениях свободные атомы водорода из разрядной ячейки по фторопластовому антирекомбинационному тракту в режиме молекулярного течения поступали в камеру ионизации

масс-спектрометра. Значение степени диссоциации (ε) определялось по зависимости величины тока атомарных ионов водорода I от поглощаемой в разрядной ячейке мощности P . При вышеуказанных значениях тока и напряженности поля в разряде на графике функции $I(P)$ достигалось горизонтальное плато, соответствующее диссоциации водорода, близкой к 100% [1]. Оптическая методика определения значения ε основывалась на сопоставлении интенсивности идентифицируемых с помощью монохроматора спектральных линий H_α , H_β , H_γ и H_δ серии Бальмера и полос с длинами волн ~ 652 , ~ 580 и ~ 410 nm из спектра молекулярного водорода для двух режимов ВЧ разряда: проточного, при котором газ непрерывно прокачивается через разрядную трубку, и статического. Время пребывания молекулы в пространстве между электродами составляло при проточном режиме 0.003–0.01 s. В этом случае водород практически не успевает диссоциировать и в спектре разряда преобладают молекулярные полосы. В статическом же режиме (т.е. без протока газа) при тех же значениях давления и мощности, рассеиваемой в разряде, интенсивность линий серии Бальмера увеличивается в 10–15 раз, тогда как интенсивность молекулярных полос уменьшается в 25 и более раз. Сопоставляя коэффициенты относительного изменения интенсивностей, можно показать, что в статическом режиме разряда степень диссоциации водорода превышает 93%. Статистические веса ионизированного и возбужденных состояний водорода в разряде, вычисленные с использованием оценок тока, концентрации и энергии электронов, не превышали $10^{-3}\%$. Таким образом, условия эксперимента обеспечивали наблюдение бета-распада трития в основном атомарном и основном молекулярном состояниях.

Уравнение измерения гелиевого дифференциально-го метода определения величины $\Delta\lambda$ для пары атом ${}^3\text{H}$ –молекула ${}^3\text{H}_2$ имеет вид [2]

$$\frac{({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_a}{({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_m} = \frac{\tau_a}{\tau_m} \left(k\varepsilon \frac{\Delta\lambda}{\lambda_m} + 1 \right).$$

Здесь $({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_{m,a}$ — измеряемые масс-спектрометрически значения гелиевых изотопных отношений в образцах с молекулярным и атомарным тритием; τ_m , τ_a — эффективные времена экспонирования образцов, причем время пребывания части трития в атомарном состоянии (т.е. время существования разряда) есть $\tau_a \cdot k$, где $k < 1$ — безразмерный коэффициент. Величины интервалов времени τ_m , τ_a вычислялись из соотношений $\tau_{m,a} = (t_{m,a} - t_0) + \delta_{m,a} \cdot \eta_{m,a}$, где отсчеты времени t_m , t_a соответствуют моментам выведения трития из образцов; η_m , η_a — интервалы времени между отсчетами t_m , t_a и моментом измерения гелиевых изотопных отношений в образцах; δ_m , δ_a — относительные остаточные удельные активности трития, определяющие скорость накопления гелия-3 в "молекулярном" и "атомарном" образцах в течение интервалов времени η_m , η_a . Выведение трития из образцов происходило в процессе взаимодействия газовой смеси с палладиевой мембраной,

аналогичной использовавшейся при наполнении ампул. Неопределенность момента начала отсчета времени t_0 , как и значений t_m , t_a , не превышала при этом 8 s. Относительная остаточная активность, обусловленная неполным выведением трития через мембрану, измерялась пропорциональным счетчиком внутреннего наполнения с чувствительностью $\sim 10^6$ атомов трития [3] и составила $\delta_m = 0.00115$ и $\delta_a = 0.00095$ от исходной удельной активности смеси. Проницаемость палладиевых мембран для гелия, поглощение гелия стенками ампул, наличие примеси ${}^3\text{He}$ в балластном ${}^4\text{He}$ и другие факторы, определяющие нерадиогенное изменение отношения ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ в смесях, контролировались с помощью масс-спектрометра, имеющего чувствительность по ${}^3\text{He} \sim 3 \cdot 10^4$ атомов [4]. Количество гелия-3, образовавшегося в образцах за время их экспонирования, превышало $2 \cdot 10^{13}$ атомов. Таким образом, возможные систематические погрешности, обусловленные утечками гелия, регистрировались на уровне $\sim 10^{-6}\%$.

