



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

6-2012-25

На правах рукописи

УДК 539.163, 539.16.07, 539.184.56

ИНОЯТОВ

Анвар Хидоятович

РАЗРАБОТКА МЕТОДА ПРЕЦИЗИОННОЙ
СПЕКТРОМЕТРИИ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ
ЭЛЕКТРОНОВ, СОПРОВОЖДАЮЩИХ РАДИОАКТИВНЫЙ
РАСПАД, И ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ В РЕШЕНИИ ЗАДАЧ
АТОМНОЙ И ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ

Специальность: 01.04.16 — физика атомного ядра
и элементарных частиц

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Дубна 2012

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем имени В.П.Джелепова
Объединенного института ядерных исследований.

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук,
профессор

Григорьев Евгений Петрович

доктор физико-математических наук,
профессор

Новиков Юрий Николаевич

доктор физико-математических наук

Изосимов Игорь Николаевич

Ведущая организация: Институт ядерных исследований РАН, г. Троицк

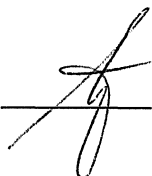
Защита диссертации состоится “___” _____ 2012 г. на заседании диссертационного совета Д 720.001.03 в Объединенном институте ядерных исследований, г. Дубна Московской области.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан “___” _____ 2012 г.

Ученый секретарь совета

доктор физико-математических наук



Ю.А. Батусов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Ядерная электронная спектрометрия играет важную роль в решении многих задач современной физики. В непрерывных и дискретных спектрах электронов, испускаемых при радиоактивном распаде ядра, в принципе, содержится информация о характеристиках всех эмитированных частиц и механизмах ядро-атомного взаимодействия. Непрерывные бета-спектры дают информацию о влиянии структуры ядра на вероятность бета-процесса и свойствах (анти)нейтрино. Из дискретных спектров извлекается информация о внутренней конверсии гамма излучения, пост-распадной релаксации атомных оболочек (эффект Оже) и физико-химическом состоянии радиоактивных атомов. Все перечисленное относится к разряду важных задач, связанных со спектрометрией электронов, сопровождающих радиоактивный распад атомных ядер.

Проблема массы покоя нейтрино является одной из актуальнейших задач современной физики элементарных частиц, астрофизики и космологии. В настоящее время модельно-независимыми методами определения массы (анти)нейтрино являются спектрометрические и калориметрические измерения бета-распада радионуклидов. Ввиду малости ожидаемой величины, особое внимание уделяется, с точки зрения чувствительности, измерению низкоэнергетических β^- -спектров в области граничной энергии. Для спектрометрического метода наиболее перспективным представляется бета спектр трития ($Q_{\beta^-}=18.6$ кэВ, $T_{1/2}=12.3$ лет). Значение 2 эВ/ c^2 [1] для верхнего предела эффективной массы покоя электронного антинейтрино основано на результатах “третиевых” экспериментов ИЯИ (Троицк, Россия) [2] и IPJGU (Майнц, Германия) [3]. Этот предел планируется улучшить в новом, более чувствительном (~ 0.2 эВ/ c^2) международном эксперименте KATRIN [4]. До настоящего времени в ядерной электронной спектроскопии не существует точных (на уровне 0.1 эВ) твердотельных энергетических реперов конверсионных или оже-электронов в области энергий от единиц до десятков кэВ. Главная причина заключается в зависимости энергии связи электронов от физико-химического окружения атома в твердотельных источниках. Это приводит к соответствующим энергетическим сдвигам конверсионных и оже-линий. Поэтому в эксперименте KATRIN особое внимание уделяется детальному изучению влияния физико-химических эффектов на энергии реперных электронных линий, используемых для мониторинга энергетической шкалы спектрометра, и обеспечению стабильности физико-химического состояния источника электронов в течение длительных (по плану - двухмесячных) циклов измерений.

С фундаментальной точки зрения изучение оже-процесса является важным по двум причинам: а) вероятности безрадиационных переходов более чувствительны к деталям атомных волновых функций, чем вероятность радиационных переходов, и экспериментальная информация необходима для тестирования и совершенствования существующих теоретических подходов используемых для описания релаксации атомных систем; б) данные по энергиям и вероятностям оже-переходов необходимы для интерпретации электронных спектров в ядерной и атомной физике. Экспериментально и теоретически оже-релаксация атома изучалась в период интенсивного развития инструментальной базы ядерной спектроскопии. Довольно подробно исследованы KLL-спектры оже-электронов средних и тяжелых элементов ($35 < Z < 84$). Для этой области Z установлены основные закономерности поведения относительных вероятностей наиболее интенсивных компонентов как других K-оже групп, так и L-серии. Несмотря на усилия исследователей, теории эффекта Оже, способной с разумной точностью предсказать энергии, интенсивности и полную структуру оже-групп в широком диапазоне Z пока еще нет. Спектры более легких ($Z < 35$) твердотельных элементов, где ожидается высокая чувствительность оже-переходов к различным корреляционным эффектам, практически не изучены из-за методических трудностей. Предсказания теории о структуре, энергиях и интенсивностях переходов в этой области Z нуждаются в тестировании надежными экспериментальными данными. Открытым остается и вопрос о влиянии способа образования вакансии (электронный захват и внутренняя конверсия) на энергии оже-переходов (эффекта «атомной структуры»). Ввиду важности вопроса, необходимо выполнить эксперименты для широкого диапазона атомных номеров на спектрометрах с высоким инструментальным разрешением.

Известно, что энергии связи электронов в атомах характеризуют данный элемент. Однако величины энергий связи могут изменяться в пределах нескольких эВ, в зависимости от физико-химического окружения атома. С точки зрения чувствительности к т.н. физико-химическим сдвигам, наибольший интерес представляют спектры низкоэнергетических электронов. Фото- и оже-электронные спектры химических соединений стабильных изотопов детально исследованы методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (XPS). Данные по физико-химическим изменениям энергий и интенсивностей конверсионных электронов немногочисленны. Спектры оже-электронов из радиоактивного распада в контексте данной проблемы практически не исследовались. Между тем, в методическом плане, ядерная электронная спектроскопия имеет определенные преимущества по сравнению с XPS, которые, к сожалению, не реализованы в полной мере. В настоящее время, вопросы влияния физико-химического

окружения радиоактивных атомов на спектры эмитируемых электронов приобрели особую актуальность в связи с упомянутой проблемой разработки источников реперных электронных линии для тритиевых экспериментов [4] по измерению массы антинейтрино.

Решение рассмотренных задач ядерной и атомной физики возможно лишь при наличии соответствующей инструментальной и методической базы, позволяющей проводить прецизионные исследования электронных спектров в низкоэнергетической области ($E_e < 20$ кэВ). Попытки экспериментаторов использовать существующие на начало наших работ конструкции магнитных и зеркальных электростатических спектрометров в ядерной электронной спектрометрии для прецизионных измерений не дали ожидаемого прогресса.

Актуальность перечисленных выше физических задач и поиск путей их решения явились мотивацией выполнения данной работы.

Цель работы

Целью диссертационной работы является развитие нового подхода к спектрометрии низкоэнергетических электронов, сопровождающих радиоактивный распад атомных ядер и решение с его помощью актуальных задач атомной и ядерной физики:

- разработка методики спектрометрии низкоэнергетических электронов в диапазоне от ~ 0.1 до 50 кэВ, возникающих при радиоактивном распаде ядер: а) создание нового комбинированного электростатического бета-спектрометра, позволяющего проводить измерения спектров с разрешением несколько эВ; б) разработка новых подходов стабилизации и управления высоковольтным замедляющим напряжением; в) разработка новых подходов калибровки комбинированного спектрометра; г) создание метода изготовления тонких (несколько монослоев) бета-источников; д) разработка нового программного обеспечения для математической обработки сложных аппаратурных спектров;
- экспериментальное исследование постраспадной оже-релаксации атомов;
- экспериментальное исследование влияния физико-химического состояния радиоактивных атомов на спектры оже- и конверсионных электронов;

- разработка источников реперных электронных линий для прецизионной низкоэнергетической ($E_e \leq 22$ кэВ) бета- спектрометрии;
- создание атласа низкоэнергетических дискретных и непрерывных электронных спектров возникающих при радиоактивном распаде ядер.

Научная новизна

1. Создан принципиально новый комбинированный электростатический спектрометр для изучения спектров электронов в диапазоне энергией 0.1-50 кэВ. В спектрометре объединены два типа анализаторов: интегральный (сферический замедлитель) и дифференциальный (двойное цилиндрическое зеркало). Использование такой комбинации позволило исключить влияние релятивистских эффектов на характеристики цилиндрического зеркала при анализе быстрых электронов. Реализованы новые подходы стабилизации (на уровне 10^{-5}) и управления высоковольтным замедляющим напряжением спектрометра. Достигнутое аппаратное разрешение $\Delta E = 3.5$ эВ при $E_e \sim 20$ кэВ стало, на момент создания, наилучшим для бета-спектрометров работающих в области свыше нескольких кэВ с применением твердотельных источников.
2. Разработана новая процедура изготовления тонкослойных (несколько атомных слоев) бета-источников, основанная на методе испарения в вакууме.
3. Получены новые данные об энергиях и интенсивностях оже-переходов в элементах с $10 \leq Z \leq 64$, которые позволили:
 - впервые указать на необходимость усовершенствования существующих теоретических подходов, используемых в полуэмпирических расчетах энергий оже-переходов;
 - установить, что большие значения «атомно-структурных» сдвигов энергий оже-линий в f -элементах, по сравнению с d -элементами, обусловлены особенностями структуры валентной зоны, т.е. экранированием валентных f -состояний электронами $5s, p$ состояний.
 - установить степень влияния релятивистских и корреляционных эффектов на интенсивности компонентов KLL , KLM и KMM групп.
4. Изучено влияние физико-химического состояния радиоизотопов ^{22}Na , ^{54}Mn , $^{99\text{m}}\text{Tc}$ и ^{149}Eu на спектры конверсионных и оже-электронов.

