

# ПРЕЦИЗИОННАЯ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ЯДЕРНАЯ ЭЛЕКТРОННАЯ СПЕКТРОМЕТРИЯ И ЕЕ РАЗНООБРАЗНОЕ ПРИМЕНЕНИЕ В ПРОЕКТЕ KATRIN ПО ПОИСКУ МАССЫ НЕЙТРИНО В $\beta$ -РАСПАДЕ ТРИТИЯ

*А. Ковалик*<sup>1,2,\*</sup>, *А. Х. Иноят*<sup>1,3</sup>, *Д. Венос*<sup>2</sup>, *М. Зборжил*<sup>2,4</sup>,  
*О. Драгоун*<sup>2</sup>, *Д. В. Философов*<sup>1</sup>, *Л. Л. Перевощиков*<sup>1</sup>,  
*О. Лэбеда*<sup>2</sup>, *М. Рышавы*<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

<sup>2</sup> Институт ядерной физики АН ЧР, Ржеж, Чешская Республика

<sup>3</sup> Институт прикладной физики, Национальный университет Узбекистана, Ташкент

<sup>4</sup> Федеральное физико-техническое учреждение (РТВ), Брауншвейг, Германия

<b>ВВЕДЕНИЕ</b>	<b>813</b>
Принцип работы интегрального электростатического спектрометра с магнитной адиабатической коллимацией (MAC-E-фильтр)	816
Нейтринный проект KATRIN	818
<b>РАЗРАБОТКА СВЕРХСТАБИЛЬНОГО РЕПЕРА ДЛЯ МОНИТОРИНГА СТАБИЛЬНОСТИ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ШКАЛЫ ГЛАВНОГО СПЕКТРОМЕТРА ПРОЕКТА KATRIN</b>	<b>820</b>
Выбор естественного источника реперных электронов	822
Спектрометры электронов, применяемые для исследований	823
Исследования источников $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных испарением в вакууме	830
Исследование влияния физико-химического окружения атомов на энергии конверсионных и оже-электронов	835
Исследования источников $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных ионной имплантацией	855

---

\*E-mail: kovalik@jinr.ru

Возможности применения фотоэлектронов [89]	867
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	870
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	872

## ПРЕЦИЗИОННАЯ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ЯДЕРНАЯ ЭЛЕКТРОННАЯ СПЕКТРОМЕТРИЯ И ЕЕ РАЗНООБРАЗНОЕ ПРИМЕНЕНИЕ В ПРОЕКТЕ KATRIN ПО ПОИСКУ МАССЫ НЕЙТРИНО В $\beta$ -РАСПАДЕ ТРИТИЯ

*А. Ковалик*<sup>1,2,\*</sup>, *А. Х. Иноят*<sup>1,3</sup>, *Д. Венос*<sup>2</sup>, *М. Зборжил*<sup>2,4</sup>,  
*О. Драгоун*<sup>2</sup>, *Д. В. Философов*<sup>1</sup>, *Л. Л. Перевощиков*<sup>1</sup>,  
*О. Лэбеда*<sup>2</sup>, *М. Рышавы*<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

<sup>2</sup> Институт ядерной физики АН ЧР, Ржеж, Чешская Республика

<sup>3</sup> Институт прикладной физики, Национальный университет Узбекистана, Ташкент

<sup>4</sup> Федеральное физико-техническое учреждение (РТВ), Брауншвейг, Германия

Достижение намеченной чувствительности к массе покоя электронного антинейтрино на уровне 0,2 эВ в тритиевом проекте KATRIN обусловлено стабильностью энергетической шкалы его главного спектрометра в пределах  $\pm 60$  мэВ в течение двух месяцев при энергии электронов 18,6 кэВ. С помощью прецизионной низкоэнергетической ядерной электронной спектрометрии нами был разработан удовлетворяющий этому требованию естественный источник реперных электронов с энергией  $(17824,3 \pm 0,5)$  эВ, основанный на К-конверсионных электронах ядерного  $\gamma$ -перехода 32 кэВ в  $^{83m}\text{Kl}$  из распада материнского  $^{83}\text{Rb}$ . Спектроскопические параметры источников  $^{83m}\text{Kl}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных ионной имплантацией в поликристаллические платиновые фольги, заметно превосходили свойства напыленных источников. В рамках разработки было проведено широкомасштабное исследование влияния физико-химического окружения атомов различных радиоизотопов в разных подложках напыленных и имплантированных радиоактивных источников на энергии эмитируемых конверсионных и оже-электронов и на структуру соответствующих энергетических спектров. Также была рассмотрена возможность применения фотоэлектронных источников с металлическим конвертером в качестве источников реперных электронов для проекта KATRIN.

To reach the intended sensitivity to the rest mass of the electron antineutrino at the level of 0.2 eV in the tritium project KATRIN, the stability of the energy scale of its main

---

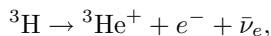
\*E-mail: kovalik@jinr.ru

spectrometer within  $\pm 60$  meV at the electron energy of 18.6 keV for two months is required. With the use of precision low-energy nuclear electron spectrometry, we developed a natural source of reference electrons with the energy of  $(17824.3 \pm 0.5)$  eV based on the K-conversion electrons of the nuclear  $\gamma$ -transition of 32 keV in  $^{83m}\text{Kr}$  from the decay of parent  $^{83}\text{Rb}$ , satisfying this demand. Spectroscopic parameters of the  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  sources prepared by ion implantation into polycrystalline platinum foils significantly exceed the properties of the vacuum-deposited sources. As part of the development, a large-scale investigation of the influence of the physicochemical environment of atoms of different radioisotopes in various matrices of vacuum-deposited and implanted radioactive sources on the energy of the emitted conversion and Auger electrons and the structure of corresponding energy spectra was carried out. A possibility of using photoelectron sources with a metal converter as sources of reference electrons for the KATRIN project was also studied.

PACS: 06.20.fb; 23.20.Nx; 29.30.-h; 32.80.Hd; 79.60.-i; 81.15.-z; 82.80.Pv

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Нейтрино (вероятно, самая распространенная частица материи во Вселенной) является единственной элементарной частицей, масса покоя которой в настоящее время известна только в приблизительных пределах. Однозначное экспериментальное подтверждение нейтринных осцилляций свидетельствует о том, что нейтрино, возникающие в слабых взаимодействиях, например электронное антинейтрино, испускаемое совместно с электроном в распаде трития



представляют собой квантово-механическую суперпозицию трех состояний с массами  $m_1$ ,  $m_2$  и  $m_3$ . Значения этих масс мы пока не способны вычислить или измерить. До сих пор удалось измерить только верхний предел для эффективной массы  $m_\nu \leq 2$  эВ, которая определяется комбинацией значений  $m_j$  и элементов  $U_{ej}$  матрицы смешивания нейтрино:

$$m_\nu^2 = \sum_{j=1}^3 |U_{ej}|^2 m_j^2.$$

Из исследований нейтринных осцилляций вытекает, что по крайней мере у одного из массовых состояний масса больше 0,05 эВ.

Модельно-независимый метод определения  $m_\nu$  был предложен еще в 1934 г. Энрико Ферми. Он показал, что форма  $\beta$ -спектра в его верхней части зависит от  $m_\nu^2$ :

$$\frac{dN}{dE} = CF(E, Z) pE(E_0 - E)[(E_0 - E)^2 - m_\nu^2]^{1/2} \Theta(E_0 - E - m_\nu),$$

где  $E$  — кинетическая энергия электрона;  $p$  — импульс электрона;  $E_0$  — полная энергия распада;  $F(E, Z)$  — функция Ферми (учитывающая кулоновское взаимодействие вылетающего электрона в конечном состоянии);  $\Theta(E_0 - E - m_\nu)$  — функция, обеспечивающая сохранение энергии;  $C$  — константа, включающая в себя ядерный матричный элемент, который, как и  $F(E, Z)$ , не зависит от  $m_\nu$ .

На основании анализа имеющихся в то время  $\beta$ -спектров Ферми сделал вывод, что «масса нейтрино меньше массы электрона и, вероятно, равна нулю». Таким образом, измерить  $m_\nu$  пытается уже третье поколение физиков (см., например, [1–20], а также рис. 1). Для этих целей был разработан ряд  $\beta$ -спектрометров, в которых постепенно улучшалось сочетание высокого приборного энергетического разрешения, высокой светосилы и существенно подавлялся фон, что является необходимым условием для изучения очень слабого эффекта вблизи верхней границы  $\beta$ -спектра (рис. 2). После завершения измерений [9–11] стало понятно, что для существенного улучшения полученного к тому времени ограничения на  $m_\nu \leq 17$  эВ [21] необходим спектро-

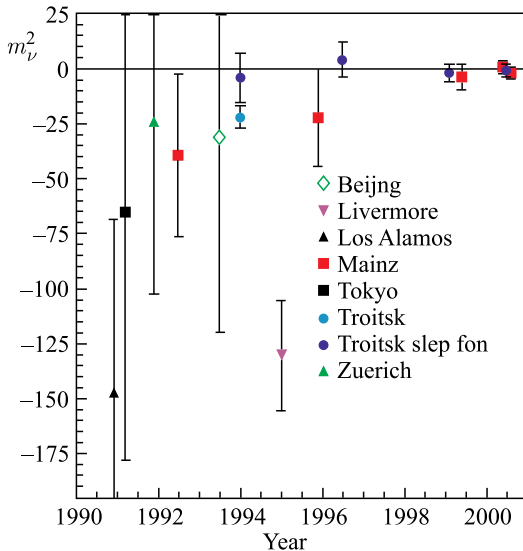


Рис. 1. Эволюция значения  $m_\nu^2$ , получаемого в различных тритиевых экспериментах с 1990 г. Следует отметить, что величина ошибки в  $m_\nu^2$  уменьшилась за этот период почти на два порядка. Важным является и тот факт, что проблема отрицательных значений  $m_\nu^2$  начала 1990-х гг. исчезла из-за лучшего понимания систематических погрешностей и модернизации экспериментальных установок. В экспериментах в Лос-Аламосе [13], Токио [14], Цюрихе [15], Пекине [16] и Ливерморе [18] использовались магнитные спектрометры, в Майнце [17,19] и Троицке [20] — электростатические спектрометры типа МАС-Е-фильтр (см. п. 2.2.3)

