

КОНФЕРЕНЦИИ И СИМПОЗИУМЫ

Объединенная научная сессия Отделения физических наук Российской академии наук и Объединенного физического общества Российской Федерации

(31 марта 2004 г.)

31 марта 2004 г. в конференц-зале Физического института им. П.Н. Лебедева РАН состоялась Объединенная научная сессия Отделения физических наук Российской академии наук и Объединенного физического общества Российской Федерации. На сессии были заслушаны доклады:

1. **Мамырин Б.А., Акулов Ю.А.** (Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург). *Применение масс-спектрометрии для исследования внутриядерных процессов.*

2. **Рязанов В.В., Обознов В.А., Больгинов В.В., Прокофьев А.С., Феофанов А.К.** (Институт физики твердого тела РАН, г. Черноголовка). *Сверхпроводящие токи через ферромагнетик. Инверсия фазы в структурах с джозефсоновскими π -контактами.*

Краткое содержание докладов публикуется ниже.

PACS numbers: 14.20.Dh, 23.40. – s

Применение масс-спектрометрии для исследования внутриядерных процессов

Б.А. Мамырин, Ю.А. Акулов

1. Введение

Предметом рассмотрения в данном докладе является процесс взаимодействия генерируемого атомным ядром β -электрона с электронным ансамблем атомно-молекулярной системы, окружающей β -активное ядро. Согласно теории β -распада Ферми вероятность испускания ядрами электронов и их спектр зависят от структуры доступного формирующемуся β -электрону электронного фазового пространства в атомно-молекулярной системе. При этом определяемые в эксперименте значения фундаментальных параметров β -перехода, в частности постоянной распада λ , оказываются чувствительными к состоянию электронного окружения ядра (так называемый эффект химического сдвига ядерных характеристик). Наиболее перспективным с точки зрения решения экспериментальных и теоретических задач в области исследования химических сдвигов при β -распаде

является рассмотрение тритийсодержащих атомно-молекулярных систем, поскольку высвобождаемая при β -распаде ядра трития (тритона) энергия относительно мала (${}^3\text{H}^+ \rightarrow {}^3\text{He}^{++} + e^- + \tilde{\nu} + 18,6 \text{ кэВ}$). В этом случае заметная часть β -электронов генерируется с длинами волн, характерными для атомных электронных систем, что делает взаимодействие β -электронов с орбитальными электронами и электронными вакансиями эффективным и приводит к измеримым изменениям постоянной распада ядра.

На основе экспериментальных данных о химических сдвигах постоянной распада в соединениях с известным состоянием электронного окружения ядра величина сдвига может быть представлена как функция структуры доступного β -частице электронного фазового пространства в атомно-молекулярной системе. Подобное представление величины химического сдвига постоянной распада может служить основой нового метода диагностики атомно-молекулярных систем, диагностики, где идентификация электронного состояния некой тритийсодержащей системы производится путем определения относительной разности постоянных распада в данной системе и неком стандартном соединении трития с известной электронной структурой (например, атоме или молекуле трития). В области ядерной физики определение поправок на атомно-молекулярные эффекты к значению постоянной распада необходимо для вычисления отношения аксиально-векторной и векторной констант слабого взаимодействия в условиях существования пионного обмена в трехнуклонном ядре трития, а также для получения независимой оценки времени жизни свободного нейтрона по данным о β -распаде тритона.

2. Экспериментальный метод

По предварительным теоретическим оценкам относительные химические сдвиги постоянной распада тритона не превышают 1%. Для точного измерения столь малых вариаций скорости распада в лаборатории масс-спектрометрии ФТИ РАН разработан гелиевый изотопный метод [1]. Суть метода состоит в том, что для двух образцов, каждый из которых содержит ${}^4\text{He}$ и некие химические соединения трития, сопоставляются скорости роста отношений содержания радиогенного ${}^3\text{He}$ к

содержанию ^4He . Важным преимуществом такого подхода является полное исключение абсолютных измерений и существенное упрощение учета потерь гелия — тем самым устраняются основные источники систематической погрешности.