5. Выполненные исследования позволили рекомендовать радиоактивные источники ^{99m}Tc и ^{149}Eu в качестве стандартов источников энергетических реперных линий для бета-спектрометрии в области энергий ~ 2 кэВ и $14 \div 21$ кэВ.

Практическая значимость

Созданный бета-спектрометр нового типа позволяет проводить исследования спектров электронов в диапазоне энергий 0.1 – 50 кэВ. Разработанная методика спектрометрии низкоэнергетических электронов открывает перспективу создания прикладных аналитических методик с применением радиоизотопов.

Опыт применения комбинации интегрального и дифференциального энергоанализаторов использован при модернизации спектрометра ESA-12 ИЯФ АН Чешской Республики.

По результатам исследований, выполненных на базе спектрометра, опубликовано более 50 работ в реферируемых журналах. Полученные данные использовались в работах по моделированию возможностей спектрометрических методов определения массы нейтрино, выполненных совместно с сотрудниками Московского инженерно-физического института и Софийского Университета (Болгария).

Полученные результаты значительно восполнили пробел информации в базе данных по энергиям и интенсивностям оже-переходов. Наши данные послужат стимулом для усовершенствования существующих теоретических подходов и могут быть использованы в ядерной медицине для оценки дозовых нагрузок на организм.

Предложены источники энергетических реперных линий на основе радиоизотопов ^{99m}Tc и ^{149}Eu .

Результаты исследования влияния физико-химического окружения радиоактивных атомов на спектры конверсионных и оже-электронов используются в нейтринном проекте KATRIN.

Информация, приведенная в атласе аппаратурных спектров низкоэнергетических электронов, имеет важное значение как для планирования новых экспериментов, так при решении практических задач.

Положения и результаты, выносимые на защиту

1. Разработка и создание инструментальной и методической базы для низкоэнергетической ($E_e=0.1-50$ кэВ) ядерной электронной спектрометрии, включающей: а) электростатический бета-спектрометр нового типа; б) новую процедуру изготовления тонкослойных (несколько атомных слоев) бета-источников, основанную на методе испарения в вакууме.
2. Результаты исследования постраспадной оже-релаксации атомов с $10 \leq Z \leq 64$.
3. Результаты исследования влияния физико-химического состояния материнских изотопов на спектры оже- и конверсионных электронов ^{22}Ne , ^{54}Cr , $^{99\text{m}}\text{Tc}$ и ^{149}Sm .
4. Разработка источников энергетических реперных линий на основе радиоизотопов $^{99\text{m}}\text{Tc}$ и ^{149}Sm для низкоэнергетической ядерной электронной спектрометрии.
5. Атлас дискретных и непрерывных аппаратурных спектров низкоэнергетических электронов, возникающих при распаде радионуклидов в области $Z=24-95$.

Апробация работы.

Результаты, приведенные в диссертации, докладывались на семинарах в Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований (Дубна), Институте ядерной физики АН ЧР (Прага), международных симпозиумах «Бета-распад и нейтрино» (Осака, Япония, 1986), «Слабые и электромагнитные взаимодействия» (Гейдельберг, Германия, 1986), международной конференции по ядерной физике (Харрогейт, Англия, 1986), 5 и 6 международных конференциях «Современные проблемы ядерной физики» (Ташкент, Узбекистан, 2004, 2006), 33, 36, 56, 59, 60 и 61 международных конференциях по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, на 13 коллаборационном совещании KATRIN (Германия, Карлсруе, 2007), ICNRP (Алма-Ата, Казахстан, 2011).

Публикации.

По материалам диссертации опубликованы 38 работ, в том числе 16 статей в журналах и сборнике: Nucl. Instr. Meth. – 1, Прикл. яд. спектроскопия (сб. ст.), - 1; J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena – 9; J. Phys. B – 1; Phys. Scripta – 1; Изм. техника – 1; Eur. Phys. J. A - 2.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, пяти глав, приложения и заключения. Содержит 217 страниц текста, 81 рисунка, 69 таблиц и список литературы из 245 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во Введении обосновывается актуальность научной проблемы, изучению которой посвящена работа. Изложены цель и основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена обзору состояния изучаемой проблемы. Рассмотрены существующие результаты теоретических и экспериментальных исследований внутренней конверсии гамма излучения и оже-релаксации атомов.

Основные закономерности процесса внутренней конверсии хорошо изучены как теоретически, так и экспериментально. При вычислении коэффициентов внутренней конверсии делаются определенные предположения о размерах и распределении заряда в ядре и его экранировании атомными электронами. Обычно КВК мало зависят от деталей расчета. Это обстоятельство позволяет определять характеристики электромагнитных переходов независимо от теоретических моделей атомного ядра.

Приведен краткий обзор методов вычислений энергий и вероятностей оже-переходов. Существующие *ab initio* расчеты в целом удовлетворительно (с точностью ~ 2 эВ) предсказывают энергии оже-переходов в свободных атомах с $10 \leq Z \leq 80$. Систематизированные *ab initio* расчеты для конденсированных состояний атомов не проводились. Полуэмпирический метод расчета, учитывающий эффекты внутри- и внеатомной релаксации, получил широкое распространение для вычисления энергий оже-переходов в свободных и конденсированных атомах. Результаты существующих полуэмпирических расчетов [5,6] для элементов с $10 \leq Z \leq 100$ нуждаются в тестировании надежными экспериментальными данными. Результаты эмпирического метода, основанного на использовании только экспериментальных энергий связи, не позволяют предсказать полную структуру спектра и, следовательно, плохо согласуются с экспериментальными данными.

Расчеты вероятностей оже-переходов К-серии проводились в нерелятивистском и релятивистском приближениях, с использованием схем *LS*-, промежуточной и *jj*-связи. Вероятности переходов *KLL* группы, предсказываемые

релятивистскими расчетами в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций, в целом согласуются с результатами измерений для элементов с $Z > 35$. Вклад магнитной составляющей в потенциал двухэлектронного взаимодействия (предельный случай jj -связи) становится доминирующим в области $Z > 60$. Вопрос применимости существующих теоретических подходов в области малых Z (< 35) остается открытым из-за недостатка надежных экспериментальных данных. Это касается роли релятивистских эффектов в распределении интенсивности в пределах дублета $KL_1L_2(^1P_1, ^3P_0)$ и корреляционных эффектов, представленных взаимодействием конфигураций конечных состояний $2s^0$, $2s^1 2p^5$ и $2p^4$ в перераспределении интенсивности термина $KL_1L_1(^1S_0)$ между $KL_2L_2(^1S_0)$ и $KL_3L_3(^3P_0)$. Спектр KLM переходов имеет сложную структуру и частично перекрывается с еще более сложным спектром KLN переходов. Практически невозможно экспериментально наблюдать в «чистом» виде не только полную мультиплетную структуру (36 линий), предсказываемую схемой промежуточной связи, но и структуру группы переходов (15 линий) в классификации jj -связи. Из сравнения существующих теоретических и экспериментальных данных следует, что интенсивности KL_1M_1 , KL_1M_2 , KL_2M_1 , KL_2M_3 , и KL_2M_{45} переходов в атомах с $Z > 45$ удовлетворительно описываются релятивистскими расчетами в схеме jj -связи. Результаты расчетов для атомов с $Z < 45$ нуждаются в тестировании соответствующими экспериментальными данными. Неопределенность остается и в вопросе об установлении области применимости типа связи (промежуточная или jj -связь) в KLM переходах.

Из анализа общих выражений для вероятностей KLM переходов следует, что отношение интенсивностей $KL_2M_{2,3}$ и $KL_3M_{2,3}$ линий не чувствительно к выбору волновой функции и практически не подвержено влиянию релятивистских эффектов. Следовательно, отношение $I(KL_2M_{2,3})/I(KL_3M_{2,3})$ может быть использовано для решения одной из задач данной диссертации. Согласно теории, в области атомов с $Z < 40$ ожидается доминирующее влияние промежуточной связи.

Слабоинтенсивные ($I(KMM)/I(KLL) \sim 0.02-0.08$) KMM переходы имеет еще более сложную структуру, чем KLM переходы. Экспериментально удается оценить общую интенсивность группы мультиплетов. На начало наших исследований $KMM(+KMX+KXY)$ спектр был измерен лишь для шести элементов в области средних и тяжелых атомов ($46 \leq Z \leq 84$). Для большинства переходов KMM группы измеренные относительные интенсивности согласуются с релятивистскими расчетами в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций. Чрезвычайно сложная для измерений область более легких атомов ($Z < 46$) остается

неизученной. Согласно теории, в этой области ожидается высокая чувствительность *КММ* переходов к корреляционным эффектам более высоких порядков, чем взаимодействие конфигураций конечных состояний.

Перераспределение внешних электронов, происходящее при изменении физико-химического состояния атомов может привести к изменению энергии связи орбитальных электронов и, в принципе, влиять на процессы, связанные с взаимодействием ядра с электронным окружением. Сдвиги энергии связи электронов, обусловленные изменением физико-химического состояния стабильных атомов хорошо изучены методом XPS. Сдвиги кинетической энергии оже-электронов имеют более сложную природу и исследованы менее подробно. Данные по физико-химическим изменениям энергии и интенсивности конверсионных электронов немногочисленны. В рамках данной задачи, наиболее детально изучены конверсионные спектры ядерного $E3$ перехода 2.17 кэВ в ^{99m}Tc , и 76.8 эВ в ^{235m}U . «Химические» изменения интенсивности конверсионных линий внешних оболочек ^{57}Fe , ^{83}Kr , ^{119}Sn , ^{125}Te и ^{169}Tm измерялись с целью получения дополнительной информации для мёссбауэровских исследований. Данные по физико-химическим изменениям энергии и интенсивности оже-переходов, возникающих из радиоактивного распада, практически отсутствуют. Между тем, ядерная электронная спектрометрия имеет определенные преимущества по сравнению с XPS, заключающиеся в: а) возможности исследования следовых ($\sim 10^{-11}$ г, для не слишком долгоживущих изотопов) количеств вещества; б) формировании аппаратного спектра электронами только от «нужных», т.е. радиоактивных атомов, что очень важно для надежного выделения вклада слабых эффектов от общего фона.