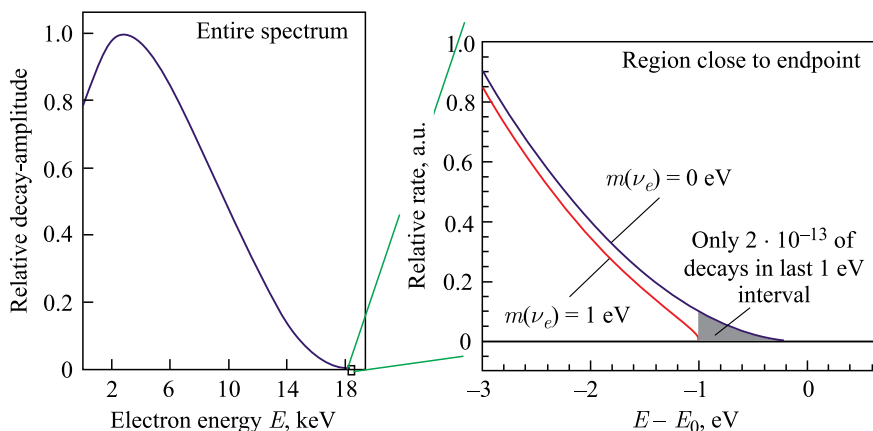


Рис. 2. Схематическое изображение  $\beta$ -спектра трития и влияния на него ненулевой массы покоя антинейтрино вблизи его граничной энергии

метр совершенно нового типа. Им стал *интегральный электростатический спектрометр с магнитной адиабатической коллимацией* (см. ниже), так называемый МАС-Е-фильтр (МАС-Е-Filter — Magnetic Adiabatic Collimation combined with an Electrostatic Filter), разработанный независимо в Институте ядерных исследований РАН (Москва, Троицк) [22] и Физическом институте Университета Майнца (Германия) [23]. Если спектрометры, используемые в предыдущих исследованиях (в основном магнитные), позволяли измерить  $\beta$ -спектр от распада трития с разрешением от 15 до 20 эВ, то МАС-Е-фильтр — с разрешением в несколько электронвольт и тем самым получить статистически полезные точки  $\beta$ -спектра существенно ближе к граничной энергии. С его помощью при исследовании  $\beta$ -спектра трития в Майнце (молекулярный тритий, замороженный на графитовую подложку) [24] и в Троицке (безоконый газовый источник трития) [25] и был получен лучший на сегодня результат по ограничению сверху на массу покоя электронного антинейтрино  $m_\nu \leq 2$  эВ [26, 27].

Надо, однако, отметить, что для определения массы покоя электронного антинейтрино можно, в принципе, использовать любой  $\beta$ -радиоактивный изотоп. Тем не менее тритий является самым подходящим кандидатом по следующим основным причинам. Из-за очень низкой граничной энергии распада (18,6 кэВ) значительно влияние массивных нейтрино на кинетическую энергию сопровождающих их  $\beta$ -электронов.  $\beta$ -распад трития является сверхразрешенным ядерным переходом, и в результате к  $\beta$ -спектру не надо применять никаких поправок, зависящих от энергии электронов. У трития и его дочернего изотопа  ${}^3\text{He}^+$  (ион гелия-3) очень простая электрон-

ная структура атомной оболочки, вследствие чего атомные поправки для  $\beta$ -распадающегося атома (или молекулы) и поправки, связанные с взаимодействием выходящего  $\beta$ -электрона с тритиевым источником, можно достоверно вычислить. Более того, у трития относительно короткий период полураспада (12,262 года), что позволяет создавать интенсивные источники для измерений  $\beta$ -спектра.

**1.1. Принцип работы интегрального электростатического спектрометра с магнитной адиабатической коллимацией (МАС-Е-фильтр).** Спектрометр типа МАС-Е-фильтр представляет собой вакуумную камеру, содержащую каскадную систему цилиндрических высоковольтных электродов и два сверхпроводящих соленоида, которые размещены на ее концах (рис. 3). (Надо

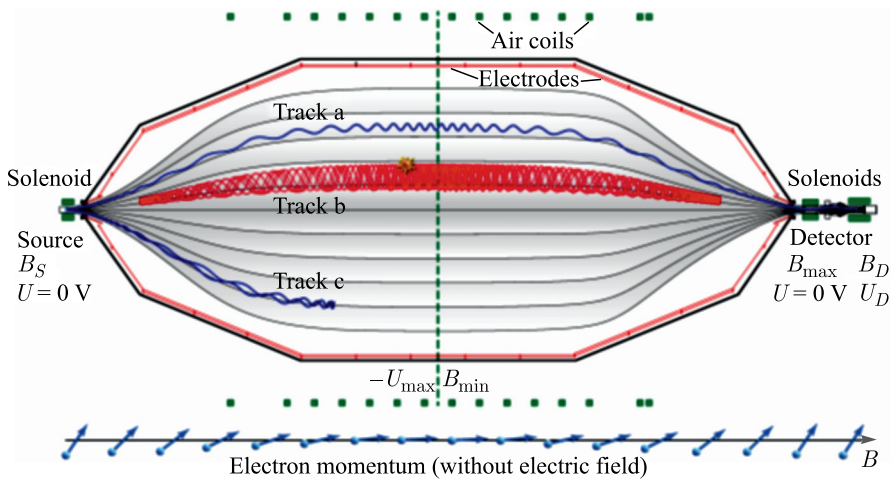


Рис. 3. Принцип работы МАС-Е-фильтра. Затененная область обозначает направляющее магнитное поле спектрометра бутылкообразной формы, соединяющее тритиевый источник с детектором. Вертикальная штриховая линия в центре спектрометра обозначает «анализирующую плоскость» МАС-Е-фильтра, где магнитное поле достигает своего минимума ( $B_{\min}$ ), а электростатический тормозящий потенциал — максимума ( $-U_{\max}$ ). Электроны, образующиеся в источнике, направляются магнитным полем в детектор против тормозящего электростатического поля. Трек а — траектория электрона с достаточной кинетической энергией для преодоления тормозящего потенциала (радиус циклотронного движения электрона изображен без соблюдения масштаба). Электрон, не обладающий достаточной энергией, отражается обратно к источнику (трек с). Трек б изображает движение электрона, который образовался внутри МАС-Е-фильтра (например, вследствие радиоактивного распада) и попал в «магнитную ловушку». Стрелки внизу показывают направление импульса электрона относительно силовой линии направляющего магнитного поля. Неоднородное магнитное поле преобразует поперечный импульс в продольный и обратно

добавить, что в главный спектрометр проекта KATRIN добавлены воздушные катушки, индуцирующие слабое направляющее магнитное поле в центре спектрометра для компенсации искажений, вызванных земным магнитным полем, а также краевыми полями соленоидов и остаточной намагниченностью.) Соленоиды генерируют сильно неоднородное магнитное поле, направляющее электроны вдоль линий этого поля от места их образования в источнике до детектора. Минимальная напряженность поля  $B_{\min}$  в центральной плоскости (так называемой *анализирующей плоскости* — вертикальная штриховая линия) на несколько порядков меньше по сравнению с ее максимальным значением  $B_{\max}$  в центре соленоидов. Основное свойство спектрометров с *адиабатической магнитной коллимацией* состоит в том, что в силу адиабатичности движения электронов в медленно меняющихся магнитных полях поперечный импульс циклотронного движения электронов преобразуется в продольный импульс, параллельный силовым линиям поля. При соблюдении критерия адиабатичности это свойство сохраняется для любой искривленной и удаленной от оси спектрометра траектории. Тем самым оказывается возможным иметь равномерно высокое разрешение при любой площади источника. Параллельный пучок измеряемых электронов направлен против отрицательного электростатического потенциала, созданного набором вышеупомянутых цилиндрических электродов, с максимумом ( $-U_{\max}$ ) в центре спектрометра. Все электроны, обладающие достаточной энергией для преодоления электростатического потенциала, повторно ускоряются и коллимируются на детектор (рис. 3, трек а). (Дополнительный положительный потенциал на детекторе ( $U_D$ ) может ускорить электроны, сместив таким образом их энергии вне области возможных помех разного вида.) Все остальные электроны отражаются обратно в источник. Поэтому спектрометр действует как интегрирующий высокоэнергетический фильтр. Изменяя потенциал электростатического торможения, можно измерить спектр электронов в интегрирующем режиме. Энергетическое разрешение МАС-Е-фильтра ограничено остаточной поперечной энергией циклотронного движения электронов, которая не поддается анализу с помощью тормозящего потенциала. При предположении сохранения магнитного момента циклотронного движения энергетическое разрешение  $\Delta E$  определяется отношением значений слабого магнитного поля  $B_{\min}$  в анализирующей плоскости спектрометра и максимального магнитного поля  $B_{\max}$  вдоль траектории электрона с энергией  $E_e$ :

$$\Delta E = \frac{B_{\min}}{B_{\max}} E_e.$$

Заранее отметим, что для того, чтобы в проекте KATRIN повысить чувствительность к массе покоя антинейтрино  $m_\nu$  на порядок, требуется не только высокая статистика и улучшение энергетического разрешения спектрометра, но и низкий уровень фона (по крайней мере он должен



быть сравнимым с сигналом от тритиевых  $\beta$ -электронов вблизи граничной энергии).

Основным источником фона могут быть электроны с энергией кэВ-ного диапазона, возникающие в радиоактивных распадах нейтральных атомов или молекул в объеме спектрометра (например, радона или трития). Если распад происходит в магнитном поле внутри спектрометра, многие из этих первичных электронов могут оказаться захваченными из-за эффекта магнитного зеркала (рис. 3, трек b), т. е. попасть в так называемую «магнитную ловушку». Захваченные таким образом электроны могут циркулировать внутри спектрометра, пока не потеряют энергию при ионизации молекул остаточного газа в камере спектрометра, достаточную для того, чтобы покинуть ловушку. Низкоэнергетические вторичные электроны могут покинуть ловушку через любой конец спектрометра. После ускорения тормозящим потенциалом некоторые из них могут достичь детектора с той же энергией, что и  $\beta$ -электроны от распада трития, и тем самым увеличить уровень фона. Однако надо отметить, что к выходу электронов из ловушки может привести также рассеяние электронов, которое переводит направление их движения в телесный угол, соответствующий вылету из ловушки.

**1.2. Нейтринный проект KATRIN.** После завершения двух самых результативных измерений по определению массы покоя электронного антинейтрино из формы  $\beta$ -спектра трития в Майнце [24] и в Москве (Троицке) [25] авторы пришли к выводу, что возможности их спектрометров для улучшения полученных результатов почти исчерпаны. Поэтому в январе 2001 г. в городе Бад-Либенцелле (Германия) было проведено международное совещание ведущих специалистов в разных областях с целью ответить на два важных вопроса. Стоит ли стремиться к дальнейшему повышению чувствительности в определении  $m_\nu$  этим путем? Возможно ли это вообще в условиях современного состояния техники? Ответ на оба вопроса был однозначно положительным, и поэтому в июне 2001 г. немецкие, российские, американские и чешские физики основали международную коллаборацию KATRIN (KArlsruhe TRItium Neutrino) [28]. В качестве места эксперимента был выбран KIT (Karlsruher Institut für Technologie — Технологический институт в Карлсруэ), поскольку в нем находится крупнейшая в Европе тритиевая лаборатория.