Схема эксперимента предполагает создание в начальный момент времени двух образцов идентичного состава и последующее воздействие на один из них (например, первый) с целью изменения состояния электронного окружения ядра трития. Уравнение измерения для величины химического сдвига постоянной распада $\Delta\lambda = \lambda_1 - \lambda_2$ в этом случае имеет вид

$$\frac{(^3\text{He}/^4\text{He})_1}{(^3\text{He}/^4\text{He})_2} = \frac{t_1}{t_2} \left(\frac{p\Delta\lambda}{\lambda_2} + 1 \right).$$

Здесь $(^3\text{He}/^4\text{He})_{1,2}$ — измеряемые масс-спектрометрически отношения содержания изотопов гелия в первом и втором образцах; t_1, t_2 — времена экспонирования образцов. Безразмерный параметр p определяет, какая доля распадов в образце 1 действительно происходит с постоянной λ_1 , отвечающей распаду тритона при модифицированном электронном окружении. Достаточное для проведения прецизионных масс-спектрометрических измерений изотопного отношения $^3\text{He}/^4\text{He}$ количество радиогенного ^3He составляет $10^{12} - 10^{13}$ атомов и может быть накоплено за время порядка 3–5 ч в образце, имеющем активность $(2-3) \times 10^8$ Бк. Тот факт, что необходимое время экспозиции исчисляется часами, позволяет использовать весьма разнообразные методы модификации электронного окружения тритона — это могут быть ионизация и диссоциация тритийсодержащих соединений в газовом разряде, реакции изотопного водородного обмена, избирательное возбуждение электронов фотонами определенной энергии.

Гелиевый изотопный метод был применен для измерения относительной разности постоянных β -распада для атомарного и молекулярного трития. В этом случае одной и той же смесью молекулярного трития (93 Па) и ^4He (6 Па) заполнялись две ампулы из молибденового стекла. Диссоциация молекулярного трития в одной из ампул после их отпайки осуществлялась за счет энергии ВЧ-разряда. Выведение трития из проб перед измерением гелиевых изотопных отношений происходило при взаимодействии газовых смесей с палладиевыми мембранами. Уровень остаточной активности в пробах контролировался с помощью пропорциональных счетчиков внутреннего наполнения, имеющих минимальную детектируемую активность $\sim 0,002$ Бк (т.е. 10^6 атомов трития в объеме счетчика). Отношения изотопов гелия в "атомарном" ($^3\text{He}/^4\text{He})_a$ и "молекулярном" ($^3\text{He}/^4\text{He})_m$ образцах, по абсолютной величине близкие к $0,001$, измерялись с помощью модифицированного статического двухлучевого изотопного масс-спектрометра МИ-1201. Воспроизводимость относительного измерения величины $^3\text{He}/^4\text{He}$ соответствовала статистической погрешности $\delta \sim 0,02\%$ [2].

Возможные систематические погрешности, источниками которых могли быть процессы взаимодействия трития и гелия с конструкционными материалами установки, оценивались в серии специальных экспериментов. Для измерения изотопных отношений и абсолютных количеств гелия в этих экспериментах применялся разрабатанный во ФТИ РАН двухлучевой магнитный резо-

нансный масс-спектрометр, позволяющий обнаруживать следующие минимальные количества изотопов гелия: 3×10^4 атомов ^3He и $\sim 10^9$ атомов ^4He [3].