Во Второй главе рассмотрена инструментальная и методическая база ядерной электронной спектрометрии. Выполнен краткий обзор существующей инструментальной и методической базы применительно к низкоэнергетической (в масштабах ядерной физики, $E_e < 20$ кэВ) ядерной электронной спектрометрии. Приводится описание электростатических спектрометров ESA-12 (ИЯФ АН ЧР, Ржеж под Прагой) и ESA-50 (ОИЯИ, Дубна), а также использованных методик приготовления бета-источников и математической обработки аппаратурных спектров.

Магнитные спектрометры, традиционно используемые в ядерной электронной спектрометрии, обладают высокими спектрометрическими характеристиками ($\Delta p/p < 0.1\%$) в области энергий $E_e > 20$ кэВ. При более низких энергиях, в особенности для «железных» спектрометров, возникают проблемы, связанные с формированием слабых магнитных полей с необходимой

конфигурацией. Существующие конструкции электростатических спектрометров, имеют превосходные спектрометрические параметры ($\Delta E \sim 1$ эВ) в энергетическом диапазоне от нескольких десятков эВ до ~ 3 кэВ. При попытке расширения диапазона анализируемых энергий выше ~ 3 кэВ проявляется отрицательное влияние релятивистских эффектов, приводящее к ухудшению энергетического разрешения прибора. Решение проблемы видится в предварительном замедлении анализируемых “высокоэнергетичных” электронов.

В Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ создан принципиально новый комбинированный электростатический спектрометр ESA-50, позволяющий проводить измерения спектров электронов в области энергий 0.1-50 кэВ. В этом спектрометре, впервые для задач ядерной электронной спектрометрии, объединены два типа анализаторов: интегральный анализатор со сферическим замедлителем и дифференциальный анализатор типа двойного цилиндрического зеркала (рис.1). Использование такой комбинации позволило исключить влияние релятивистских эффектов на фокусирующие свойства цилиндрического зеркала при анализе “быстрых” электронов.

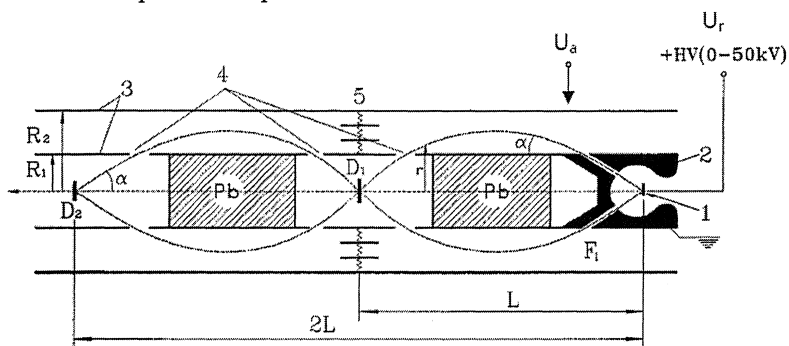


Рис. 1. Принципиальная схема электростатического спектрометра ESA-50: 1 - радиоактивный источник (внутренняя сфера замедлителя); 2 - внешняя сфера замедлителя; F_1 - коническая диафрагма; 3 - внешний и внутренний цилиндры; 4 - круговые диафрагмы; 5 - изоляторы с промежуточными цилиндрами.

Замедлитель представляет собой заземленную сферу с концентрической конической щелью, являющейся одновременно входным окном цилиндрического зеркала. В центре сферы устанавливается радиоактивный источник, к которому приложено замедляющее напряжение. В поле цилиндрического зеркала попадают электроны, энергия которых достаточна для преодоления тормозящего потенциала замедлителя. Фокусировка и измерение энергии замедленных электронов проводится с помощью двойного цилиндрического зеркала. Комбинация сферического замедлителя и цилиндрического зеркала позволяет проводить

измерения в трех режимах, в зависимости от требований эксперимента: а) изменением замедляющего напряжения U (напряжение на цилиндрическом зеркале u постоянно); б) изменением анализирующего напряжения u на цилиндрическом зеркале (напряжение на сферическом замедлителе U постоянно); в) синхронным изменением замедляющего U и анализирующего u напряжения. В режиме (а) требуемое (в зависимости от условий эксперимента) инструментальное разрешение спектрометра может быть выбрано установкой соответствующего напряжения u на цилиндрическом зеркале. Система управления спектрометром и накопления данных полностью автоматизирована. При этом обеспечивается: а) стабилизация замедляющего напряжения на уровне 10^{-5} ; б) изменение U в диапазоне от 0 до 50 кВ, с минимальным шагом 1 В; в) управление режимами сканирования спектра; г) формирование и считывание импульсов от детектора электронов; д) связь с пользовательскими компьютерами для дистанционного управления, визуализации процесса накопления и математической обработки данных.

Спектрометр защищен от внешних магнитных полей экранами из μ -металла, обеспечивающими в рабочей камере остаточное поле ≤ 1 мГс. Вакуумная система спектрометра обеспечивает в рабочем объеме безмасляный вакуум $\sim 1 \times 10^{-6}$ мбар. Замена радиоактивного источника производится без нарушения вакуума, с помощью шлюзового устройства. В качестве детектора электронов используется электронный умножитель открытого типа, с диаметром входного окна 15 мм. На рис. 2 приведена фотография внешнего вида, электронного и вакуумного оборудования спектрометра.

Исследование характеристик спектрометра, определение зависимости трансмиссии от U и калибровка энергетической шкалы проводились с помощью конверсионных линий низкоэнергетических гамма-переходов в ^{57}Fe (14.4 кэВ) и ^{169}Tm (8.4, 20.7, 63 кэВ), энергии которых известны с высокой точностью (≤ 0.5 эВ). Минимальное приборное энергетическое разрешение составило $\Delta E_{\text{инст}} = 3.5$ эВ для $E_e \sim 20$ кэВ. Светосила спектрометра в той же области энергий $\sim 0.2\%$ от 4π . Погрешность измерения интенсивностей конверсионных линий составляла 5 - 15%. Зависимость трансмиссии спектрометра от U хорошо аппроксимируется функцией $1/U$ (рис. 3).

Соотношение между энергией электронов E_e , замедляющим U_{max} и анализирующим u напряжениями имеет вид: $E_e(\text{эВ}) = 1.00044(5) \times [U_{\text{max}}(\text{В}) + 1.833(2) \times (u(\text{В}) - 100)] + 189.4(5)$. Погрешность калибровки определяется, в основном, погрешностью табулированных энергий связи электронов в подболочках Fe и Tm, средняя величина которых составляет ~ 0.6 эВ [7].

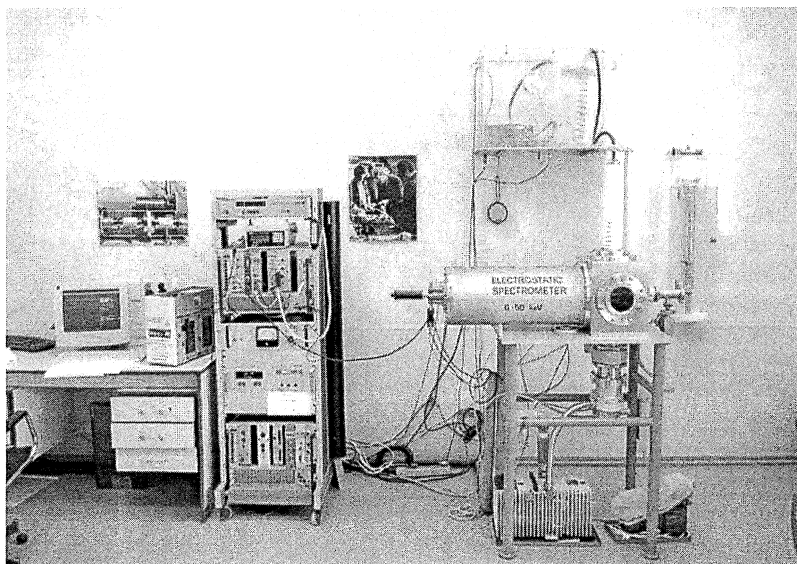


Рис. 2. Внешний вид, электронное и вакуумное оборудование спектрометра ESA-50

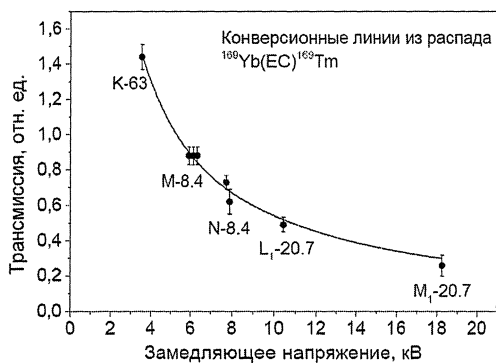


Рис. 3. Зависимость трансмиссии спектрометра ESA-50 от замедляющего напряжения U ($\Delta E_{инст} \sim 7$ эВ). Сплошная линия - результат фитирования данных функцией U_0/U .

Общее требование к радиоактивному источнику заключается в обеспечении: а) изотопной и химической чистоты; б) достаточной активности для статистически значимого набора информации (с учетом светосилы спектрометра); в) минимизации искажения истинного спектра электронов. Форма аппаратной линии низкоэнергетических электронов весьма чувствительна к характеристикам активного слоя источника. Это обстоятельство делает неприемлемыми традиционные способы (выпаривание, электролитическое осаждение, испарение в

вакууме) изготовления бета-источников для спектрометрии низкоэнергетических электронов. Нами усовершенствована процедура изготовления тонкослойных источников испарением в вакууме и разработан метод поверхностной сорбции малорастворимых соединений радиоизотопов. Основными источниками загрязнений, ухудшающих качество бета-источников, изготавливаемых испарением в вакууме, являются улетучивание материала нагревателя и сторонних примесей, содержащихся в исходном радиопрепарате. С использованием нейтронно-активационного анализа была показана необходимость предварительного отжига нагревателя при температуре, превышающей температуру испарения исследуемого вещества. Для уменьшения загрязнения источника сторонними примесями режим испарения подбирался таким образом, чтобы легко летучие примеси адсорбировались на подвижный защитный экран. Метод поверхностной сорбции ранее не применялся для приготовления радиоактивных источников. Данный метод основан на образовании (с помощью реагента) малорастворимых соединений исследуемого элемента в водном растворе и сорбции их на поверхности подложки. Химический выход сорбции может достигать 100 % в зависимости от состава раствора, удельной активности препарата, времени сорбции и качества поверхности. Процедура сорбции подбирается и оптимизируется индивидуально для каждого элемента или группы элементов с близкими химическими свойствами. Метод сорбции является гибким способом изготовления источника с заданной химической формой радиоизотопа. Примеры спектров конверсионных электронов ^{57}Fe и ^{169}Tm , измеренных на спектрометре ESA-50 приведены на рис. 4.

