

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАЗНОСТИ ПОСТОЯННЫХ БЕТА-РАСПАДА ДЛЯ АТОМАРНОГО И МОЛЕКУЛЯРНОГО ТРИТИЯ

Ю.А.Акулов<sup>1)</sup>, Б.А.Мамырин

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

Поступила в редакцию 23 июня 1998 г.

Представлены результаты эксперимента по измерению разности постоянных бета-распада атомарного и молекулярного трития  $\Delta\lambda = \lambda_a - \lambda_m$ . Для определения  $\Delta\lambda$  сопоставлялись скорости роста относительного содержания радиогенного гелия-3 в образцах с атомарным и молекулярным тритием. Получено значение  $\Delta\lambda = (4.6 \pm 0.8) \cdot 10^{-12} \text{ с}^{-1}$ , что соответствует относительному изменению постоянной распада на  $\sim 0.26\%$ .

PACS: 23.40.-s, 35.80.+s

Согласно фермиевской теории бета-распада, вероятность испускания ядрами электронов и их спектр зависят от структуры доступного бета-электрону электронного фазового пространства в атомно-молекулярной системе, включающей бета-активное ядро. При этом определяемые в эксперименте значения фундаментальных параметров бета-перехода – постоянной распада  $\lambda$  и граничной энергии бета-спектра – оказываются чувствительными к состоянию электронного окружения ядра, – так называемый эффект химического сдвига ядерных характеристик. Поскольку высвобождаемая при бета-распаде трития энергия относительно мала ( ${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu} + 18.6 \text{ кэВ}$ ), заметная часть виртуальных бета-электронов генерируется с длинами волн, характерными для атомных электронных систем. Это приводит к существенным изменениям в реальном бета-спектре и делает химические сдвиги постоянной распада измеримыми. По предварительным теоретическим оценкам, значения химических сдвигов постоянной распада для различных конфигураций электронного окружения тритона лежат в интервале (0.1 – 0.7)% [1,2]. В настоящей работе представлены результаты эксперимента по измерению разности постоянных распада для атомарного ( $\lambda_a$ ) и молекулярного ( $\lambda_m$ ) трития  $\Delta\lambda = \lambda_a - \lambda_m$ .

Для определения  $\Delta\lambda$  использовался гелиевый дифференциальный изотопный масс-спектрометрический метод [3]. 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 является 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 включения давления молекулярного трития на входной поверхности палладиевой мембраны,

<sup>1)</sup> e-mail: akulov@mass.ioffe.rssi.ru

имевшей активную площадь  $12 \text{ см}^2$ , толщину  $0.01 \text{ см}$  и температуру  $\sim 530^\circ\text{C}$ . Прощедший мембрану тритий смешивался с гелием-4, после чего смесь распределялась по ампулам из молибденового стекла, имевшим внутренний диаметр  $8 \text{ мм}$  и длину  $350 \text{ мм}$ . Парциальное давление трития в ампулах составляло  $93 \text{ Па}$ , гелия-4 –  $6 \text{ Па}$ . Диссоциация молекул  $^3\text{H}_2$  осуществлялась за счет энергии ВЧ разряда, создаваемого в ампуле синусоидальным полем с частотой  $1 \text{ МГц}$  и напряженностью  $\sim 100 \text{ В/см}$ , 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 до уровней  $6^3P_1$  и  $6^3P_0$  атомами ртути, введенной предварительно в ампулы и испаряемой самим разрядом. Действующее значение тока в разряде поддерживалось на уровне  $\sim 40 \text{ мА}$ , при этом выделяемая в разряде мощность составляла  $140 - 145 \text{ Вт}$ .

Процедура получения атомарного трития моделировалась в специальных экспериментах с молекулярным тритием. Для определения степени диссоциации молекул были разработаны масс-спектрометрическая 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  $\epsilon$  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  $100\%$  [4]. Оптическая методика определения значения  $\epsilon$  основывалась на сопоставлении интенсивности идентифицируемых с помощью монохроматора спектральных линий  $\text{H}_\alpha$ ,  $\text{H}_\beta$ ,  $\text{H}_\gamma$  и  $\text{H}_\delta$  серии Бальмера и полос с длинами волн  $\sim 652 \text{ нм}$ ,  $\sim 580 \text{ нм}$  и  $\sim 410 \text{ нм}$  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  $0.003 - 0.01 \text{ с}$ . В этом случае водород практически не успевает диссоциировать и в спектре разряда преобладают молекулярные полосы. В статическом же режиме (то есть без протока газа) при тех же значениях давления и мощности, рассеиваемой в разряде, интенсивность линий серии Бальмера увеличивается в  $10 \div 15$  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  $93\%$ . Статические веса ионизированного и возбужденных состояний водорода в разряде, вычисленные с использованием оценок тока, концентрации и энергии электронов, не превышала  $10^{-3}\%$ , таким образом, условия эксперимента обеспечивали наблюдение бета-распада трития в основном атомарном и основном молекулярном состояниях.