Для определения количества гелия, растворяющегося в стекле во время отпайки, ампула, аналогичная использованной в реальном эксперименте, наполнялась ^4He до давления 6 Па и отпайвалась. Немедленно вслед за этим участок трубки, подвергавшийся нагреву при отпайке, откачивался и затем дегазировался в экстракционной металлической печи путем нагрева до состояния полного расплавления. Содержание ^4He в стекле, определенное в серии подобных опытов, оказалось равным $(2,0 \pm 0,4) \times 10^{11}$ атомов, что составляет $0,0007\%$ его количества в ампуле. Нагрев до состояния полного расплавления в кварцевой экстракционной печи фрагментов ампул, содержавших молекулярный тритий при давлении 93 Па , показал, что при отпайке стеклом захватывается менее $0,0003\%$ трития от его количества в ампуле. Для измерения содержания трития в пробах использовались упомянутые выше низкофоновые пропорциональные счетчики. При отпайке, наряду с захватом гелия стеклом из объема, происходит выделение в объем ампулы растворенного в стекле атмосферного гелия (концентрация ^4He в нижней атмосфере $1,42 \times 10^{14}$ ат. см^{-3} , изотопное отношение $^3\text{He}/^4\text{He} = 1,399 \times 10^{-6}$ [3]). Для определения масштаба этого эффекта несколько пустых ампул было отпаяно, после чего их содержимое было проанализировано. В результате было установлено, что при отпайке в объем ампулы выделяется $(2,7 \pm 0,3) \times 10^{10}$ атомов ^4He и менее 10^5 атомов ^3He . Такая добавка изотопов гелия изменит изотопное отношение $^3\text{He}/^4\text{He}$ в ампуле менее чем на $0,0001\%$.

Эффект внедрения ^3He в стенку ампулы за счет энергии отдачи, получаемой ядром ^3He при β -распаде (до $3,5 \text{ эВ}$), исследовался следующим образом. Ампула наполнялась молекулярным тритием до давления 93 Па , отпайвалась и выдерживалась при температуре жидкого азота (когда термическая диффузия гелия в стекле практически отсутствует) в течение 74 ч . Ампула разбивалась при азотной температуре и, таким образом, стекло не взаимодействовало с ^3He при комнатной температуре. Измеренное через 8 мин после разбиения ампулы содержание в стекле ^3He составило $0,0008\%$ от его количества, образовавшегося за 74 ч . В реальном эксперименте на дегазацию стекла ампул после разбиения отводилось 15 мин . В течение этого времени выделяющийся из стекла гелий смешивался с гелием, находившимся в газовой фазе.

Для определения сдвигов изотопных отношений в ампулах за счет растворения гелия в стекле при температуре газового разряда был проведен эксперимент, повторяющий реальный. Отличие его заключалось в том, что измерялись не гелиевые изотопные отношения в газовой фазе, а количества ^3He и ^4He , растворившегося в стекле за время экспозиции. Было установлено, что как в "атомарном", так и в "молекулярном" образцах в стекле растворяется $0,09\%$ исходного ^4He и $0,07\%$ радиогенного ^3He , образовавшегося за время экспозиции. ^3He в стекле растворяется меньше, поскольку меньше эффективное время его пребывания в ампуле. Данный эффект должен увеличить гелиевое изотопное отношение в газовой фазе на $0,02\%$ в каждой из ампул. При этом, однако, значение $(^3\text{He}/^4\text{He})_a / (^3\text{He}/^4\text{He})_m$ для газовой

фазы изменится менее чем на 0,002 %, так как измеренные с погрешностью 3 % значения изотопного отношения ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ в растворенном в стекле гелии для "атомарного" и "молекулярного" образцов были равны между собой в пределах указанной погрешности.

Результаты описанных контрольных экспериментов дают основание утверждать, что взаимодействие газовых смесей с элементами конструкции установки не приводит к относительному изменению гелиевых изотопных отношений больше, чем на $0,1\delta$. По этой причине специальных поправок, учитывающих нерадиогенное изменение гелиевых изотопных отношений в "атомарном" и "молекулярном" образцах, не вводилось. По результатам пяти серий измерений гелиевых изотопных отношений для относительной разности постоянных распада тритона в атомарном и молекулярном тритии получено значение $\Delta\lambda_{\text{ам}}/\lambda_{\text{м}} = 0,00257 \pm 0,00045$ [4]. Таким образом, впервые экспериментально зарегистрировано изменение времени жизни ядра трития под влиянием изменений в его электронном окружении. Для вычисления абсолютного значения разности постоянных распада $\Delta\lambda_{\text{ам}}$, а также разности значений периода полураспада ($T_{1/2} = \ln 2/\lambda$) для молекулярного и атомарного трития ($(\Delta T_{1/2})_{\text{ма}} = (T_{1/2})_{\text{м}} - (T_{1/2})_{\text{а}}$) было использовано значение $(T_{1/2})_{\text{м}} = (12,296 \pm 0,017)$ год — среднее взвешенное двух последних по времени опубликования и хорошо согласующихся между собой оценок периода полураспада для молекулярного трития. Одна из этих оценок периода полураспада получена гелиевым изотопным методом [5], другая — по кривой распада, снятой методом регистрации тормозного излучения [6]. Для абсолютной разности постоянных распада получаем