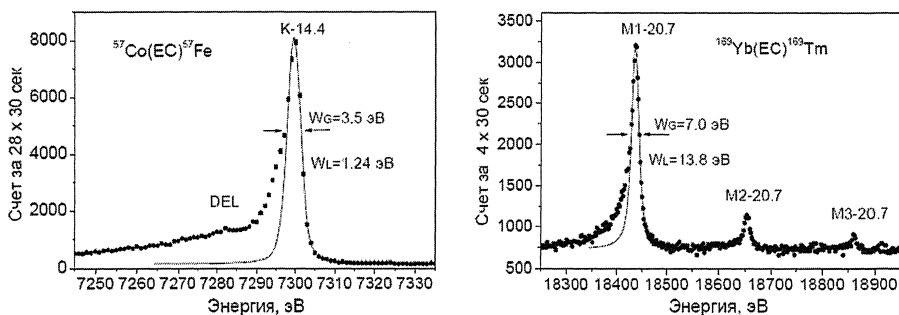


Рис. 4. Спектры конверсионных электронов K-14.4 кэВ ^{57}Fe и M-20.7 кэВ ^{169}Tm , измеренные при $\Delta E_{\text{инст}}=3.5$ и 7 эВ с шагом 1 и 2 эВ, соответственно. Сплошная кривая - результат фитирования высокоэнергетичной части линий функцией Войта, W_G - ширина гауссиана, W_L - естественная ширина (лоренциан), DEL - пик дискретных энергетических потерь.

Дискретный аппаратный спектр $S(E_e)$ электронов в интервале энергий $E_1 \div E_2$, является сверткой функции энергетического распределения $f(E'_e)$ электронов, покидающих источник и функции отклика $F(E_e E'_e)$ спектрометра на спектр моноэнергетических электронов:

$$S(E_e) = \int_{E_1}^{E_2} f(E'_e) \times F(E_e, E'_e) dE'$$

Вид этих функций в точности неизвестен, и для описания экспериментального спектра используются различные модельные приближения. Достоверность обработки спектров определяются тем, насколько близко используемые приближения соответствуют истинным распределениям $f(E'_e)$ и $F(E_e E'_e)$. Для большинства дисперсионных спектрометров вводимая теоретическая функция отклика $F(E_e E'_e)$ достаточно хорошо аппроксимируется гауссианом. Более сложной задачей является описание энергетического распределения $f(E'_e)$ электронов, покидающих источник. В силу физической природы процессов внутренней конверсии и оже-эффекта, энергетическое распределение $N_e(E_e, E_{e0})$ одиночной электронной линии описывается функцией Лоренца:

$$N_e(E_e, E_{e0}) = [(E_e - E_{e0})^2 - (\Gamma/2)^2]^{-1}$$

где Γ – ширина лоренциана, которая в первом приближении равна естественной ширине атомного уровня, испускающего электрон (в случае оже-линии - сумма ширин уровней, участвующих в оже-переходе). В реальности, в результате многочисленных внутри- и внеатомных процессов, сопровождающих эмиссию электрона из твердотельного источника, происходит деформация лоренциана в его низкоэнергетической части. Феноменологический подход, предусматривающий описание всех процессов формирующих распределение $f(E'_e)$, пока еще не реализован, т.к. отсутствует полный набор информации о физико-химических параметрах реального источника. Наиболее реалистичными являются подходы, основанные на использовании комбинации аналитических функций или формы одиночной аппаратной линии, представленной в табулированном виде.

Для описания спектров, измеренных на спектрометрах ESA-12 и ESA-50, использовались оба подхода. На их основе разработаны соответствующие компьютерные программы *Erika*, *Brundibar* и *SOFIE*. Программа *Erika* использовалась нами на начальном этапе исследований, для обработки спектров конверсионных электронов. В данной программе форма одиночной линии спектра представляется в виде многопараметрической гауссианоподобной аналитической функции. Принципиальный недостаток данного подхода заключается в

неопределенности соответствия выбранной аналитической формы линии истинному распределению электронов, покидающих бета-источник. По этой причине, остаточная сумма квадратов невязок (величина χ^2), которая при правильном описании спектра должна подчиняться статистическому распределению Пирсона, не может быть критерием корректности и законченности процедуры обработки спектра. В программе *Brundibar* приборная форма линии извлекается из экспериментального спектра и представляется в табулированном виде. Установленная таким способом форма линии включает в себя интегральную функцию отклика системы «твердотельный источник-спектрометр». Для построения табулированной формы линии выбирается самая узкая одиночная конверсионная линия, энергетически близко расположенная к исследуемому спектру. При отсутствии такой линии, приборная форма конструируется из участков линий измеренного спектра. В программе *SOFIE* развит подход, основанный на представлении низкоэнергетической части лоренциана функцией энергетических потерь, построенной путем интерполяции по заданным опорным точкам. Амплитуды опорных точек выбираются случайным образом. В программе впервые реализована идея автоматического сужения области неопределенности приборной формы, ориентируясь на результаты фитирования. Вариация формы «функции отклика» производится изменением амплитуд опорных точек в пределах заранее заданной области, отражающей степень неопределенности функции энергетических потерь. Область неопределенности устанавливается из визуального анализа аппаратурного спектра. Для получения множества «функций отклика» используется генератор случайных чисел (метод Монте-Карло).

Рассмотренные выше подходы являются на сегодня наиболее реалистичными способами описания аппаратурных спектров низкоэнергетических электронов. Переход на более высокий уровень обработки связан с моделированием методом Монте-Карло при помощи стандартных программ (например, GEANT и PENELOPE). Но это было бы возможно при условии доступности полной информации о составе и структуре реального источника.

В Третьей главе представлены результаты измерения энергий и интенсивностей *KLL*, *KLM* и *KMM* оже-переходов в 12 элементах $10 \leq Z \leq 62$ и исследования влияния способа образования первичной вакансии (эффекта «атомной структуры») на абсолютные энергии оже-переходов. На рис. 5 приведены примеры измеренных *KLL* и *KLM* спектров ^{67}Zn и результаты их обработки.

На примере энергии KL_2L_3 перехода сравниваются результаты полуэмпирических расчетов [5,6], использующих разные наборы энергий связи

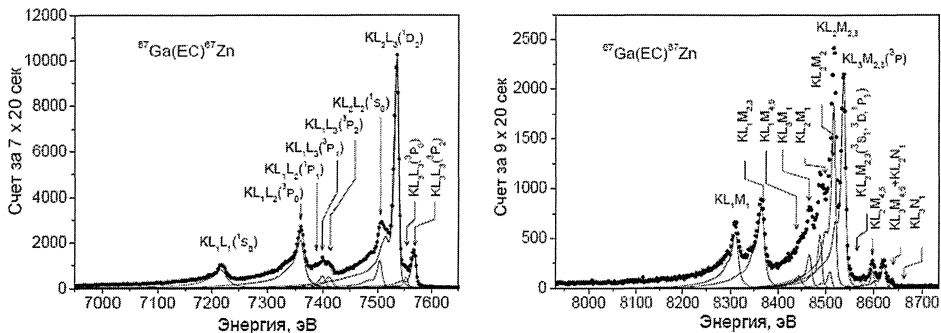


Рис. 5. Спектры KLL и KLM оже-электронов ^{67}Zn , измеренные с шагом 2 эВ при $\Delta E_{\text{инст}}=7$ эВ. Результаты обработки программой Brundibar показаны сплошными линиями.

электронов и подходы для вычисления матричных элементов взаимодействия вакансий в конечном состоянии. Для большинства элементов расхождение между результатами [5,6] превышает декларируемые авторами неточности (1÷4 эВ). Наша попытка модификации результатов [5] использованием данных [7] по энергиям связи не привела к улучшению согласия между расчетами.

Сравнение измеренных энергий доминирующих KL_2L_3 , $KL_2L_3M_{2,3}$ переходов К-серии в элементах с $23 \leq Z \leq 64$, образующихся при электронном захвате свидетельствует о том, что полуэмпирические расчеты [5,6] предсказывают заниженные значения. Например, величина расхождения для KL_2L_3 перехода составляет от ~6 до 20 эВ (рис. 6), что значительно превышает погрешность измерений (1-2 эВ). Наблюдаемое расхождение подтверждается доступными данными XPS. По-видимому, в расчетах недооценивается вклад энергии

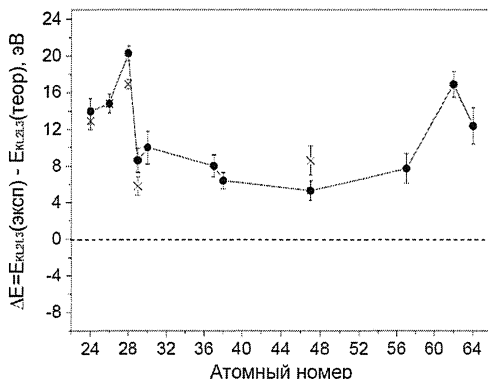


Рис. 6. Разность экспериментальных и расчетных [6] абсолютных энергий доминирующего KL_2L_3 перехода. Темные кружки – наши данные из электронного захвата; крестики – данные XPS.

внеатомной (твердотельной) релаксации. В пользу данного предположения свидетельствует хорошее согласие расчетов [5,6] и экспериментальных данных для KL_2L_3 перехода в свободных атомах (Ne и Ar), где внеатомная релаксация отсутствует, и $L_3M_{4,5}M_{4,5}$ перехода в легких элементах с $Z < 30$, где M_4 и M_5 подоболочки являются валентными. Прямое сравнение данных из радиоактивных источников с XPS и полуэмпирическими расчетами требует некоторой осмотрительности, ввиду различия физико-химических форм образцов и возможного влияния способа образования первичной вакансии.