Первоначальное намерение коллаборации KATRIN заключалось в создании гигантского главного электронного спектрометра типа MAC-E-фильтр диаметром 7 м и длиной 23 м. Этот уникальный прибор должен был обладать чувствительностью к  $m_\nu$  на уровне 0,35 эВ. Менее чем через год международная группа независимых экспертов вновь рассмотрела проект. Принимая во внимание уникальность проекта в глобальном масштабе, эта группа рекомендовала попытаться получить еще более высокую чувствительность к массе нейтрино  $m_\nu$ .



Рис. 4. Один из эпизодов заключительного этапа транспортировки вакуумной камеры главного спектрометра проекта KATRIN массой 200 т с завода-изготовителя в КИТ (Карлсруэ)

В 2004 г. исследователи, участвующие в проекте KATRIN, пришли к выводу, что с использованием физических методов и технологий на самом пределе современных возможностей должно быть реально повысить чувствительность в определении  $m_\nu$  до 0,2 эВ. Поскольку измеряемая величина представляет собой квадрат массы  $m_\nu^2$ , то намеченная цель являлась беспрецедентным *стократным* повышением чувствительности за один шаг. Для этого пришлось увеличить диаметр спектрометра до 10 м. Чтобы продемонстрировать размеры, на рис. 4 показан эпизод из заключительного этапа транспортировки вакуумной камеры главного спектрометра массой 200 т с завода-изготовителя в КИТ (это почти 9000 км пути по рекам и морям).

После многолетних усилий коллаборации KATRIN удалось завершить строительство 70-м установки (рис. 5). Она обладает лучшими характеристиками по сравнению с другими устройствами, созданными ранее для этих целей. Ее частью является безоконный источник молекулярного трития (WGTS) длиной 16 м и массой 20 т, температура которого 30 К стабилизируется с относительной точностью  $1 \cdot 10^{-3}$ . Предварительный спектрометр (PS)

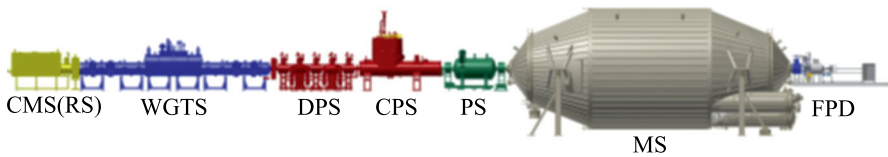


Рис. 5. Схема 70-м экспериментальной установки проекта KATRIN: CMS — система калибровки и мониторинга; WGTS — безоконный газовый источник трития; DPS — секция дифференциальной откачки; CPS — секция криогенной откачки; PS — предварительный спектрометр; MS — главный спектрометр; FPD — детектор в фокусной плоскости. Для лучшей наглядности основной спектрометр показан без системы воздушных магнитных катушек для компенсации искажений направляющего магнитного поля соленоидов, вызванных земным магнитным полем, а также периферийными полями соленоидов и остаточной намагниченности

пропускает для энергетического анализа в главном спектрометре (MS) только электроны из узкой области  $\beta$ -спектра (в результате поток электронов от тритиевого источника WGTS уменьшается в  $10^7$  раз), содержащие информацию о  $m_\nu$ , что приводит к существенному подавлению нежелательного фона (в главный спектрометр входит около  $10^3$   $\beta$ -частиц в секунду). После энергетического анализа в главном спектрометре в детектор электронов попадает не более нескольких десятков  $\beta$ -частиц в секунду. Детектор состоит из 148 независимых частей (пикселей), что, в принципе, позволяет внести поправки на незначительные неоднородности устройства (если они будут иметь место).

Наконец, 11 июня 2018 г. в Технологическом институте в Карлсруэ состоялся торжественный запуск экспериментальной установки проекта KATRIN, в котором принимает участие более 160 физиков, инженеров и техников. Сначала проводились необходимые калибровочные измерения. Первый сеанс набора данных для поиска массы нейтрино начат в марте 2019 г. Цели проекта — получения чувствительности к  $m_\nu$  на уровне 0,2 эВ (с 90%-м доверительным интервалом) — планируется достичь в течение 1000 сут чистого набора статистики.

## 2. РАЗРАБОТКА СВЕРХСТАБИЛЬНОГО РЕПЕРА ДЛЯ МОНИТОРИНГА СТАБИЛЬНОСТИ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ШКАЛЫ ГЛАВНОГО СПЕКТРОМЕТРА ПРОЕКТА KATRIN

Для достижения намеченной цели проекта KATRIN — получения чувствительности к  $m_\nu$  на уровне 0,2 эВ — его главный спектрометр должен обеспечить приборное энергетическое разрешение около 1 эВ при энергии электронов 18,6 кэВ. Одним из важнейших требований для достижения этой

цели является стабильность тормозящего напряжения (около  $-18,6$  кВ), которое позволяет проводить анализ  $\beta$ -спектра трития вблизи его граничной энергии. По проведенным расчетам, нестабильность тормозящего напряжения в пределах  $\pm 60$  мВ может внести систематическую погрешность на уровне  $0,007$  эВ<sup>2</sup> в значение квадрата массы покоя антинейтрино, получаемое из измеренного  $\beta$ -спектра. Такая погрешность представляет значительный вклад в максимально допустимую систематическую погрешность  $0,017$  эВ<sup>2</sup> для достижения запланированной чувствительности к массе нейтрино. Долгосрочный мониторинг стабильности тормозящего напряжения  $-18,6$  кВ в пределах отклонения  $\pm 60$  мВ (т.е. с относительной погрешностью  $\pm 3 \cdot 10^{-6}$ ) в течение двух месяцев (планируемая продолжительность одного сеанса набора статистики) является достаточно сложной для современной техники задач. Поэтому стабильность тормозящего напряжения может быть проверена одновременно двумя независимыми способами: а) с помощью высокоточного вольтметра в сочетании со специальным делителем высокого напряжения и б) мониторингом положения стабильной во времени реперной линии моноэнергетических электронов, эмитируемых естественным источником, в специальном мониторирующем спектрометре (того же типа, что и главный спектрометр проекта KATRIN), который будет подключен к общему источнику напряжения  $-18,6$  кВ. В таком случае любое изменение положения реперной линии будет свидетельствовать о нестабильности в общей системе тормозящего напряжения. В разработке естественного источника реперных электронов, удовлетворяющего вышеупомянутым требованиям, вместе с коллегами из Института ядерной физики АН ЧР (Ржеж, Чешская Республика) принимали участие и сотрудники Лаборатории ядерных проблем (ЛЯП) ОИЯИ, которые занимаются прецизионной ядерной электронной спектроскопией уже несколько десятков лет.

В связи с этим необходимо напомнить, что, в отличие от гамма-спектроскопии, в ядерной электронной спектроскопии до сих пор нет коммерчески доступных твердотельных энергетических реперов конверсионных или оже-электронов с погрешностью менее  $0,1$  эВ. Главная причина состоит в том, что кинетические энергии этих электронов напрямую зависят от энергий их связи в атоме. А как известно, энергии связи электронов чувствительны к физико-химическому окружению атомов, что впоследствии приводит к энергетическим сдвигам в спектрах как конверсионных электронов, так и оже-электронов в особенности в случае твердотельных источников. Из фотоэлектронной спектроскопии известно, что этот энергетический сдвиг (который принято называть химическим сдвигом) достигает  $\pm 7$  эВ [29–31] и сильно коррелирован с валентным состоянием излучаемого атома. Известно также, что энергии связи электронов в твердых телах, как правило, на  $2$ – $10$  эВ [32, 33] меньше, чем для свободных атомов (так называемый твердотельный сдвиг), а для атомов, адсорбированных на поверхности твердых

тел, — на 1–3 эВ [34–36]. Необходимо, однако, подчеркнуть, что с точки зрения выполнения требований к естественному источнику реперных электронов для мониторинга *стабильности* тормозящего напряжения в измерениях KATRIN решающую роль играет не точность определения *абсолютного* значения энергии реперных электронов, а ее *временная* стабильность.

**2.1. Выбор естественного источника реперных электронов.** В некоторых предыдущих прямых экспериментах [13, 24, 37] по определению массы покоя электронного антинейтрино в качестве реперных электронов для энергетической калибровки спектрометров была выбрана достаточно узкая линия (естественная ширина  $(2,70 \pm 0,06)$  эВ [38]) К-конверсионных электронов сильно конвертируемого ( $\alpha_{\text{tot}} = 2010$ ) ядерного  $\gamma$ -перехода 32 кэВ [39] в  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  (К-32), энергия которых  $(17824,3 \pm 0,5)$  эВ относительно близка к граничной энергии  $\beta$ -спектра трития (18,6 кэВ). В упомянутых выше измерениях [13, 24] применяли вымороженный на углеродную подложку  $^{83\text{m}}\text{Kr}$ , а в работе [37] — газообразный  $^{83\text{m}}\text{Kr}$ . Поскольку период полураспада  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  всего 1,83 ч, то он не подходит для долговременного мониторинга. Кроме того, оба подхода требуют применения сложного оборудования.