$$\begin{aligned}\Delta\lambda_{\text{ам}} &= (0,00257 \pm 0,00045) \frac{\ln 2}{(T_{1/2})_{\text{м}}} = \\ &= (4,6 \pm 0,8) \times 10^{-12} \text{ с}^{-1}.\end{aligned}$$

Учитывая, что $(\Delta T_{1/2})_{\text{ма}}/(T_{1/2})_{\text{а}} = \Delta\lambda_{\text{ам}}/\lambda_{\text{м}}$, находим

$$(\Delta T_{1/2})_{\text{ма}} = 0,03152 \pm 0,00553 \text{ год} = 11,5 \pm 2,0 \text{ сут.}$$

Для проведения экспериментов по определению химических сдвигов постоянной распада ядра трития в составе более сложных соединений необходимо обеспечить быстрое по сравнению с ожидаемыми вариациями периода полураспада введение трития в состав исследуемых соединений. Это потребовало разработки процедуры получения тритийсодержащих соединений с заданным уровнем β -активности в реакциях с участием свободных атомов трития, получаемых в условиях газового ВЧ-разряда, когда обеспечивается близкая к 100 % степень диссоциации молекулярного трития. К настоящему времени получены тритированные соединения ряда галогеноводородов и углеводородов. Это позволяет на следующем этапе работы приступить к экспериментам по измерению разностей между значениями постоянной распада тритона в составе данных соединений и постоянной распада тритона в молекулярном тритии.

Определение времени жизни ядра трития для ряда известных состояний электронного окружения следует интерпретировать как калибровку естественного электронного зонда, имеющего ядерную локальность, но генерирующего электроны с атомной длиной волны.

Особенностью и преимуществом метода исследования тритийсодержащих атомно-молекулярных систем с помощью β -электронов их собственных ядер является идеальная пространственная корреляция координат объекта зондирования (электронной оболочки) и источника излучения (ядра). Это позволяет экспериментально исследовать не только энергетические параметры электронного ансамбля, но и его пространственную конфигурацию, т.е. ставить эксперименты, отвечающие на вопросы: где дислоцируются электроны граничной орбитали? как по отношению к ядрам направлены химические связи? Тритиевый электронный зонд обладает комплексом характеристик, обусловленных специфическими особенностями β -распада: а) из-за несохранения четности при β -распаде импульс β -электронов преимущественно противоположен по направлению спину ядра; б) сопутствующее антинейтрино принципиально имеет определенную спиральность (спин антинейтрино параллелен импульсу), при этом определенную спиральность приобретает и β -электрон; в) не возмущенный атомными эффектами энергетический спектр β -электронов имеет точное аналитическое представление в диапазоне энергий от 0 до граничной энергии 18,6 кэВ.

Резюмируя изложенное, можно заключить, что при β -распаде ядра трития в некоей атомно-молекулярной системе формируется коллимированный пучок поляризованных электронов известного спектра энергий, т.е. набор параметров исходного электронного потока, необходимый для расшифровки электронной структуры исследуемой системы, является полностью определенным.

3. Определение констант, характеризующих β -процессы

До последнего времени попытки определения по данным о β -распаде трития значений ядерных констант, характеризующих β -процессы, не приводили к успеху, поскольку полученные в экспериментах значения периода полураспада и граничной энергии β -спектра были обусловлены типом использованного химического соединения трития. Это не позволяло согласовывать между собой экспериментальные значения периода полураспада и граничной энергии β -спектра и препятствовало точному вычислению приведенного (сравнительного) периода полураспада свободного тритона — фундаментальной характеристики β -перехода, используемой при вычислении констант.