Измеренные положения компонентов KLL группы относительно доминирующей KL_2L_3 линии систематически превышают (на несколько эВ) ожидаемые из теории значения. Наблюдаемое расхождение между теорией и данными экспериментов разных типов свидетельствует о необходимости внесения соответствующих коррективов в расчеты.

Релятивистские расчеты в схеме промежуточной связи, учитывающие взаимодействие конфигураций, в целом удовлетворительно описывают относительные интенсивности всех 9 компонентов KLL группы в области $23 \leq Z \leq 62$. Доминирующая роль магнитного взаимодействия (чистая jj -связь) проявляется в атомах с $Z > 55-60$. За исключением KL_1L_1 перехода, релятивистские эффекты слабо влияют на вероятности KLL переходов (в классификации jj -связи) в элементах с $\sim Z < 40$: расхождение между релятивистским и нерелятивистскими расчетами составляет $< 10\%$, что сравнимо с характерными погрешностями измерений. Результаты наших измерений отношений интенсивностей термов 1P_1 и 3P_0 дублета KL_1L_2 подтвердили предсказываемое релятивистской теорией доминирующее влияние запаздывающего ток-токового (магнитного) взаимодействия на интенсивность термина 3P_0 , которое увеличивается с ростом атомного номера (рис. 7). Наши данные также свидетельствуют о том, что влияние релятивистских эффектов на интенсивность термина 3P_0 сохраняет свою значимость вплоть до $Z \sim 26$.

Согласно теории, взаимодействие конфигураций конечных состояний $2s^0 2p^6$ и $2s^2 2p^4$ приводит к смешиванию термов с полными моментами $J=0$. В результате, ожидается увеличение интенсивности термов 1S_0 и 3P_0 состояния $2s^2 2p^4$ за счет уменьшения интенсивности термина 1S_0 $2s^0 2p^6$. Наши измерения позволили установить, что эффект взаимодействия конфигураций $2s^0 2p^6$ и $2s^2 2p^4$ играет заметную роль в легких атомах с $Z < 28$, в то время как для более высоких Z интенсивности термов 1S_0 состояний $2s^0 2p^6$ и $2s^2 2p^4$ становятся нечувствительными к рассматриваемому эффекту.

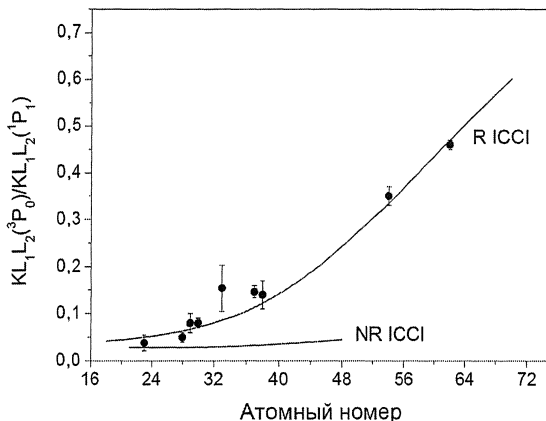


Рис. 7. Зависимость распределения интенсивности в пределах дублета $KL_1L_2(^1P_1, ^3P_0)$ от Z . Сплошные линии – релятивистские (R ICCI) и нерелятивистские (NR ICCI) расчеты в схеме промежуточной связи с учетом взаимодействия конфигураций. Темные кружки – результаты наших измерений.

Спектры KLM группы измерены для 6 элементов в области атомных номеров $23 \leq Z \leq 33$. Из-за плотной структуры KLM переходов тестирование результатов релятивистских и нерелятивистских расчетов проводилось в классификации jj -связи, согласно которой спектр KLM переходов группируются в 15 линий. Влияние релятивистских эффектов на компоненты KLM группы разное. В исследованной области атомных номеров, KL_1M_1 , KL_2M_1 , $KL_1M_{4,5}$ и $KL_{2,3}M_{4,5}$ переходы в конечные $2s^13s^1$, $2p^53s^1$, $2s^13d^0$ и $2p^53d^0$ состояния в целом удовлетворительно описываются релятивистскими расчетами в схеме jj -связи. В то же время, $KL_2M_{2,3}$ и $KL_3M_{2,3}$ переходы в конечное состояние $2p^53p^5$ не чувствительны к релятивистским эффектам. Данное обстоятельство было использовано для установления области применимости типа связи (jj - или промежуточная связь) при описании переходов в конечное $2p^53p^5$ состояние. Из сравнения экспериментальных и расчетных зависимостей отношения $I(KL_2M_{2,3})/I(KL_3M_{2,3})$ от Z установлено, что для атомов с $Z \leq 48$ расчет интенсивностей KLM переходов, идущих в конечное $2p^53p^5$ состояние, должен базироваться на схеме промежуточной связи (рис. 8).

Спектры электронов KMM группы измерены для 4 элементов в области $26 \leq Z \leq 48$. В области атомных номеров $Z > 40$ интенсивности переходов в конечные $3s^13s^1$, $3s^13p^5$ и $3p^53p^5$ состояния слабо зависят от типа связи, и результаты релятивистских расчетов в целом удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными. Наши данные в области $Z < 40$

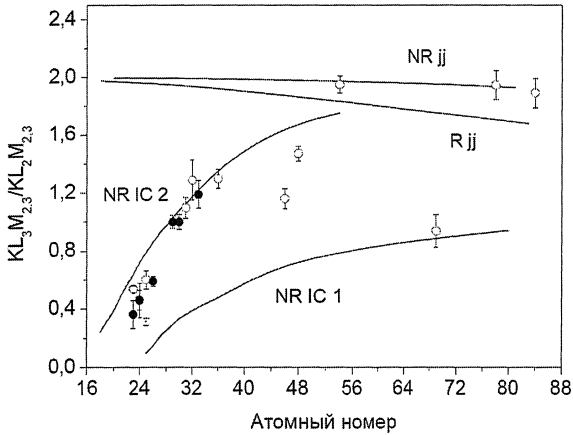


Рис. 8 Зависимость отношения интенсивностей $KL_3M_{2,3}$ и $KL_2M_{2,3}$ переходов от атомного номера Z . Сплошные линии – релятивистские (R jj) и нерелятивистские расчеты в схеме jj (NR jj) и промежуточной связи (NR IC1), (NR IC2); темные кружки – наши данные; светлые кружки – данные других экспериментов.

свидетельствуют о неприменимости существующих релятивистских расчетов в схеме jj -связи для описания рассматриваемых переходов (рис. 9). Расчеты в схеме промежуточной связи выполнены для элементов с $36 \leq Z \leq 92$. Описание в схеме

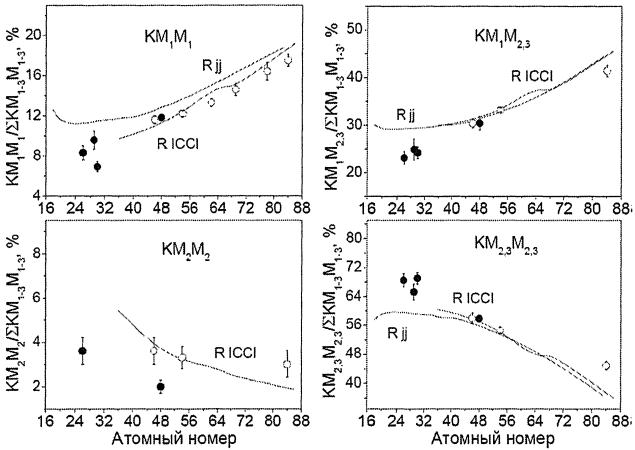


Рис. 9. Зависимость относительных интенсивностей KM_1M_1 , $KM_1M_{2,3}$ и $KM_{2,3}M_{2,3}$ переходов от атомного номера Z . Сплошные линии – релятивистские расчеты в схеме jj (R jj) и промежуточной связи (R ICCI) с учетом взаимодействия конфигураций; темные кружки – результаты наших измерений; светлые кружки – литературные данные.

промежуточной связи KMM переходов в более легких элементах требует, согласно выводам авторов вычислений, учета корреляционных эффектов сверх

взаимодействия конфигураций, таких как межканальная связь и релаксация орбиталей. Подобного рода систематизированные расчеты, допускающие тестирование в широком диапазоне Z , в настоящее время не проводились. Можно ожидать, что полученные нами данные для KMM переходов в элементах с $25 \leq Z \leq 36$ послужат стимулом для выполнения таких расчетов. Это позволило бы оценить область чувствительности волновых функций к корреляционным эффектам более высокого порядка, чем взаимодействие конфигураций конечного состояния.

Эффект «атомной структуры» впервые исследовался путем прямого сравнения энергий оже-переходов в дочерних атомах, образующихся при электронном захвате и β -распаде. В экспериментах измерялись энергии доминирующих $KL_2L_3(^1D_2)$, $KL_3M_{2,3}(^3P_{0,2})$ и $L_3M_4M_5(^1G_4)$ переходов в ^{67}Zn , образующемся при EC - и β -распадах ^{67}Ga и ^{67}Cu , а так же $KL_2L_3(^1D_2)$ и $L_3M_4M_5(^1G_4)$ переходов в ^{64}Gd , образующемся при EC - и β -распадах фракций $^{153,155,156}Tb$ и $^{152,154,155}Eu$, соответственно. Выбранные для измерений изотопы относятся к разным группам Периодической системы: ^{30}Zn – к $3d$ -, а ^{64}Gd – $4f$ -элементам. Примеры измеренных спектров приведены на рис. 10.