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

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

Здесь  $(^3\text{He}/^4\text{He})_{m,a}$  – измеряемые масс-спектрометрически значения гелиевых изотопных отношений в образцах с молекулярным и атомарным тритием;  $\tau_m$ ,  $\tau_a$  – эф-

фактивные времена экспонирования образцов, причем время пребывания части трития в атомарном состоянии (то есть время существования разряда) есть  $\tau_a k$ , где  $k < 1$  – безразмерный коэффициент. Величины интервалов времени  $\tau_m$ ,  $\tau_a$  вычислялись из соотношений  $\tau_{m,a} = (t_{m,a} - t_0) + \delta_{m,a} \eta_{m,a}$ , где отсчеты времени  $t_m$ ,  $t_a$  соответствуют моментам выведения трития из образцов;  $\eta_m$ ,  $\eta_a$  – интервалы времени между отсчетами  $t_m$ ,  $t_a$  и моментом измерения гелиевых изотопных отношений в образцах;  $\delta_m$ ,  $\delta_a$  – относительные остаточные удельные активности трития, определяющие скорость накопления гелия-3 в "молекулярном" и "атомарном" образцах в течение интервалов времени  $\eta_m$ ,  $\eta_a$ . 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 с. Относительная остаточная активность, обусловленная неполным выведением трития через мембрану, измерялась пропорциональным счетчиком внутреннего наполнения с чувствительностью  $\sim 10^6$  атомов трития [5] и составила  $\delta_m = 0.00115$  и  $\delta_a = 0.00095$  от исходной удельной активности смеси. Проницаемость палладиевых мембран для гелия 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 [6]. 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 МИ-1201 [7]. Измерение токов ионов  ${}^3\text{He}^+$  и  ${}^4\text{He}^+$  проводилось при непрерывной откачке камеры масс-спектрометра геттерным титановым насосом, стабилизирующим фоновое содержание в приборе водородных молекул с массовым числом 3 ( ${}^1\text{H}^2\text{H}$ ,  ${}^1\text{H}_3$ ) на уровне  $10^{-3}$  от содержания  ${}^3\text{He}$  в единичном напуске. 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:  $\tau_m = 271.80$  мин,  $\tau_a = 244.90$  мин; коэффициент  $k = 0.70$ , то есть разряд поддерживался в течение 171 мин. Для степени диссоциации  $\epsilon$  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  $0.00257 \pm 0.00045$ . Погрешность результата, соответствующая одному стандартному отклонению, определялась квадратичной формой, включающей дисперсии всех параметров уравнения измерения. При этом вычисление дисперсии отношения  $\tau_a/\tau_m$  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  $T_{1/2m} = (12.296 \pm 0.017)$  г. – среднее взвешенное двух последних по времени опубликования и хорошо согласующихся между

собой оценок периода полураспада для молекулярного трития, одна из которых получена изотопно-гелиевым методом [8], другая – по кривой распада, снятой методом регистрации тормозного излучения [9]. Учитывая, что  $\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = -\Delta\lambda/\lambda$  при  $\Delta\lambda/\lambda \ll 1$ , находим:  $T_{1/2m} - T_{1/2a} = (0.0316 \pm 0.0055)$  г. =  $(11.5 \pm 2.0)$  дня. Для абсолютной величины разности постоянных распада  $\lambda_a$  и  $\lambda_m$  получаем:

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

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. Эксперимент по определению  $\Delta\lambda$  в паре молекулярный – атомарный тритий показал, что при измерении химических сдвигов постоянной распада гелиевым дифференциальным изотопным масс-спектрометрическим методом достижима точность, достаточная для выявления роли различных факторов влияния окружающего бета-активное ядро электронного облака на бета-электрон, и, таким образом, теоретически могут рассматриваться отдельные каналы процесса формирования бета-электрона: распад в связанные состояния, экранировка заряда ядра атомными электронами, возбуждение атомных электронов, обменный эффект. Разработка прецизионных методов измерения и адекватной техники расчета химических сдвигов постоянной распада имеет целью создание на основе эффекта химического сдвига нового метода определения энергетических и пространственных характеристик электронных состояний в атомно-молекулярных и других квантоворазмерных системах.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект #97-03-33665) и ГНТП "Фундаментальная метрология" (проект #4.06).

- 
1. Е.Г.Друкарев, М.И.Стрикман, ЖЭТФ 91, 1160 (1986).
  2. В.Budick, Phys. Rev. Lett. 51, 1034 (1983).
  3. Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, П.М.Шихалиев, Письма в ЖТФ 19, 72 (1993).
  4. Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, П.М.Шихалиев, ЖТФ 67, 140 (1997).
  5. Б.А.Мамырин, Ю.А.Акулов, Л.В.Хабарин, В.С.Юденич, ПТЭ №2, 151 (1982).
  6. Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, Л.В.Хабарин, В.С.Юденич, ПТЭ №2, 173 (1985).
  7. Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, П.М.Шихалиев, ПТЭ №3, 114 (1995).
  8. Ю.А.Акулов, Б.А.Мамырин, Л.В.Хабарин и др., Письма в ЖТФ 14, 940 (1988).
  9. В.Budick., J.Chen, and H.Lin, Phys. Rev. Lett. 67, 2630 (1991).