На основании результатов исследований спектров оже-электронов К- и L-серий криптона [40], а также К-, L-, M-, N-электронов внутренней конверсии [41]  $\gamma$ -переходов 9,4 и 32 кэВ в  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  из распада  $^{83}\text{Rb}$  (рис. 6) в твердотельном источнике физиками из ЛЯП ОИЯИ было предложено использовать в качестве естественного источника реперных электронов для мониторинга

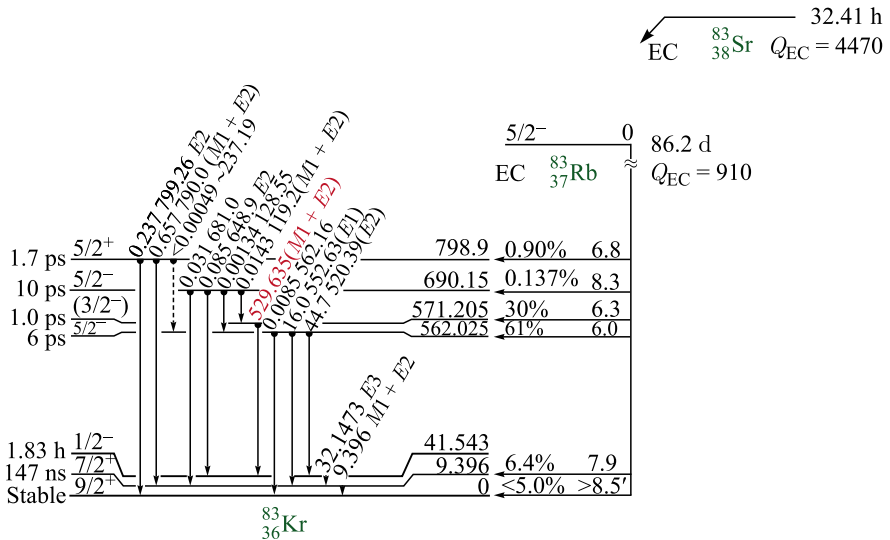


Рис. 6. Фрагмент схемы распада  $^{83}\text{Rb}$  и  $^{83}\text{Sr}$  [42]

стабильности энергетической шкалы главного спектрометра проекта KATRIN твердотельный источник материнского изотопа  $^{83}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 86,2$  сут). Его главными преимуществами являются период полураспада (больше, чем планируемая продолжительность одного сеанса измерения в проекте KATRIN 2 мес) и отсутствие необходимости в какой-либо аппаратуре для поддержки источника в рабочем состоянии. Источник  $^{83}\text{Rb}$ , использованный в работах [40, 41], был изготовлен методом термического испарения в вакууме на естественным путем окисленную алюминиевую фольгу. Последующие исследования положения конверсионной линии K-32 на комбинированном электростатическом спектрометре электронов ESA50 (см. п. 2.2.1) в ЛЯП ОИЯИ в течение нескольких месяцев определили [43] стабильность энергии этой линии только в пределах  $\pm 1,1$  эВ, что недостаточно для удовлетворения требований проекта KATRIN ( $\pm 60$  мэВ). Надо, однако, отметить, что измеренная стабильность энергии линии K-32 включала в себя и нестабильность самого спектрометра, а также влияние других эффектов. Поэтому в сотрудничестве с физиками из ИЯФ АН ЧР (Ржеж) начались широкомасштабные и долгосрочные исследования возможностей улучшения временной стабильности энергии конверсионных электронов K-32, испускаемых твердотельными источниками  $^{83}\text{Rb}$ .

**2.2. Спектрометры электронов, применяемые для исследований.** Необходимым условием для точного определения энергии конверсионных электронов, эмитируемых твердотельными источниками, является наличие у электронного спектрометра приборного разрешения на уровне несколько электронвольт. Это позволяет выделить в экспериментальном спектре компоненты от исследуемых электронов, покинувших источник без энергетических потерь, так называемые «пики без потерь», или «пики нулевых потерь» (рис. 7). Собственная ширина таких пиков определяется естественной шириной соответствующего атомного уровня и ядерного перехода. Форму пика без потерь можно описать сверткой гауссиана (функции отклика спектрометра на моноэнергетические электроны) и лоренциана (представляющего собой естественное распределение энергий исследуемых электронов, покидающих атомы), называемой функцией Войта. Электроны, испытавшие неупругое рассеяние в источнике, например при возбуждении поверхностных и объемных плазмонов, возбуждении атомов (процессы встряски электронной системы атома, вызванные остоной вакансией) и кристаллической решетки и т.д., образуют сателлиты сложной структуры вблизи остовных линий спектра на их низкоэнергетическом склоне. (Надо, однако, отметить, что сателлитные спектры несут важную информацию об электронном строении объектов и используются для исследований в других областях физики.) Доминирующим является широкий «пик дискретных потерь» (см. рис. 7 — DEL), генерируемый в основном электронами, потерявшими энергию при возбуждении поверхностных и объемных плазмонов. Очень длинный низкоэнергетический

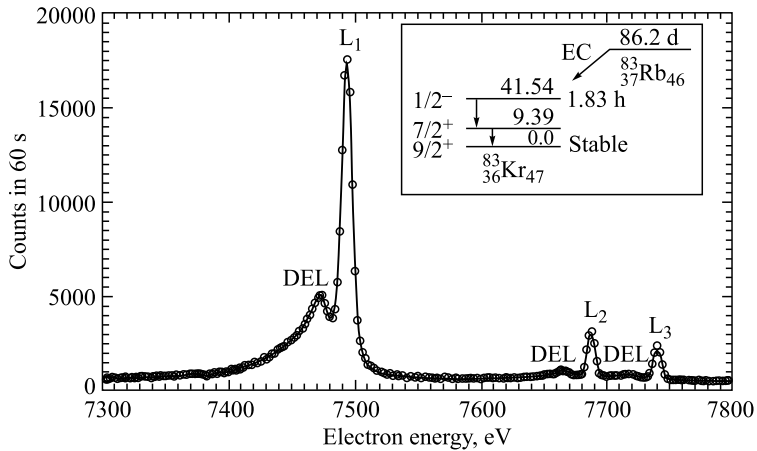


Рис. 7. Конверсионные линии  $L_{1-3}$  перехода 9,4 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$  (из распада материнского  $^{83}\text{Rb}$  в твердотельном источнике), измеренные на комбинированном электростатическом спектрометре ESA50 (см. п. 2.2.1) при приборном разрешении 6,5 эВ с шагом 2 эВ. Наблюдаемые интенсивные спутники вблизи основных линий на их низкоэнергетическом склоне (так называемые «пики дискретных потерь» — DEL) образуются в основном электронами, потерявшими энергию при возбуждении поверхностных и объемных плазмонов в материале радиоактивного источника (см. начало п. 2.2)

хвост, опускающийся до нулевой энергии, образуется многократно неупруго рассеянными электронами. Положение и ширина пика дискретных потерь зависят от материала, с которым взаимодействуют электроны (поэтому иногда используется также название «пик характеристических потерь»), а его интенсивность — от отношения энергетически зависимой длины свободного пробега для неупругого рассеяния электронов в данном материале к эффективной толщине слоя, который должны пройти электроны. При этом значения характеристических потерь (попадающих в основном в энергетический интервал от нескольких эВ до нескольких десятков эВ) меняются и в зависимости от структурных модификаций одного и того же элемента. Из-за недостаточной информации о характеристиках измеряемых радиоактивных источников электронов, включая их толщину, состав, однородность, структуру и т.д., пока невозможно вычислить спектры энергетических потерь с достаточной точностью, хотя в этом направлении уже имеется определенный прогресс (см., например, [44–48]).

В связи с этим стоит заметить, что в случае проведения измерений с недостаточно высоким приборным разрешением (например, десятки электрон-вольт) и (или) с использованием источника электронов с большой эффек-

тивной толщиной (по сравнению с длиной свободного пробега изучаемых электронов) два упомянутых выше основных компонента спектральной линии «сольются» в одну линию в аппаратном спектре (рис. 8) либо «пик без потерь» будет сильно подавлен. А это исключает возможность точного определения энергии спектральной линии.

Для тестирования временной стабильности энергии конверсионных электронов К-32 и свойств твердотельных источников  $^{83}\text{Rb}$  использовались три электронных спектрометра, а именно: 1) дифференциальный комбинированный электростатический спектрометр ESA50 [49] (ЛЯП ОИЯИ), 2) дифференциальный электростатический спектрометр ESA12 [50, 51] типа цилиндрическое зеркало (ИЯФ АН ЧР, Ржев) и 3) интегральный электростатический спектрометр с магнитной адиабатической коллимацией типа МАС-Е-фильтр [23] (Институт физики, Университет Майнца, Германия).

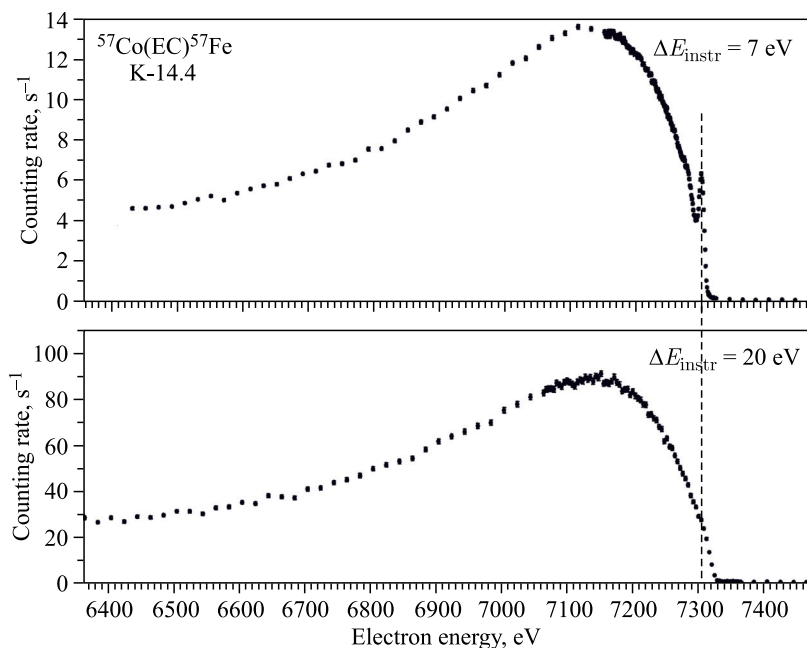


Рис. 8. К-линия спектра конверсионных электронов ядерного перехода 14,4 кэВ в  $^{57}\text{Fe}$  (возникающего в распаде  $^{57}\text{Co}$  из электронного захвата). Измеряемый источник  $^{57}\text{Co}$  был намеренно покрыт (вакуумным напылением) слоем золота для подавления «пика без потерь» дополнительным неупругим рассеянием электронов в этом слое. При приборном разрешении  $\Delta E_{\text{instr}} = 7 \text{ эВ}$  «пик без потерь» с энергией 7300 эВ хорошо выделен (верхний спектр — вертикальная штриховая линия), но при приборном разрешении  $\Delta E_{\text{instr}} = 20 \text{ эВ}$  он «исчезает», сливается с интенсивным «пиком дискретных потерь» (нижний спектр)