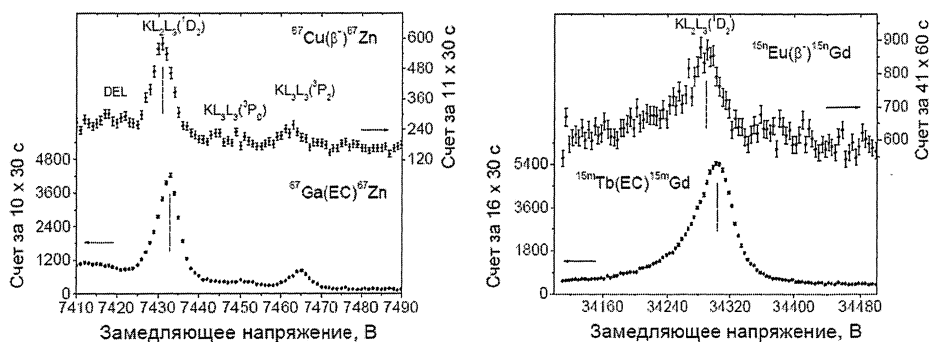


Рис. 10. Спектры $KL_{2,3}L_{2,3}$ оже-переходов в ^{67}Zn , образующемся в β - и EC -распадах ^{67}Cu и ^{67}Ga , и в Gd , образующемся в β -распаде $^{152,154,155}Eu$ и EC -распада $^{153,155,156}Tb$. Спектры измерены при $\Delta E_{инст}=7$ эВ с шагом 2 эВ и $\Delta E_{инст}=21$ эВ с шагом 4 эВ. DEL - пик дискретных энергетических потерь.

Измеренные энергии рассматриваемых переходов в Zn и Gd , образующихся в EC -распаде больше, чем в случае β -распада (таб. 1). Сдвиги энергий для всех переходов в пределах данного элемента имеют примерно одинаковую величину и превышают погрешности измерений. В случае Gd сдвиги имеют большую величину (~ 15 эВ), чем в Zn (~ 2 эВ). Измеренные в Gd сдвиги качественно соответствуют результатам рентгеновской спектроскопии, где наибольший эффект «атомной структуры» наблюдался в $4f$ - (редкоземельные) и $5f$ - (актиниды) элементах. Меньшие величины сдвиги для Zn могли быть вызваны небольшими

Таблица 1. Разности $E_{XYV}(EC) - E_{XYV}(\beta^-)$ (эВ) энергий оже-переходов в ${}^{67}_{30}\text{Zn}$ и ${}^{152-156}_{64}\text{Gd}$, образующихся из β^- - и EC -распада материнских изотопов.

Оже-переход	$\Delta E_e = E_e(EC) - E_e(\beta^-)$	
	${}^{67}_{30}\text{Zn}$	${}^{152-156}_{64}\text{Gd}$
$KL_2L_3(^1D_2)$	2.1(2)	13.9(9)
$KL_3M_{2,3}(^3P_{0,2})$	2.4(2)	--
$L_3M_4M_5(^1G_4)$	1.6(2)	16.3(3)

различиями в физико-химической организации (матриц) источников ${}^{67}\text{Cu}$ и ${}^{67}\text{Ga}$, хотя степень окисления Zn в обоих источниках ожидается одинаковой (+2). Показано, что большие сдвиги в f -элементах, по сравнению с d -элементами, обусловлены особенностями структуры валентной зоны f -элементов, т.е. экранированием валентных f -состояний электронами заполненных $5s, p$ состояний.

В Четвертой главе изложены результаты исследования влияния физико-химического состояния радиоактивных атомов на спектры оже- (${}^{22}\text{Ne}$, ${}^{54}\text{Cr}$) и конверсионных (${}^{99m}\text{Tc}$, ${}^{149}\text{Sm}$) электронов.

Атом неона, имеющий конфигурацию атомных оболочек $1s^2 2s^2 2p^6$, является самым тяжелым элементом, в котором возможны только KLL переходы. В нашем эксперименте впервые исследован KLL спектр оже-электронов ${}^{22}_{10}\text{Ne}$ (рис. 11), образующегося в твердотельной матрице радиоизотопа ${}^{22}\text{Na}$. Измеренная энергия

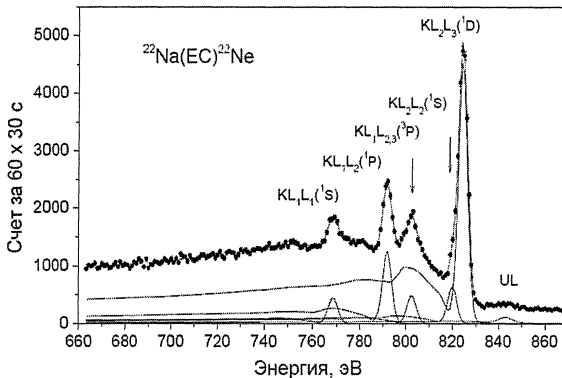


Рис. 11. KLL спектр оже-электронов ${}^{22}_{10}\text{Ne}$, измеренный с шагом 1 эВ при $\Delta E_{\text{инс}} = 4$ эВ. Результат обработки аппаратного спектра показан сплошными линиями.

$KL_2L_3(^1D)$ перехода (822.4(19) эВ) в ${}^{22}\text{Ne}$ примерно на 18 эВ больше, чем ожидаемая из полуэмпирических расчетов для свободных атомов. Наблюдаемый

сдвиг обусловлен конденсированным состоянием атомов неона, что подтверждается данными XPS. Установлено, что в пределах погрешности измерений относительные энергии и интенсивности компонентов *KLL* группы не чувствительны к фазовому состоянию атомов неона.

Влияние степени окисления материнского радиоизотопа на *KLL* спектр дочернего атома впервые исследовалась на примере распада ^{54}Mn в ^{54}Cr электронным захватом. Установлен комплексный окисный состав марганца в источнике ^{54}Mn , изготовленном испарением в вакууме на платиновую подложку. Определены величины относительных «химических» сдвигов энергий анализируемых оже-линий для степеней окисления Mn^{+3} и Mn^{+4} (таб. 2).

Таблица 2. Химический сдвиг (эВ) и относительная интенсивность (%) KL_2L_3 оже-линии, измеренные до и после отжига источника ^{54}Mn .

Mn^{+n}	Относительная энергия				Интенсивность/ $\Sigma KL_{23}L_{23}$			
	20 °C	100 °C	200 °C	300 °C	20 °C	100 °C	200 °C	300 °C
Mn^{+2}	0	0	0	0	57(3)	59(3)	55(2)	57(3)
Mn^{+3}	-5.5(2)	-5.1(2)	-5.2(10)	-5.2(10)	24(2)	25(2)	21.0(14)	13(2)
Mn^{+4}	--	--	-10.5(12)	-10.5(12)	--	--	7.9(15)	13(3)

Из анализа соотношения интенсивностей «основного» и «спутниковых» спектров установлено, что Mn^{+2} , формирующий «основной» спектр, является более устойчивым в источнике, чем Mn^{+3} , который при температуре свыше 200 °C «доокислялся» до Mn^{+4} .

«Химические» сдвиги энергий связи электронов зависят не только от степени окисления атома, но также и от электроотрицательности лиганда. Это сложное явление практически не изучено применительно к радиоактивным атомам. Нами впервые исследовано влияние эффекта лиганда на спектр конверсионных электронов ядерного $M1+E2$ перехода с энергией 22.5 кэВ в ^{149}Sm , образующемся в результате распада ^{149}Eu электронным захватом. Изучались соединения $^{149}\text{Eu}_2\text{O}_3$ и $^{149}\text{EuF}_3$, в которых центральный атом (Eu) находится в одинаковой степени окисления +3, но в окружении разных лигандов (кислорода и фтора). Элементы Eu и Sm являются лантанидами с очень схожими химическими свойствами, и можно ожидать, что после EC-распада материнского изотопа ^{149}Eu химическая форма дочернего элемента Sm, образующегося в матрицах Eu_2O_3 и EuF_3 , будет близка к Sm_2O_3 и SmF_3 , соответственно. Примеры измеренных спектров и результат их обработки показан на (рис. 12).

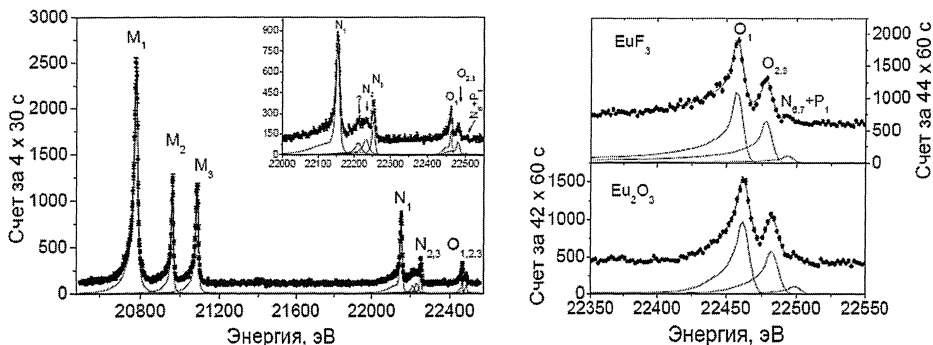


Рис. 12. Спектры конверсионных электронов М+Н+О+Р (а) и О+Р (б) перехода 2.5 кэВ в ^{149}Sm , измеренные при $\Delta E_{\text{инст}}=7$ эВ и 11 эВ, соответственно, с шагом 2 эВ. Результат обработки спектров программой Sofie показан сплошными линиями.

Из измерений определены величины физико-химических сдвигов энергий конверсионных линий внутренних и внешних оболочек ^{149}Sm при изменении лиганда в соединении материнского ^{149}Eu . Величина сдвига коррелирует с главным квантовым числом электронной орбитали и не чувствительна к его угловому моменту (таб. 3). Установлено, что в пределах погрешности измерений относительные интенсивности и естественные ширины атомных уровней Sm не

Таблица 3. Разности кинетических энергий (эВ) конверсионных линий перехода $M1+E2$ 22.5 кэВ в ^{149}Sm , измеренных с источниками $^{149}\text{Eu}_2\text{O}_3$ и $^{149}\text{EuF}_3$.