Вопрос о влиянии электронного окружения тритона на величину периода полураспада рассмотрен теоретически лишь для простейших атомарных структур: ${}^3\text{H}$, ${}^3\text{H}^+$, ${}^3\text{H}^-$ [7]. В эксперименте по измерению разности постоянных распада для атомарного и молекулярного трития удалось определить значение периода полураспада для атомарного трития: $(T_{1/2})_{\text{а}} = (T_{1/2})_{\text{м}} - (\Delta T_{1/2})_{\text{ма}} = 12,264 \pm 0,018$ года. Располагая экспериментальным значением периода полураспада для атомарного трития, можно использовать имеющиеся теоретические данные об атомных эффектах при β -распаде в атоме ${}^3\text{H}$ для нахождения абсолютного значения периода полураспада свободного тритона $(T_{1/2})_{\text{т}}$. При переходе к значению периода полураспада тритона необходимо рассмотреть четыре возможных процесса, определяющих взаимодействие β -электрона в конечном состоянии при

распаде ядра в свободном атоме трития: распад в связанные состояния, т.е. формирование β -электрона на одной из оболочек в атоме гелия; образование электрона сплошного спектра за счет замещения орбитального электрона β -электроном; экранировку заряда ядра орбитальным электроном; образование в результате β -распада возбужденных электронных состояний в ионе ${}^3\text{He}^+$. Результирующее значение четырех поправок к значению $(T_{1/2})_a$, учитывающих перечисленные атомные эффекты, составляет $0,86 \pm 0,08\%$, что приводит к значению периода полураспада для свободного тритона $(T_{1/2})_t = 12,369 \pm 0,020$ года или $(3,9034 \pm 0,0063) \times 10^8$ с [8]. Данное значение соответствует процессу распада свободного тритона с прямым образованием β -электрона сплошного спектра, когда на форму β -спектра влияет только кулоновское поле ядра. Такое значение периода полураспада должно использоваться, в частности, при определении обусловленного β -распадом энерговыделения в тритированной плазме, поскольку при распаде в связанные состояния практически всю выделяющуюся энергию уносят антинейтрино. Определение значения периода полураспада тритона без учета распада в связанные состояния дало возможность при вычислении приведенного периода полураспада использовать весьма точно найденное значение разности масс ядер трития и ${}^3\text{He}$. Это позволило вычислить приведенный период полураспада тритона с малой погрешностью и дало инструмент для оценки значения $(G_A/G_V)_t$ — отношения аксиально-векторной и векторной констант слабого взаимодействия для β -распада тритона, а также времени жизни свободного нейтрона τ_n , которое определяется из соотношений, связывающих приведенные периоды полураспада нейтрона и тритона с известными матричными элементами гамильтониана β -распада этих ядер [9].

Критическим параметром в данном методе определения τ_n является значение G_A/G_V для тритона и нейтрона. Полученное с использованием величины $(T_{1/2})_t$ данное отношение для тритона составило $(G_A/G_V)_t = -1,2646 \pm 0,0035$. Для смешанного сверхразрешенного перехода $n \rightarrow p$ значение $(G_A/G_V)_n$ определяется по данным измерений коэффициента, характеризующего асимметрию вылета β -электронов по отношению к спину распадающегося нейтрона. Результаты четырех таких экспериментов [10–13] имеют среднее взвешенное $\langle (G_A/G_V)_n \rangle_4 = -1,2637 \pm 0,0022$, хорошо согласующееся со значением $(G_A/G_V)_t$, что позволяет рассматривать отношение G_A/G_V как универсальную фундаментальную константу, характеризующую β -процессы. В предположении равенства значений G_A/G_V для тритона и нейтрона получаем следующую оценку времени жизни нейтрона: $\tau_n = 891,7 \pm 3,9$ с. Вместе с тем следует отметить, что в работе [14] для отношения аксиально-векторной и векторной констант связи при β -распаде нейтрона получено значение $(G_A/G_V)_n = -1,274 \pm 0,003$, которое существенно отличается от $(G_A/G_V)_t$. Учет этого результата при определении среднего взвешенного отношения G_A/G_V для нейтрона дает $\langle (G_A/G_V)_n \rangle_5 = -1,2670 \pm 0,0030$ [15]. Отличие $(G_A/G_V)_t$ от $\langle (G_A/G_V)_n \rangle_5$ может свидетельствовать о частичном подавлении аксиально-векторного взаимодействия в присутствии пионного обмена в тритоне. При данном предположении получаем $\tau_n = 888,9$ с. Таким образом, сводный результат может быть представлен в виде $\tau_n = (890,3 \pm 3,9_{\text{стат}} \pm 1,4_{\text{сист}})$ с, где третье слагаемое —