### 2.2.1. Комбинированный электростатический спектрометр ESA50.

Комбинированный электростатический спектрометр ESA-50 позволяет проводить измерения спектров электронов в области энергий 0,1–50 кэВ. В этом спектрометре объединены два типа анализаторов: интегральный анализатор со сферическим замедлителем и дифференциальный анализатор типа двойного цилиндрического зеркала (рис. 9). Интегральный анализатор выполняет функцию замедлителя электронов перед их энергетическим анализом с помощью двойного цилиндрического зеркала. Использование такой комбинации позволило улучшить абсолютное энергетическое разрешение за счет уменьшения величины энергии анализа цилиндрического зеркала и исключения влияния релятивистских эффектов на его фокусирующие свойства. Сканирование спектра производится изменением замедляющего напряжения  $U_r$  при фиксированном анализирующем напряжении  $u_a$  на цилиндрическом зеркале. В таком режиме требуемое инструментальное разрешение спектрометра может быть выбрано установкой соответствующего напряжения  $u_a$  на цилиндрическом зеркале. Интегральный анализатор представляет собой заземленную сферу (2) радиусом  $R_s = 42$  мм с концентрической конической щелью, являющейся одновременно входным окном цилиндрического зеркала. Замедляющее напряжение  $U_r$  прикладывается к источнику электронов (1), установленному в центре сферы. Замедленные электроны через коническую щель (3) попадают в анализирующее поле цилиндрического зеркала. Внутренние (4) и внешние (5) радиусы цилиндрических зеркал равны 50 и 105 мм соответственно. Расстояние между источником и детектором равно 615 мм. Сканирование спектра электронов производится в циклическом режиме дискретным изменением высоковольтного тормозящего напряжения  $U_r$ . Минимальный шаг изменения  $U_r$  составляет 0,2 В. Система управления спектрометром и накопления данных полностью автоматизирована. Сканирующее высоковольтное напряжение в области  $U_r \sim 20$  кВ стабилизируется на уровне 6 ppm. В качестве детектора электронов используется электронный

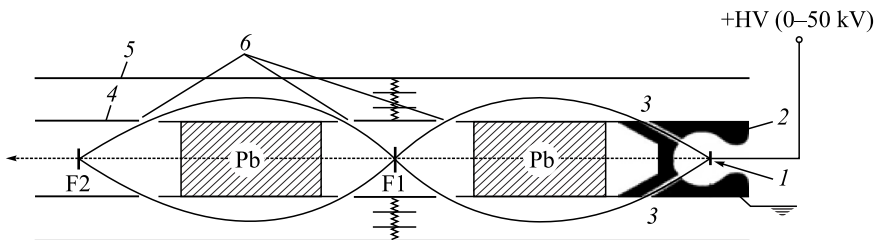


Рис. 9. Принципиальная схема комбинированного электростатического электронного спектрометра ESA50 [49]: 1 — источник электронов; 2 — тормозящая сфера; 3 — кольцевая коническая щель; 4 — внутренний коаксиальный цилиндрический электрод; 5 — внешний коаксиальный цилиндрический электрод; 6 — круговые щели; F1, F2 — первый и второй фокусы соответственно; Pb — свинцовые абсорберы

умножитель открытого типа Sjuts KBL15RS, диаметр входного окна 15 мм. Эффективность регистрации детектора для электронов с энергией до 1 кэВ составляет  $\sim 90\%$ . При ширине входных и выходных диафрагм цилиндрического зеркала (6) 16 мм минимальное приборное разрешение и светосила спектрометра в области  $E_e \sim 7$  кэВ составляют  $\Delta E_{inst} \sim 3$  эВ и  $\sim 0,2\%$  от  $4\pi$  соответственно. Безмасляный вакуум в спектрометре на уровне  $\sim 7 \cdot 10^{-7}$  мбар поддерживается с помощью турбомолекулярного насоса.

**2.2.2. Электростатический спектрометр ESA12.** Первоначальная версия [50] электростатического спектрометра ESA12 представляла собой цилиндрический зеркальный энергоанализатор с двойным проходом через него электронов для уменьшения фона детектора от рассеянных электронов, а также от рентгеновского и гамма-излучения, испускаемого радиоактивными источниками. Спектрометр был разработан специально для исследования энергетических спектров электронов, эмитируемых радиоактивными источниками, для чего требуются источники большой площади. Поэтому виртуальным электрон-оптическим источником служит кольцеобразная входная щель (7) на внутреннем коаксиальном цилиндре спектрометра (рис. 10). Благодаря относительно большим размерам энергоанализатора это конструктивное решение позволяет использовать источники площадью до  $1,5$  см<sup>2</sup>. Поскольку оба коаксиальных цилиндра спектрометра (8, 9), держатель источника (2), а также детектор электронов (11) электрически изолированы от камеры спектрометра, то спектрометр позволяет проводить измерения спектров в разных модах. Детектором электронов служит безоконный каналный электронный умножитель. Энергетический диапазон спектро-

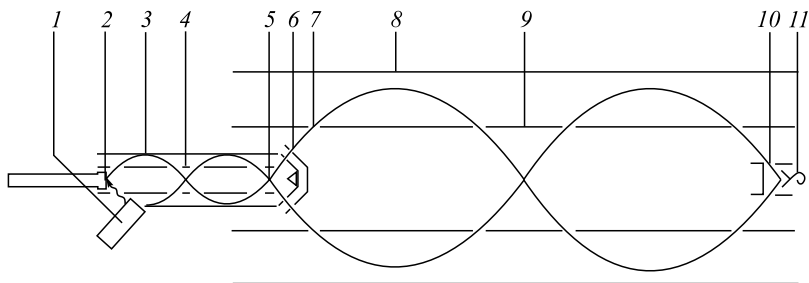


Рис. 10. Принципиальная схема усовершенствованного электростатического спектрометра ESA12 [50, 51]: 1 — рентгеновская трубка; 2, 5 — источник в положении «X» (измерение спектров фотоэлектронов и конверсионных электронов) и «AN» (измерение только спектров конверсионных электронов) соответственно; 3, 4 — соответственно внешний и внутренний цилиндры системы, транспортирующей фотоэлектроны в энергоанализатор; 6 — промежуточный электрод тормозящей линзы; 7, 10 — регулируемые щели; 8, 9 — соответственно внешний и внутренний цилиндры энергоанализатора; 11 — детектор (безоконный каналный умножитель электронов)

метра 0,1–20 кэВ. Относительное приборное разрешение спектрометра можно регулировать в пределах 0,1–1,0 %, изменяя ширину щелей на внутреннем цилиндре. Безмасляный вакуум в рабочем объеме спектрометра достигает  $5 \cdot 10^{-8}$  мбар, что на два порядка хуже стандартного уровня вакуума в спектрометре МАС-Е-фильтр Университета Майнца (см. п. 2.2.3), но почти на два порядка лучше стандартного рабочего вакуума в спектрометре ESA50.

Спустя несколько лет после запуска спектрометр ESA12 был дополнительно оснащен [51] рентгеновской трубкой (1) с алюминиевым анодом, транспортной системой электронов (3, 4) и тормозящей электроны линзой (6), что позволило существенно расширить возможности экспериментальных исследований, в том числе и радиоактивных источников, с помощью рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (XPS).

Надо отметить, что в 1983 г. с помощью спектрометра ESA12 была измерена самая узкая линия конверсионных электронов ( $\text{FWHM} = 1,0$  эВ) за всю историю экспериментального исследования явления внутренней конверсии гамма-излучения, а именно в случае  $M_4$  и  $M_5$  конверсионных линий перехода 2,17 кэВ в  $^{99m}\text{Tc}$  (рис. 11) в рамках разработки нового метода определения валентного состояния Tc (см., например, [52–55]), основанного на измерениях химических сдвигов электронов внутренней конверсии.

Так как спектрометр ESA12 не позволяет измерить конверсионную линию K-32 с достаточно высоким приборным разрешением, для исследова-

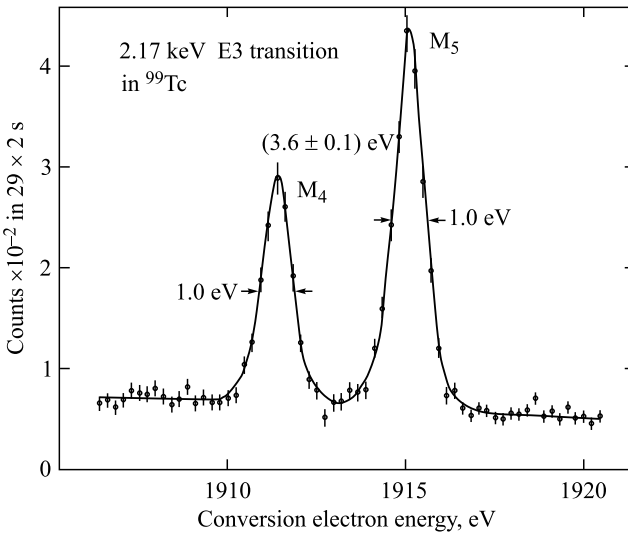


Рис. 11. Конверсионные линии  $M_4$  и  $M_5$  ядерного перехода 2,17 кэВ в  $^{99m}\text{Tc}$ , измеренные [52] с помощью электростатического спектрометра ESA12. Оцененное теоретическое значение естественных ширин обеих линий составляет около 0,23 эВ

ной была выбрана  $L_1$ -линия конверсионных электронов ядерного  $\gamma$ -перехода 9,4 кэВ ( $L_1$ -9,4) с энергией около 7,5 кэВ и естественной шириной  $(3,72 \pm 0,19)$  эВ [38]. Для получения статистической погрешности 30–10 мЭВ в значении энергии указанной линии измерения соответствующего спектра проводили в течение 3–10 сут в зависимости от интенсивности источника  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ .

**2.2.3. Спектрометр типа МАС-Е-фильтр.** Принцип работы интегрального электростатического спектрометра с магнитной адиабатической коллимацией типа МАС-Е-фильтр был изложен в п. 1.1. Спектрометр Университета Майнца [23] (рис. 12) работает в энергетическом диапазоне 7–35 кэВ с предельным значением относительного приборного разрешения  $5 \cdot 10^{-5}$  (FWHM). Стандартный уровень рабочего вакуума в камере спектрометра достигает  $10^{-10}$  мбар. Предельный вакуум зависит от температуры нагрева стенок его вакуумной камеры для обезгаживания их внутренних поверхностей, которая обычно доходит до  $+400^\circ\text{C}$ . В связи с этим надо отметить, что существенно более низкий уровень вакуума в камерах спектрометров ESA50 и ESA12 в основном связан с невозможностью нагрева вакуумной камеры в первом случае и нагревом только до  $60^\circ\text{C}$  во втором.