Оболочка	$E_i(\text{Eu}_2\text{O}_3) - E_i(\text{EuF}_3)$		
	Подоболочка		
	$s_{1/2}$	$p_{1/2}$	$p_{3/2}$
L	1.7(1)	1.7(1)	1.8(1)
M	2.8(2)	2.6(2)	2.7(2)
N	2.3(2)	--	2.3(3)
O	3.9(2)		4.2(2)
P	5.7(9)	--	--

чувствительны к изменению лиганда. Впервые измерены естественные ширины атомных уровней M_1 , M_2 и N_3 Sm (13.4(3), 5.9(3) и 2.3(8) эВ, соответственно) и энергия связи P_1 электронов для химических форм Sm_2O_3 и SmF_3 (1.1(6) и 6.8(11) эВ, соответственно). Результаты экспериментов продемонстрировали достаточную гибкость метода сорбции слаборастворимых соединений радиоактивных атомов на

твердотельную поверхность для изготовления радиоактивных источников в различных химических формах.

Изомерный $E3$ переход 2.17 кэВ в ^{99m}Tc является одним из наиболее подходящих для изучения физико-химических эффектов в спектрах конверсионных электронов. Благодаря низкой энергии, конверсия ядерного перехода 2.17 кэВ происходит преимущественно на внешних электронных оболочках, которые наиболее чувствительны к изменениям окружения атома. Для различных химических форм ^{99m}Tc (элементарный технеций, двуокись технеция и пертехнетат) изучена зависимость абсолютной энергии конверсионных линии M_5 - 2.17 кэВ от поверхностной плотности технеция на платиновой подложке. В случае образцов элементарного технеция наблюдаемая зависимость $E_c(M_5) \sim \rho$ (ρ – поверхностная плотность технеция в источнике) (рис. 13, (a)) является следствием перехода от кластерного ($<10^{-7}$ г/см 2) к объемному характеру слоя технеция в источнике. Оба эффекта коррелированы, и их области хорошо различимы (преобладание поверхностного сигнала в области кластеров и объемного сигнала в области металла). В двуокиси технеция (рис. 13, (b)) корреляция между $E_c(M_5)$ и ρ невыразительна из-за усложнения спектра присутствием разных химических форм четырехвалентного технеция. В случае пертехнетата (рис. 13, (c, d)) исследуемая зависимость подвержена влиянию следов солей, остающихся после химической обработки и электрической зарядки диэлектрического слоя источника.

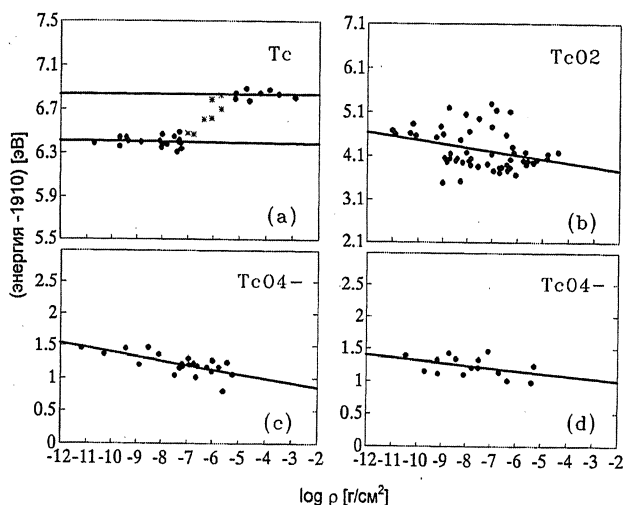


Рис. 13. Зависимости энергии M_5 линии конверсионных электронов перехода 2.17 кэВ в ^{99m}Tc от ρ_{Tc} в образцах с разной химической формой: а) Tc ; б) TcO_2 ; в, д) TcO_4 (при «сухом» и «мокром» способе окисления, соответственно).

Полученные результаты свидетельствуют о возможности использования радиоизотопа ^{99}Tc в форме элементарного технеция, осажденного на платиновую подложку, в качестве стандарта источника энергетических реперных линий для ядерной электронной спектрометрии в области энергий ~ 2 кэВ. Предложена процедура приготовления такого бета-источника.

Пятая глава посвящена изучению характеристик низкоэнергетического ядерного $M1+E2$ перехода 22.5 кэВ в ^{149}Sm . Мотивация измерений заключается в уточнении энергии гамма-перехода 22.5 кэВ, определении примеси мультипольности $E2$ ($|\delta(E2/M1)|$) и параметра проникновения λ из измерений, включающих наиболее полный набор (L_{1-3} , M_{1-3} , $N_{1,3}$, O_{1-3} , P_1) конверсионных линий этого перехода.

Установленное из измерений методами электронной и гамма-спектрометрии среднее взвешенное значение $E_{\gamma} = 22500.2(8)$ эВ (таб. 4) является наиболее точным и на порядок превышает точность E_{γ} из компиляций [8]. Достигнутая в наших измерениях точность (0.8 эВ) энергии гамма-перехода 22.5 кэВ позволяет рекомендовать изотоп ^{149}Eu в качестве источника энергетического репера для ядерной электронной спектрометрии в области E_e от 14.7 до 21 кэВ.

Таблица 4. Энергия (эВ) ядерного перехода 22.5 кэВ в ^{149}Sm E_{γ} , установленная из измерений энергий конверсионных электронов $E_{kin,e}$ и гамма-спектра. E_{bin} – энергия связи электронов [7]

Конв. линия	$E_{kin,e}$	E_{bin}	E_{γ}
L_1	14764.4(10)	7736.8(5)	22501.2(11)
L_2	15188.7(10)	7311.8(4)	22500.5(11)
L_3	15783.9(11)	6716.2(5)	22500.1(12)
M_1	20775.4(13)	1722.8(8)	22498.2(15)
M_2	20958.2(13)	1540.7(12)	22498.9(18)
M_3	21081.6(13)	1419.8(11)	22501.4(17)
N_1	22152.1(13)	345.7(9)	22497.8(16)
N_3	22252.6(13)	247.4(15)	22500.0(20)
O_1	22460.2(14)	37.4(15)	22497.6(21)
Ср. взвеш.			22499.9(9) ^{a)}
Результат измерения гамма-спектра			22501.2(17) ^{a)}

^{a)} Наши консервативные оценки стандартного отклонения

Величина $|\delta(E2/M1)|$ определялась привлечением разных наборов теоретических КВК и экспериментальных отношений интенсивностей (таб. 5).

Значение $|\delta(E2/M1)|=0.0784\pm 0.0009$ полученное из наших данных, включающих наиболее полный набор конверсионных линий, превышает принятое в [8] значение 0.0715 ± 0.0011 . По-видимому, недооценка $|\delta(E2/M1)|$ в компиляциях [8] является следствием использования заниженных экспериментальных отношений интенсивностей. Из результатов нашего анализа следует, что, несмотря на заторможенность $M1$ компоненты ($F_W(M1)\approx 115$) перехода 22.5 кэВ, параметр ядерной структуры λ имеет, очень маленькое (возможно, нулевое) значение.

Таблица 5. Примесь мультипольности $E2$ ($|\delta(E2/M1)|$) и параметр проникновения λ , полученные из анализа разных наборов экспериментальных данных и теоретических КВК

Эксп. данные	Теоретические КВК					
	Наша обработка			Обработка BriccNH [10]		
	λ	$ \delta(E2/M1) $	χ^2	λ	$ \delta(E2/M1) $	χ^2
Набор 1 ^{а)}	-2.0(10)	0.0784(9)	1.29	-1.0(10)	0.0770(9)	1.30(6)
Набор 2 ^{б)}	2.9(12)	0.0742(18)	0.55	0.4(17)	0.0757(28)	1.19(14)
Набор 3 ^{б)}	1.5(15)	0.0722(20)	1.14	-1.1(20)	0.0737(29)	1.81(21)

^{а)} только наши данные; ^{б)} наши данные+данные [9]+ α_{tot} [8]; ^{в)} все эксп. данные+ α_{tot} [8]

В **Приложении** приведено описание созданного нами атласа спектров низкоэнергетических электронов, возникающих при радиоактивном распаде ядер (LEES). Существует целый ряд актуальных фундаментальных и прикладных задач, для которых необходимы экспериментальные данные об электронных спектрах, представленных в графическом и табулированном виде. До начала наших работ было известно одно издание атласа, где представлены аппаратурные спектры конверсионных электронов более 60 нейтронодефицитных радиоизотопов с $Z=56\div 71$, измеренных на бета-спектрографах с полукруговой фокусировкой. Атлас, в целом, предназначен для физиков, специализирующихся в области ядерной спектроскопии.

Созданный нами атлас LEES является результатом систематизации дискретных и непрерывных аппаратурных спектров низкоэнергетических электронов, измеренных на электростатическом спектрометре ESA-50. Атлас содержит более 100 аппаратурных спектров и данные об энергиях и интенсивностях излучения конверсионных и оже-электронов, сопровождающих радиоактивный распад нуклидов с $Z=24\div 95$.

В **Заключении** приводятся основные результаты полученные в диссертации.

1. Разработано новое научное направление в методике ядерной электронной спектроскопии, позволяющее решать фундаментальные задачи ядерной физики на качественно новом уровне и открывающее перспективу

расширения области прикладных аналитических методик с применением радиоизотопов.

- Создан принципиально новый комбинированный электростатический спектрометр для изучения спектров электронов в диапазоне энергий 0.1 - 50 кэВ, испускаемых твердотельными радиоактивными источниками. В этом спектрометре впервые для задач ядерной физики объединены два типа анализаторов: интегральный (сферический замедлитель) и дифференциальный (двойное цилиндрическое зеркало). Использование такой комбинации позволило достичь наилучшего аппаратурного разрешения ($\Delta E_{инст}=3.5$ эВ) для бета-спектрометров, работающих в области выше нескольких кэВ.
 - Разработана новая процедура изготовления тонкослойных (несколько атомных слоев) бета-источников, основанная на методе испарения в вакууме.
 - Развита новая методика для поиска приборной формы линии аппаратурного спектра, в котором реализована идея автоматического сужения области неопределенности с использованием метода Монте-Карло.
2. Измерены спектры оже-переходов K- и L-серии 14 элементов с $10 \leq Z \leq 64$, образующихся в результате радиоактивного распада. Полученные экспериментальные данные позволили провести тестирование теоретических подходов, используемых для описания процесса оже-релаксации атомов.
- Впервые указано на необходимость усовершенствования существующих теоретических подходов, используемых в полуэмпирических расчетах энергий оже-переходов.
 - Впервые экспериментально показано, что «атомно-структурные» сдвиги энергий оже-электронов в f элементах обусловлены экранированием валентных f -состояний электронами заполненных $5s, p$ состояний.
 - Экспериментально установлено, что наибольшую чувствительность к корреляционным эффектам, представленным взаимодействием $2s^2 2p^6$ и $2s^2 2p^2$ конфигураций, проявляют оже-переходы в легких атомах с $Z < 28$.