Отношения изотопов гелия в образцах, по абсолютной величине близкие к 0.001, измерялись с помощью модифицированного двухлучевого изотопного масс-спектрометра МИ1201 [5], обеспечивающего воспроизводимость относительных измерений величины ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ на уровне 0.02% в серии независимых контрольных экспериментов со специальной калибровочной гелиевотритиевой смесью. В реальном эксперименте по определению $\Delta\lambda$ было проведено пять серий измерений, в каждой из которых в камеру поочередно напускались пробы гелиевой смеси из "молекулярного" и "атомарного" образцов. В результате для отношения $({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_a / ({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_m$ из левой части уравнения измерения было получено значение 0.90257 со стандартным отклонением 0.00021. Эффективные интервалы времени экспозиции имели значения: $\tau_m = 271.80$ min, $\tau_a = 244.90$ min; коэффициент $k = 0.70$, т.е. разряд поддерживался в течение 171 min. Для степени диссоциации ε было принято значение $0.95_{-0.02}^{+0.05}$.

Отношение $\Delta\lambda/\lambda$, определенное из уравнения измерения при вышеуказанных значениях входящих в уравнение параметров, имеет величину 0.00257 ± 0.00045 . Погрешность результата, соответствующая одному стандартному отклонению, определялась квадратичной формой, включающей дисперсии всех параметров уравнения измерения. При этом вычисление дисперсии отношения τ_a/τ_m проводилось с учетом 95% положительной корреляции случайных величин t_m и t_a , что обусловлено идентичностью процедур выведения трития из обоих образцов. Для вычисления на основе измеренного относительного сдвига постоянной распада абсолютной величины разности периодов полураспада молекулярного и атомарного трития $\Delta T_{1/2}$ целесообразно использовать значение $T_{1/2m} = (12.296 \pm 0.017)$ года — среднее взвешенное значение двух последних по времени опубликования и хорошо согласующихся между собой оценок периода полураспада для молекулярного трития, одна из которых получена изотопно-гелиевым

методом [6], другая — по кривой распада, снятой методом регистрации тормозного излучения [7]. Учитывая, что $\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = -\Delta\lambda/\lambda$ при $\Delta\lambda/\lambda \ll 1$, находим $T_{1/2m} - T_{1/2a} = (0.0316 \pm 0.0055)$ года = (11.5 ± 2.0) дня. Для абсолютной величины разности постоянных распада λ_a и λ_m получаем

$$\begin{aligned}\Delta\lambda &= \lambda_a - \lambda_m = \frac{\ln 2}{T_{1/2m}}(0.00257 \pm 0.00045) \\ &= (4.6 \pm 0.8) \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}.\end{aligned}$$

На основе созданной методики получения, стабилизации и диагностики атомарного водорода разрабатываются приемы быстрого тритирования различных водородосодержащих соединений, что позволит измерить химические сдвиги постоянной распада для широкого класса атомно-молекулярных систем. Опеределение времени жизни ядра трития для ряда известных состояний его электронного окружения можно интерпретировать как калибровку естественного электронного зонда, имеющего ядерную локальность, но генерирующего электроны с атомной длиной волны. Измеряя в дальнейшем химические сдвиги $\Delta\lambda$ при неизвестной структуре доступного бета-электрону фазового объема, можно делать выводы о наличии тех или иных электронных состояний в атомном фазовом пространстве. Дополнительную информацию об этом может дать анализ спектров релаксационного излучения, обусловленного перестройкой электронных уровней при изменении на единицу заряда одного из ядер в исследуемой атомно-молекулярной системе. Особенностью и преимуществом метода структурного анализа атомно-молекулярных систем с помощью бета-электронов их собственных ядер является идеальная корреляция координат объекта зондирования (электронного облака) и источника излучения (ядра). Это делает возможным экспериментальное исследование методами квантовой бета-электронной диагностики не только энергетической структуры электронного ансамбля, но и его пространственной конфигурации.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 97-03-33665) и ГНТП "Фундаментальная метрология" (проект № 4.06).

Список литературы

- [1] Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Шихалиев П.М. // ЖТФ. 1997. Т. 67. Вып. 5. С. 140–142.
- [2] Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Шихалиев П.М. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 18. С. 72–75.
- [3] Мамырин Б.А., Акулов Ю.А., Хабарин Л.В., Юденич В.С. // ПТЭ. 1982. № 2. С. 151–152.
- [4] Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Хабарин Л.В., Юденич В.С. // ПТЭ. 1985. № 2. С. 173–175.
- [5] Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Шихалиев П.М. // ПТЭ. 1995. № 3. С. 114–119.
- [6] Акулов Ю.А., Мамырин Б.А., Хабарин Л.В. и др. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. Вып. 10. С. 940–942.
- [7] Budick B., Chen J., Lin H. // Phys. Rev. Lett. 1991. Vol. 67. N 19. P. 2630–2633.