систематическая погрешность, обусловленная неопределенностью в вопросе о влиянии сильного взаимодействия в форме пионного обмена на слабое при β -распаде [16].

4. Заключение

Основным источником погрешности в методе определения τ_n путем измерения экспоненты распада для ансамбля ультрахолодных нейтронов являются утечки свободных нейтронов из гравитационных ловушек. Предлагаемый здесь подход к определению τ_n свободен от этого источника систематической погрешности. Получение достоверной информации о времени жизни свободного нейтрона важно как для теоретической, так и для прикладной нейтронной физики. Это позволяет развивать методы измерения концентрации свободных нейтронов в веществе, основанные на регистрации продуктов распада нейтрона — методы, не требующие детального знания спектра нейтронов и структуры нейтронных сечений. Точное знание периода полураспада нейтрона (как и периода полураспада тритона) требуется также и в космологии — это необходимо для вычисления параметров, характеризующих превращение вещества во Вселенной: отношений n/p , ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ и космологических констант, зависящих от плотности вещества.

В области молекулярной физики перспективной представляется концепция развития на основе эффекта химического сдвига постоянной распада тритона нового метода диагностики электронных состояний водородсодержащих атомно-молекулярных систем путем замещения в них атома водорода тритием. Тот факт, что водород присутствует в качестве основного компонента или примеси во многих веществах, дает возможность вводить тритий в состав различных структур, размещая локальный электронный зонд непосредственно в исследуемой атомно-молекулярной системе. При этом можно рассчитывать на успешное применение метода тритиевой β -электронной диагностики для решения ряда физико-химических проблем — от задач о форме гибридных орбиталей или о распределении неспаренного электрона в радикалах до вопросов о распределении заряда между сорбентом и адсорбатом, о форме хемосорбции углеводородов, а также о физической природе водородной связи.

Список литературы

1. Акулов Ю А, Мамырин Б А, Шихалиев П М *Письма в ЖТФ* **19** (18) 72 (1993)
2. Акулов Ю А, Мамырин Б А, Шихалиев П М *ПТЭ* (3) 114 (1995)
3. Мамырин Б А, Толстихин И Н *Изотопы гелия в природе* (М.: Энергоатомиздат, 1981); Акулов Ю А и др. *ПТЭ* (2) 173 (1985)
4. Акулов Ю А, Мамырин Б А *Письма в ЖЭТФ* **68** 105 (1998)
5. Акулов Ю А и др. *Письма в ЖТФ* **14** 940 (1988)
6. Budick B, Chen J, Lin H *Phys. Rev. Lett.* **67** 2630 (1991)
7. Harston M R, Puper N C *Phys. Rev. A* **48** 268 (1993)
8. Акулов Ю А, Мамырин Б А *Письма в ЖТФ* **26** (11) 23 (2000)
9. Акулов Ю А, Мамырин Б А *ЯФ* **65** 1843 (2002)
10. Bopp P et al. *Phys. Rev. Lett.* **56** 919 (1986)
11. Liaud P et al. *Nucl. Phys. A* **612** 53 (1997)
12. Ерозолимский Б Г и др. *ЯФ* **61** 572 (1998)
13. Мостовой Ю А и др. *ЯФ* **64** 2040 (2001)
14. Abele H et al. *Phys. Lett. B* **407** 212 (1997)
15. Hagiwara K et al. (Particle Data Group) *Phys. Rev. D* **66** 010001 (2002)
16. Акулов Ю А, Мамырин Б А *УФН* **173** 1187 (2003)