- Для исследованных 9 элементов с $23 \leq Z \leq 62$ подтверждено предсказываемое релятивистской теорией доминирующее влияние запаздывающего ток-токового (магнитного) взаимодействия на перераспределение интенсивности между компонентами дублета $KL_1L_2(^1P_1, ^3P_0)$. Впервые экспериментально установлено, что роль запаздывающего ток-токового взаимодействия оказывается существенным даже в области малых Z .
 - Установлено, что вероятности KLM переходов в $2p^{-1}3p^{-1}$ состоянии в атомах с $Z \leq 48$ определяются суммарным вкладом кулоновского и спин-орбитального взаимодействия электронов в конечном состоянии (роль промежуточной связи является доминирующей).
 - Впервые экспериментально доказана неприменимость существующих релятивистских расчетов в схеме jj -связи для описания КММ переходов в атомах с $Z \leq 30$.
3. Впервые исследовано влияние физико-химического состояния радиоизотопов ^{22}Na , ^{54}Mn и ^{149}Eu на энергии конверсионных и оже-электронов дочерних изотопов.
- Определены энергии KLL оже-переходов в ^{22}Ne , образующемся в твердотельной матрице радиоактивного ^{22}Na .
 - Установлен комплексный окисный состав марганца в источнике ^{54}Mn , изготовленном испарением в вакууме на Pt подложку. Изучена динамика изменения окисного состава при отжиге в воздухе. Определены относительные «химические» сдвиги энергий $KL_{2,3}L_{2,3}$ переходов дочернего ^{54}Cr .
 - Определены «химические» сдвиги энергий конверсионных линий ^{149}Sm при изменении лиганда в химическом соединении материнского ^{149}Eu . Установлена корреляция между величиной сдвига и главным квантовым числом электронной орбитали, на которой происходит конверсия ядерного перехода. Впервые проведены прямые измерения естественных ширин M_1 , M_2 и N_3 оболочек Sm и определена энергия связи электронов на P_1 оболочке для химических форм Sm_2O_3 и SmF_3 .
4. Для химических форм Тс-металл, TcO_2 и TcO_4 исследована зависимость абсолютной энергии M_5 конверсионной линии перехода 2.17 кэВ в $^{99\text{m}}\text{Tc}$ от

поверхностной плотности технеция на Pt подложке. Обнаружена четко выраженная корреляция между энергией M_3 линии и характеристикой (кластерная ($<10^{-7}$ г/см²) или объемная) генерирующего сигнал слоя металлического технеция на подложке.

5. Результаты исследования влияния физико-химического состояния радиоизотопа на энергию конверсионных линий ^{99m}Tc и достигнутая в наших измерениях точность энергии гамма-перехода $E_{\gamma}=22.5002(8)$ кэВ в ^{149}Sm , позволяют рекомендовать указанные радиоизотопы в качестве источников энергетических реперных линий для бета-спектрометрии в области энергии ~ 2 кэВ и 14.7-21 кэВ, которые ранее не существовали.
6. Для использования при планировании новых экспериментов и решения прикладных задач создан атлас дискретных и непрерывных аппаратурных спектров электронов, измеренных на бета-спектрометре ESA-50. Атлас содержит более 100 аппаратурных спектров электронов, возникающих при распаде радионуклидов с $Z=24-95$.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. Ch. Briançon, B. Legrand, R. J. Walen, Ts. Vylov, A. Minkova, A. Inoyatov. A new combined electrostatic electron spectrometer. Nucl. Instr. Meth., 221 (1984) 547
2. Ц. Вылов, А. Минкова, А. Иноятов и др. Электростатический бета-спектрометр в области энергий 0.5-50 кэВ. В сб.: Прикладная ядерная спектроскопия, вып. 13, Энергоатомиздат, Ленинград, 1984, с. 12-21.
3. A. Kovalik, M. Rysavy, V. Brabec, O. Dragoun, A. Inoyatov, A.F. Novgorodov, Ts. Vylov, and A. Minkova. The KLL and KLX Auger Electrons of Arsenic from the ^{75}Se Decay. J. Electron Spec. and Rel. Phenomena, 43 (1987) 225-232.
4. A. Kovalik, A. Inoyatov, A.F. Novgorodov, V. Brabec, Ts. Vylov et al. K-Auger spectrum of iron from the ^{57}Co decay. J. Physics B, 20 (1987) 3997.
5. A. Kovalik, M. Rysavy, V. Brabec, O. Dragoun, A. Inoyatov, A.F. Novgorodov, Ts. Vylov, and A. Minkova. The KLL and KLM Auger Electrons of Vanadium and Chromium from the Radioactive Decay. Phys. Scripta 37 (1988) 871-875.
6. M. Fisher, V. Brabec, O. Dragoun, N. Dragounova, M. Rysavy, A.Kh. Inoyatov. Use of ^{99m}Tc as an Energy Standard for Electron Spectroscopy: Promise and Limitations. Measurement Techniques 40 (1997) 807-810.
7. Ts. Vylov, V.M. Gorozhankin, A. Kovalik, ..., A. Inoyatov et al.: Catalogue of Radionuclide Low Energy Electron Spectra (LEES). Dubna, 2003 JINR preprint E6-2003-31; <http://adm.jinr.ru/info/ATLAS2/>.

8. A. Kovalik, A.V. Lubashevsky, A. Inoyatov, D.V. Filosofov, N.A. Korolev, V.M. Gorozhankin, Ts. Vylov and I. Štekl. A Detailed Experimental Investigation of the Low Energy Electron Spectrum Generated in the EC-decay of ^{67}Ga . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 134 (2004) 67-79.
9. A. Inoyatov, A.V. Lubashevsky, A. Kovalik et al. A Detailed Experimental Investigation of the KMM+KMN+KNN Auger Electron Spectrum of ^{111}Cd from the EC-decay of ^{111}In . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 151 (2006) 193-198.
10. A. Inoyatov, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, A. Kovalik, N.A. Lebedev, A.V. Lubashevskiy, A.F. Novgorodov, L.L. Perevoshchikov, Ts. Vylov, E.A. Yakushev. The KLL Auger spectrum of neon from the EC-decay of ^{22}Na . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 154 (2007) 79–82.
11. A. Inoyatov, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, A. Kovalik et al. Effects of relativity and “atomic structure” in the KLL Auger spectrum of ^{88}Sr generated in the EC-decay of ^{88}Y . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena* 160 (2007) 54–57.
12. A.Kh. Inoyatov, D.V. Filosofov, L.L. Perevoshchikov, A. Kovalik, V.M. Gorozhankin, Ts. Vylov. Experimental investigation of chemical effects on the $\text{KL}_{2,3}\text{L}_{2,3}$ Auger spectrum of ^{54}Cr from the EC-decay of ^{54}Mn . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena* 168 (2008) 20–24.
13. A.Kh. Inoyatov, L.L. Perevoshchikov, A. Kovalik, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin. The KLL Auger spectrum of ^{65}Cu measured from the EC decay of ^{65}Zn . *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 171 (2009) 53–56.
14. A.Kh. Inoyatov, A. Kovalik, D.V. Filosofov, N.A. Lebedev, L.L. Perevoshchikov, V.S. Pronskih. The first observation of all the basic components of the KLL Auger spectrum of Sm generated in the radioactive decay of $^{147,148,149}\text{Eu}$ atoms in a solid state source. *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 184 (2011) 52–56
15. A.Kh. Inoyatov, D.V. Filosofov, V.M. Gorozhankin, A. Kovalik, I. Adam, L.L. Perevoshchikov, M. Ryšavy. Improved characteristics of the 22.5 keV (M1+E2) nuclear transition in ^{149}Sm . *Eur. Phys. J. A*, 47 (2011) 64.
16. A.Kh. Inoyatov, L.L. Perevoshchikov, V.M. Gorozhankin, A. Kovalik, V.I. Radchenko, D.V. Filosofov. Searching for influence of the “atomic structure effect” on the KLL and LMM Auger transition energies of Zn ($Z = 30$) and Gd ($Z = 64$). – *J. Electron Spec. and Rel. Phenomena*, 184 (2011) 457–462.
17. A. Kh. Inoyatov, L. L. Perevoshchikov, A. Kovalik, O. Dragoun, D. V. Filosofov. Experimental investigation of ligand effects on the conversion electron spectrum of the 22.5 keV M1+E2 nuclear transition in ^{149}Sm . *Eur. Phys. J. A*, 47 (2011) 84-91.

Список цитированной литературы

- [1] <http://pdg.lbl.gov/>
- [2] Aseev V.A., et al. arXiv:1108.5034v1 [hep-ex] 25 Aug 2011
- [3] Kraus Ch. et al., EPJ C, 40(2005)447
- [4] <http://www-ik.fzk.de/katrin>
- [5] Shirley D.A., Phys. Rev. A, 7(1973)1520
- [6] Larkins F.P., ADNDT, 20(1977)311
- [7] Sevier K.D., ADNDT, 24 (1979) 323
- [8] Singh B., Nucl. Data Sheets for A=149, 102 (2004) 1
- [9] Antman S. et al., Z. Phys., 237 (1970) 285
- [10] Kibedia T. et al., NIM A 589 (2008) 202; <http://physics.anu.edu.au/nuclear/bricc/>

Получено 5 марта 2012 г.

Отпечатано методом прямого репродуцирования
с оригинала, предоставленного автором.

Подписано в печать 06.03.2012.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 2,12. Уч.-изд. л. 2,51. Тираж 100 экз. Заказ № 57593.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/