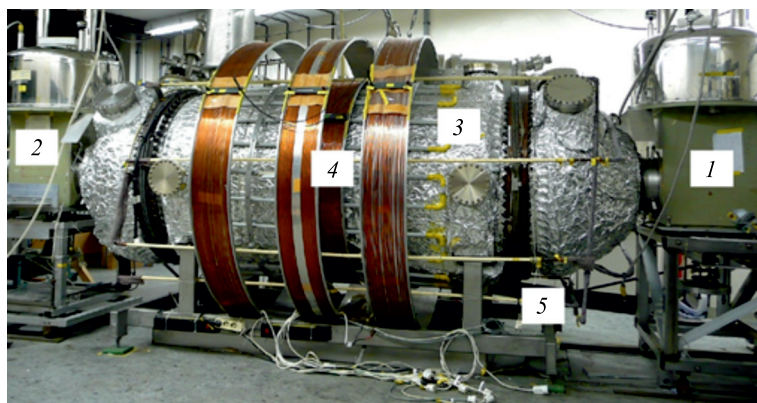


Рис. 12. Спектрометр типа МАС-Е-фильтр Университета Майнца [23] (конфигурация 2009 г.): 1 — сверхпроводящий соленоид А; 2 — сверхпроводящий соленоид В; 3 — вакуумная камера спектрометра, обернутая теплоизоляцией (для нагрева камеры при ее обезгаживании); 4 — вспомогательные воздушные катушки для регулировки разрешения спектрометра; 5 — вспомогательные перпендикулярные катушки для позиционирования магнитного потока от соленоидов, а также для компенсации магнитного поля Земли. (Источник электронов и детектор помещены в отверстиях соленоидов В (2) и А (1) соответственно)

**2.3. Нароботка радиоизотопа  $^{83}\text{Rb}$  и его выделение.** Радиоизотоп  $^{83}\text{Rb}$  получали двумя разными методами. На ранних стадиях исследований в ЛЯП

ОИЯИ массивная ниобиевая мишень облучалась протонами с энергией 600 МэВ на установке ISOLDE-2 (ЦЕРН) и затем ионы с массой  $A = 83$  имплантировались в алюминиевую фольгу. Процедура выделения  $^{83}\text{Rb}$  из алюминиевой фольги более подробно описана в работе [56].

В ИЯФ АН ЧР  $^{83}\text{Rb}$  нарабатывался в реакции  $\text{Kr}(p, xn)^{83}\text{Rb}$  при облучении природного криптона протонами с энергией 27 МэВ на циклотроне U-120M. Активность  $^{83}\text{Rb}$  достигала примерно 100 МБк, а эффективность его выделения из мишени в водный раствор составляла около 90% [57]. Раствор рубидия концентрировали высушиванием и остаток растворяли в 0,1 М  $\text{HNO}_3$  (0,5–1,5 мл). Полученный раствор рубидия вносили в хроматографическую колонку длиной 70 мм и диаметром 1,5 мм. После этого колонку промывали порциями по 0,5 см<sup>3</sup> раствора  $\text{HNO}_3$  с концентрациями 0,3, 0,5 и 1,0 М. Рубидий с колонки элюировали раствором 2,0 М  $\text{HNO}_3$  объемом 0,5 см<sup>3</sup>.

**2.4. Исследования источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных испарением в вакууме.** **2.4.1. Отработка методики приготовления источников.** Для изготовления источников  $^{83}\text{Rb}$  методом термического (омического нагрев) испарения/напыления в вакууме по методике, разработанной в ЛЯП ОИЯИ, как в ЛЯП ОИЯИ, так и в ИЯФ АН ЧР использовали коммерчески доступную аппаратуру, оснащенную безмасляной вакуумной системой, которая позволяет достичь вакуума  $10^{-6}$  мбар в рабочем объеме испарительной камеры. Раствор рубидия, получаемый согласно методикам, описанным в п. 2.3, наносили на испарительные лодочки (преимущественно из тантала, но пробовали и другие тугоплавкие металлы, такие как молибден и вольфрам) и выпаривали до сухого остатка. Из предварительно измеренной зависимости остаточной активности  $^{83}\text{Rb}$  на испарительной лодочке от температуры лодочки было обнаружено, что до температуры около 300 °С рубидий не улетучивается, а при температуре 600 °С на лодочке остается всего несколько процентов от первоначального количества и эта доля с повышением температуры заметно не уменьшается. Поэтому при приготовлении источников  $^{83}\text{Rb}$  первоначально прогревали лодочку с нанесенным на нее  $^{83}\text{Rb}$  при температуре до 200 °С в течение нескольких минут для удаления возможных летучих органических соединений, присутствующих в осадке  $^{83}\text{Rb}$ , после чего испарение рубидия проводили при температуре 800 °С в течение 30–60 с. Приготовленный источник закрепляли в специальный медный держатель, заранее покрытый золотом, чтобы обеспечить надежный электрический контакт.

Необходимо подчеркнуть, что при исследовании свойств приготовленных источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  с помощью конверсионных линий перехода 9,4 кэВ их качество оценивали (кроме эффективной толщины) и по доле удерживания  $^{83m}\text{Kr}$  в источниках. В отличие от ядерного  $\gamma$ -перехода 32,2 кэВ, через который разряжается только изомерное состояние  $^{83m}\text{Kr}$ , переход 9,4 кэВ вызван тремя разными процессами [42] (см. также рис. 6): а) прямым распадом  $^{83}\text{Rb}$  на ядерный уровень 9,4 кэВ в  $^{83}\text{Kr}$ , б) распадом  $^{83}\text{Rb}$  на ядерные

уровни  $^{83}\text{Kr}$  выше уровня 9,4 кэВ и в) разрядкой изомерного состояния  $^{83m}\text{Kr}$  ядерным переходом 32,2 кэВ. Долю удерживания  $^{83m}\text{Kr}$  в источнике определяли измерением отношения интенсивностей  $\gamma$ -квантов с энергиями 32,2 и 9,4 кэВ.

В ходе исследований варьировались некоторые факторы, которые могли бы повлиять на свойства источника, а именно: состав и активность исходного препарата  $^{83}\text{Rb}$  для напыления (в одном случае добавляли стабильный рубидий), материал подложки источника и расстояние от испарительной лодочки до подложки источника. Целью этого было: а) достижение воспроизводимости значений энергии конверсионных линий, измеренных с разными источниками  $^{83}\text{Rb}$  (но приготовленных одним методом), б) достижение достаточно большой активности  $^{83}\text{Rb}$  в источниках, в) обеспечение существенной доли удерживания  $^{83m}\text{Kr}$  в источниках и г) обеспечение максимально высокой интенсивности «пика без потерь» в экспериментальном спектре. Расстояние между лодочкой и подложкой источника изменялось в пределах от 2,5 до 15 мм. В качестве подложки источника использовалась алюминиевая фольга (окисленная естественным путем), поликристаллическая углеродная фольга и углеродная пластинка из высокоориентированного пиролитического графита (HOPG) толщиной 1 мм.

Всего было приготовлено 29 источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , из них 16 — на алюминиевой подложке, 12 — на углеродной и 1 — на подложке из HOPG. Активность  $^{83}\text{Rb}$  в приготовленных источниках находилась в пределах от 0,4 до 12,0 МБк, что соответствует расчетной толщине от 0,02 до 0,5 монслоя чистого  $^{83}\text{Rb}$ . Измерения [58] показали, что распределение активности по поверхности источника обладает аксиальной симметрией с плоским максимумом в центре источника. Оптимальным расстоянием между лодочкой и подложкой оказалось 5 мм, при котором была достигнута достаточно высокая эффективность испарения (25–30%). При более близком расстоянии эффективность и доля удерживания росли, но интенсивность «пика без потерь» заметно уменьшалась. Материал и структура используемых подложек не оказывали существенного влияния на качество источников. Надо отметить, что даже тогда, когда процедуры приготовления источников и подложки были (как нам казалось) тождественными (например, одни и те же исходные активности  $^{83}\text{Rb}$  в лодочке), структуры измеренных спектров конверсионных электронов отличались, что подтверждает чрезвычайную сложность поставленной задачи. Очевидно, спектроскопические свойства источников  $^{83}\text{Rb}$  очень чувствительны и к процедуре их приготовления, и явно полного ее понимания и контроля над ней нам достичь не удалось.

**2.4.2. Измерения на спектрометре ESA12.** На спектрометре ESA12 проводились долгосрочные (от 2 до 6 мес) измерения с пятью разными источниками. При этом четыре источника в ходе измерений несколько раз вынимали из спектрометра, хранили на воздухе и потом опять помещали в спек-

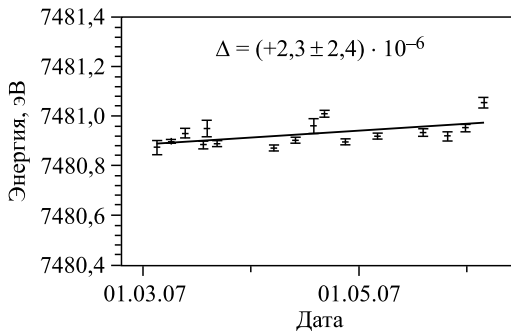


Рис. 13. Поведение во времени энергии конверсионной линии  $L_{1-9,4}$ . Показаны статистические погрешности значений энергии. Сплошная линия — линейная аппроксимация. Приведенное значение дрейфа энергии  $\Delta$  за месяц скорректировано на сдвиги, создаваемые делителем высокого напряжения и вольтметром

трометр. В измерениях применяли два разных точных делителя высокого напряжения, которые в сочетании с высокоточными вольтметрами позволяли определять напряжение с относительной погрешностью  $10^{-6}$ .

В качестве примера на рис. 13 показано поведение измеренных значений энергии конверсионной линии  $L_{1-9,4}$  во времени для одного из источников  $^{83}\text{Rb}$  на алюминиевой подложке. Первоначальная активность источника была 6,6 МБк, а доля удерживания  $^{83m}\text{Kr}$  в источнике достигала 12%. Источник находился непрерывно в вакуумной камере спектрометра с остаточным давлением порядка  $10^{-8}$  мбар. Для всех изучаемых источников измеряемое значение энергии конверсионной линии  $L_{1-9,4}$  со временем увеличивалось аналогично зависимости, приведенной на рис. 13, и это изменение можно было описать с помощью линейной функции. После учета поправок на сдвиги коэффициентов деления вышеупомянутых делителей высокого напряжения и поправки на сдвиг показаний вольтметра относительный дрейф измеренных значений энергии конверсионной линии  $L_{1-9,4}$  для исследованных источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  находился в пределах от  $2,3 \cdot 10^{-6}$  до  $12 \cdot 10^{-6}$  в месяц. Следует отметить, что энергия линии  $L_{1-9,4}$ , измеренная сразу после помещения источника в спектрометр, отличалась для разных источников. Это наблюдалось не только тогда, когда применялись разные процедуры приготовления источников, но и когда процедуры были (как нам казалось) тождественными. Максимальная разность значений измеренных энергий конверсионной линии  $L_{1-9,4}$  составляла 0,7 эВ.

**2.4.3. Измерения на спектрометре МАС-Е-фильтр.** Измерения на спектрометре типа МАС-Е-фильтр в Майнце проводились с двумя источниками  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  с рабочим обозначением № 28 и 29, напыленными на под-

ложках из поликристаллической углеродной фольги. Исходная активность  $^{83}\text{Rb}$  в источниках составляла 5,0 МБк (№ 28) и 4,9 МБк (№ 29), а доли удерживания  $^{83m}\text{Kг}$  в них — 19 и 11 % соответственно.

Исследования стабильности энергии конверсионной линии К-32 с источником № 28 начались спустя двое суток после его установки в спектрометре и длились 80 сут. При этом измерялись и другие конверсионные линии в различных условиях. Трехчасовое измерение конверсионной линии К-32 уже позволило определить ее энергию со статистической погрешностью 10 мэВ. Поведение полученных значений энергии К-32 за весь период показано на рис. 14. Данные скорректированы с учетом дрейфа показаний вольтметра и коэффициента деления делителя высокого напряжения. На 30-е сутки после начала измерений энергии всех исследуемых конверсионных линий скачкообразно увеличились на 0,9 эВ. По всей видимости, причиной было увеличение температуры делителя высокого напряжения в результате сбоя в его системе охлаждения. Как следует из рис. 14, в начале измерений энергия конверсионной линии К-32 увеличивалась и спустя некоторое время стабилизировалась. На 31-е сутки, после устранения технических неполадок, энергия конверсионной линии не вернулась к исходному значению. В период с 31-х по 50-е сутки энергия линии К-32 плавно уменьшалась, и потом наступил период стабильности (60–70-е сутки). Плавные изменения энергии линии К-32 были, вероятно, вызваны изменением работы выхода главного тормозящего электрода спектрометра и (или) нестабильностью источника  $^{83}\text{Rb}$ . После 70-х суток источник прогрели при температуре около  $70^\circ\text{C}$  в течение 10 ч в отдельной части спектрометра (без нарушения вакуума) с целью стабилизации физико-химических свойств напыленного слоя  $^{83}\text{Rb}$ . В результате энергии всех измеряемых конверсионных линий уменьшились на 25 мэВ. После повторной юстировки положения источника и детектора

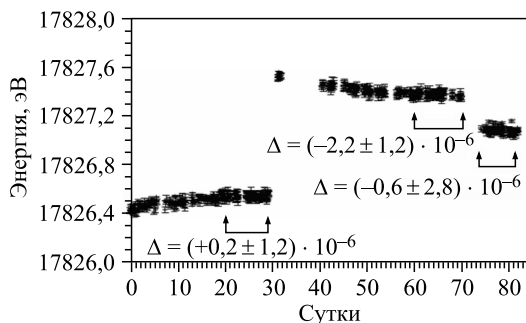


Рис. 14. Поведение энергии конверсионной линии К-32, измеренной с источником № 28 на спектрометре типа МАС-Е-фильтр в Майнце, в течение 80 сут. Отмечены области с наиболее стабильной энергией, приведены скорректированные значения дрейфа энергии ( $\Delta$ ) в относительных единицах за месяц



электронов в спектрометре энергия линии К-32 уменьшилась еще на 0,36 эВ (см. рис. 14, период 72–75-е сутки), что свидетельствовало о недостаточно точной юстировке первоначального положения источника  $^{83}\text{Rb}$  в спектрометре. Но в итоге, вопреки всем проблемам, которые сопровождали измерения источника  $^{83}\text{Rb}$  № 28, было получено, что значение сдвига энергии конверсионной линии К-32, определенное в областях стабильного поведения (интервалы 20–30-е, 60–70-е и 75–83-е сутки), удовлетворяет требованию проекта KATRIN к стабильности в пределах  $\pm 1,5 \cdot 10^{-6}$  в течение одного месяца.

По истечении 84 сут измерений к источнику № 28 в специальный держатель в спектрометре был вставлен еще источник № 29. Держатель позволял извне (т.е. без нарушения вакуума в спектрометре) устанавливать в рабочее положение один из этих двух источников. В период со 159-х по 196-е сутки измерений спектрометр находился в стабильном состоянии, никаких проблем с вакуумом в камере спектрометра не было, а остаточное давление плавно уменьшалось с  $4 \cdot 10^{-10}$  до  $3 \cdot 10^{-10}$  мбар. Значения энергии линии К-32, полученные с источниками № 28 и 29 в этот период, приведены на рис. 15. Из линейной аппроксимации этих значений в указанный период получили скорректированные на сдвиги делителя высокого напряжения и вольтметра значения дрейфов  $\Delta$  энергии линии К-32 за месяц:  $(0,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-6}$  и  $(0,5 \pm 0,8) \cdot 10^{-6}$  для источников № 28 и 29 соответственно. Оба результата находятся в пределах требуемой для проекта KATRIN относительной нестабильности энергии реперных электронов —  $\pm 1,5 \cdot 10^{-6}$  за месяц.

В заключение можно сказать, что анализ данных, полученных в относительно стабильных условиях работы спектрометра типа МАС-Е-фильтр

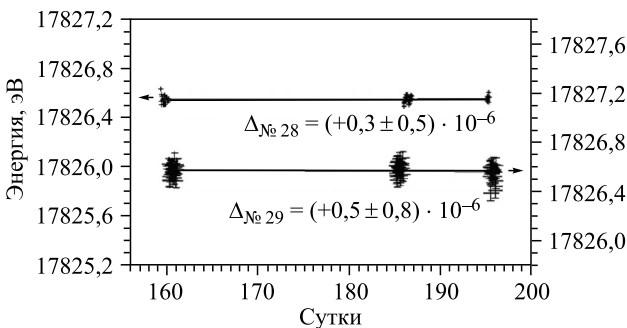


Рис. 15. Значения энергии конверсионной линии К-32, измеренные на спектрометре типа МАС-Е-фильтр в Майнце с источниками № 28 и 29 в течение 80 сут. Отмечены области с наиболее стабильной энергией с источниками  $^{83}\text{Rb}$  № 28 и 29 в период со 159-х по 196-е сутки от начала измерений с источником № 28. Линейная аппроксимация зависимости энергии от времени показана сплошными линиями со значениями дрейфа  $\Delta$  в относительных единицах за месяц

в Майнце, указывает на *принципиальную* применимость источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных методом напыления в вакууме, для мониторинга стабильности энергетической шкалы главного спектрометра проекта KATRIN с требуемой погрешностью  $\pm 60$  мэВ (т.е. с относительной погрешностью  $\pm 3 \cdot 10^{-6}$ ) в течение двух месяцев. Из исследований также следует, что для надежного мониторинга необходимо обеспечить неизменность работы выхода *мониторирующего* спектрометра (обусловленную устойчивостью уровня вакуума в камере спектрометра) в течение измерений, а также стабильность физико-химического окружения атомов  $^{83}\text{Rb}$ . Более подробное описание наших исследований в этой области можно найти в работе [59].

**2.5. Исследование влияния физико-химического окружения атомов на энергии конверсионных и оже-электронов.** Как упоминалось в начале разд. 2, энергии связи электронов в атоме не являются константами, а могут меняться под влиянием физико-химического окружения атомов в пределах нескольких электронвольт — это так называемые *химические сдвиги* энергий связи. Для мониторинга стабильности энергетической шкалы главного спектрометра проекта KATRIN принципиальным является не абсолютное значение энергии реперных электронов, а ее стабильность во времени. Тем не менее исследованию влияния физико-химического окружения атомов необходимо уделять соответствующее внимание, как показали и результаты измерений напыленных источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  на спектрометре в Майнце. Кроме того, важно обеспечить повторяемость значения энергии реперных электронов при приготовлении их источников тем же методом. Этими вопросами мы начали заниматься с самого начала разработки естественного источника реперных электронов для проекта KATRIN, имея в виду и результаты, которые мы получили в данной области в прошлом. В исследованиях (проводимых преимущественно с помощью спектрометра ESA50) часто использовались оже-электроны, так как для них изменения физико-химического окружения вызывают, как правило, заметно большие химические сдвиги, чем в случае конверсионных электронов, что очень важно для экспериментального исследования при сравнимом приборном разрешении. По этой же причине для исследований преимущественно выбирались элементы, энергии связи электронов в которых более чувствительны к изменению физико-химического окружения, чем в случае рубидия или криптона.

**2.5.1. Спектроскопия конверсионных электронов.** Применяемый метод исследования, *спектроскопия конверсионных электронов (Internal Conversion Electron Spectroscopy — ICES)* [52], имеет некоторые существенные преимущества по сравнению со стандартным методом ESCA (электронной спектроскопией для химического анализа) [60], который был развит значительно раньше, хотя принцип у обоих методов одинаковый — химический сдвиг энергий связи электронов в атомах. В частности: 1) чрезвычайно малые (обычно от  $10^{-8}$  до  $10^{-4}$  эВ) значения естественных ширин

возбуждающего гамма-излучения; 2) возможность исследования самых отдаленных валентных или глубоко лежащих остовных электронов атомной оболочки с предпочтительным угловым моментом путем выбора ядерного гамма-перехода с соответствующей энергией и мультипольностью; 3) возможность исследования физико-химического окружения атома (а также динамики его изменения) на поверхности или в объеме путем внедрения туда подходящих радиоактивных атомов (радиоизотопная маркировка); 4) очень высокая чувствительность (относительная — порядка ppm, абсолютная — порядка нанogramm); 5) в отличие от возбуждения атомов фотоэффектом в ESCA, конверсионные и оже-электроны эмитируются только атомами выбранного радиоизотопа и т. д. В результате метод ICES является достойным конкурентом и так называемой высокоэнергетической фотоэлектронной спектроскопии, или (как часто называется) «жесткой рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии», обеспечивающей одновременный доступ к глубоким остовным уровням и валентной зоне. Эти и ранее описанные характеристики открывают возможность для применения метода ICES и в других областях исследований, например, свойств интерфейсов многослойных систем и некоторых явлений, таких как диффузия и реакции в самих интерфейсах (см., например, [61]).

Метод ICES начал интенсивно развиваться в ЛЯП ОИЯИ более 30 лет назад в том числе благодаря созданным в этой лаборатории условиям для развития ядерной гамма- и бета-спектроскопии после запуска первого ускорителя (синхроциклотрона) ОИЯИ в 1949 г. Уникальная конструкционная деталь позволяет облучать мишени разного типа и на внутреннем пучке ускорителя, тем самым существенно повышая эффективность облучения. Необходимость химической обработки облученной мишени, выделения нужных элементов из нее и приготовления радиоактивных источников для измерений стала причиной развития радиохимии в ЛЯП ОИЯИ, которая вышла на мировой уровень, где она держится по сегодняшний день. Для разделения радиоизотопов конкретного химического элемента используется уникальный масс-сепаратор, работающий в режимах «онлайн» и «офлайн».

Кроме «классических» методов приготовления источников для ICES, таких как электролиз и имплантация ионов радиоизотопов (после их масс-сепарации) в подложки из разных материалов, нами были разработаны и другие методы, в частности поверхностная сорбция как на подложках из материалов с подходящими свойствами (например, поликристаллические углеродные фольги), так и на монослойных пленках Ленгмюра–Блоджетта [62], а также метод термического напыления в вакууме.

Для последнего метода используется серийная аппаратура, приспособленная для работы с радиоактивными веществами. Стандартная процедура напыления источника начинается, как уже упоминалось выше, с измерения температурной зависимости улечивания нанесенного на испарительную лодочку

изучаемого радиоизотопа. До нанесения радиоактивности для приготовления источника лодочка обычно отжигается в вакууме при температуре свыше  $1000^{\circ}\text{C}$  в течение нескольких минут. Целью отжига является очистка лодочки от поверхностных загрязнений, а также снижение доли испарения материала самой лодочки (что всегда имеет место при напылении источника) и тем самым уменьшение толщины напыленного слоя. После установки лодочки с нанесенной на нее активностью и достижения необходимого уровня вакуума начинается предварительный прогрев лодочки при температуре ниже температуры улетучивания нанесенной активности (определенной из ранее проведенного измерения температурной зависимости улетучивания) в течение нескольких минут для удаления возможных летучих соединений из нанесенной активности (попавших в нее во время предшествующих химических процедур). При этом подложка источника отведена в сторону и защищена от прямого попадания на нее испаряемого материала экраном. После очистки подложка источника перемещается в положение над испарительной лодочкой и температура повышается до значения улетучивания активности (или более высокой для сокращения времени испарения). Площадь источника определяется маской с круглым отверстием диаметром 8 мм (оптимальный диаметр источника электронов с точки зрения электронно-оптических требований спектрометра ESA50), плотно прилегающей к поверхности подложки. В то же время подложка с маской вращаются вокруг общей оси со скоростью около 3000 оборотов/мин для улучшения однородности напыленного слоя. Как правило, расстояние между лодочкой и подложкой источника составляет несколько миллиметров. В большинстве случаев видимого эффекта на поверхности подложки источника после напыления не наблюдается.

Обработка дискретных электронных спектров, измеренных с твердотельными радиоактивными источниками, сильно осложнена присутствием в них так называемых «сателлитных» линий, вызванных разными процессами. Из них доминирующим является неупругое рассеяние электронов в материале источника, в результате которого на низкоэнергетическом склоне основных линий появляется широкий «пик характеристических потерь» (см. начало п. 2.2 и рис. 7). Трудности с его достаточно точным описанием приводят к применению различных аппроксимаций при обработке аппаратурных спектров. В наших работах применяли три разных подхода, которые были заложены в соответствующих компьютерных программах, а именно ERIKA [63], BRUNDIBAR [64] и SOFIE [65].

*Программа ERIKA.* Программа ERIKA [63] была первоначально разработана для обработки спектров конверсионных электронов. Форма отдельной линии спектра описывается с помощью асимметричной гаусподобной функции [66], зависящей от нескольких параметров, из которых положение, амплитуда и ширина (FWHM) каждой из линий спектра являются независимо

фитируемыми параметрами, как и пять параметров формы линии (общих для всех линий обрабатываемого спектра). Фон, который может быть представлен и многопараметрической функцией, также является параметром подгонки. Оптимальные значения фитируемых параметров определяются минимизацией функции хи-квадрат с применением симплексного метода минимизации. Максимальное количество фитируемых параметров — 30, а точек в спектре — 150. Эту программу можно успешно применять в случае электронных спектров простой структуры. При обработке более сложных спектров (в особенности неразрешенных или плохо разрешенных мультиплетов), а также в случае заметной деформации спектральных линий в результате неупругого рассеяния электронов в материале самого источника возникают трудности. Применяемая аналитическая функция не способна достаточно точно описать сложную структуру электронных линий на их низкоэнергетическом склоне в области пика дискретных потерь.

*Программа BRUNDIBAR.* Как упоминалось в начале п. 2.2, энергетическое распределение электронов, покидающих атом, можно выразить с помощью лоренциана. Но структура спектра неупруго рассеянных электронов очень сложная, зависит от многих факторов, и пока не удастся рассчитать ее с достаточной точностью. Ситуация с неопределенностью формы аппаратурного спектра усугубляется еще и влиянием самого спектрометра и детектора электронов. С уменьшением энергии электронов влияние перечисленных эффектов системы источник–спектрометр на спектр измеряемых электронов усиливается. Но, с другой стороны, все эти неопределенности можно включить в так называемую *функцию отклика спектрометра* на моноэнергетические электроны (или «приборную форму линии» — ПФЛ) и извлечь ее из соответствующей, самой узкой линии измеренного спектра. Это единственный способ получения *самой точной* информации о форме функции отклика. (Разумеется, чем точнее известна функция отклика, тем более надежные результаты получаются из обработки.) Аппаратурная форма спектральной линии в таком случае представляет собой свертку функции отклика спектрометра и лоренциана определенной ширины (равной разности естественных ширин конкретной линии измеренного спектра и той, которая была принята в качестве функции отклика). Описанный подход заложен в программе BRUNDIBAR [64]. Поскольку аппроксимировать функцию отклика аналитической функцией практически невозможно, программа принимает ее в табличной форме. Фитируемыми параметрами являются положение и высота отдельных линий спектра, а также фон. Естественные ширины (т.е. вышеупомянутые разности), которые берутся, как правило, из базы данных, являются фиксированными при минимизации, но их значения можно изменить в любой момент обработки. Функция отклика в процессе обработки не меняется, так как она содержит в себе «условия эксперимента».

*Программа SOFIE.* Очень часто невозможно построить ПФЛ из-за отсутствия достаточно узких и изолированных линий в измеренном спектре. Именно для таких случаев предназначена программа SOFIE [65]. Она представляет форму отдельной линии спектра в виде свертки функции Лоренца (описывающей естественное энергетическое распределение электронов, покидающих атомы) с искусственно созданной функцией, основанной на гауссиане (функции отклика спектрометра на моноэнергетические электроны). Эта вторая функция также позволяет учесть деформирование линии спектра на его низкоэнергетическом склоне, вызванное неупругим рассеянием исследуемых электронов в материале источника. Поиск адекватной формы этого искажения проводится с помощью многократной подгонки в области энергетических потерь для всех исследуемых линий спектра в заданных пределах с применением процедуры Монте-Карло. Начальное приближение формируется вручную на основе соответствующих компонентов обрабатываемого спектра. Параметрами подгонки являются положение, высота и ширина (пика без потерь) каждой линии спектра, линейный фон и ширина функции отклика спектрометра (эквивалент его разрешения).

Далее приведем некоторые результаты наших исследований влияния физико-химического окружения на энергии конверсионных [67–70] и оже-электронов [71–73].

**2.5.2. Спектр конверсионных электронов перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  из распада  $^{149}\text{Eu}$  — роль лиганда [67].** Из фотоэлектронной спектроскопии известно (см., например, [74]), что химические сдвиги энергий связи электронов зависят не только от степени окисления атома, но и от электроотрицательности его ближайших соседей (*лигандов*). Атомы с одинаковой степенью окисления, окруженные лигандами различной электроотрицательности, могут проявлять разные химические сдвиги.

Мы решили провести экспериментальное исследование влияния этого эффекта на спектр конверсионных электронов ядерного перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  (дочернее ядро), возникающем в распаде (электронным захватом)  $^{149}\text{Eu}$  (материнское ядро). Для исследования были выбраны два различных лигандных комплекса, в частности  $^{149}\text{Eu}_2\text{O}_3$  и  $^{149}\text{EuF}_3$ , в которых ионы Eu имеют одинаковую степень окисления +3.

Необходимо напомнить, что захват электрона в  $^{149}\text{Eu}$  сопровождается чрезвычайно быстрой реорганизацией исходных электронных орбиталей атома Eu на орбитали атома Sm. После захвата ядро  $^{149}\text{Sm}$  в 64 % случаев распада остается в первом возбужденном состоянии с энергией 22,5 кэВ и периодом полураспада 7,12 нс. Разрядка этого состояния осуществляется либо испусканием  $\gamma$ -кванта, либо путем внутренней конверсии гамма-излучения. Так как элементы Eu и Sm являются лантаноидами с очень похожими химическими свойствами, после распада материнского атома  $^{149}\text{Eu}$  в подложках  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  или  $\text{EuF}_3$  дочерний атом  $^{149}\text{Sm}$  будет находиться в состоянии,

очень близком к состоянию атома Sm в подложках  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  или  $\text{SmF}_3$  соответственно.

Изотопы  $^{145-149}\text{Eu}$  получали облучением мишени из природного эрбия протонами с энергией 500 МэВ на синхротронном циклотроне (фазотроне) ОИЯИ (Дубна). Европий из облученной мишени выделяли с помощью катионообменной хроматографии. Источник  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  для измерений электронных спектров был приготовлен методом напыления в вакууме на поликристаллическую углеродную фольгу, а источник  $\text{EuF}_3$  — методом хемосорбции также на поликристаллическую углеродную фольгу. Подробности химического выделения фракции европия из облученной мишени, как и приготовление источников, описываются в работе [67].

Спектры конверсионных электронов измерялись на спектрометре ESA50 при приборном разрешении 7, 11 и 14 эВ в зависимости от цели конкретного измерения. В измеренных спектрах было разрешено в общей сложности 11 конверсионных линий (рис. 16), а именно  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ,  $M_1$ ,  $M_2$ ,  $M_3$ ,  $N_1$ ,  $N_3$ ,  $O_1$ ,  $O_{2,3}$  и  $P_1$ . Стабильность энергетической шкалы спектрометра проверяли с помощью К-линии конверсионных электронов перехода 14,4 кэВ в  $^{57}\text{Fe}$ , измеряемой до и после измерения каждого конверсионного спектра.

Исследования показали, что энергии изучаемых конверсионных линий  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ,  $M_1$ ,  $M_2$ ,  $M_3$ ,  $N_1$ ,  $N_3$ ,  $O_1$ ,  $O_{2,3}$  и  $P_1$ , измеренные с источником  $^{149}\text{EuF}_3$ , меньше на 1,7(1), 1,7(1), 1,8(1), 2,8(2), 2,6(2), 2,7(2), 2,3(2), 2,3(3),

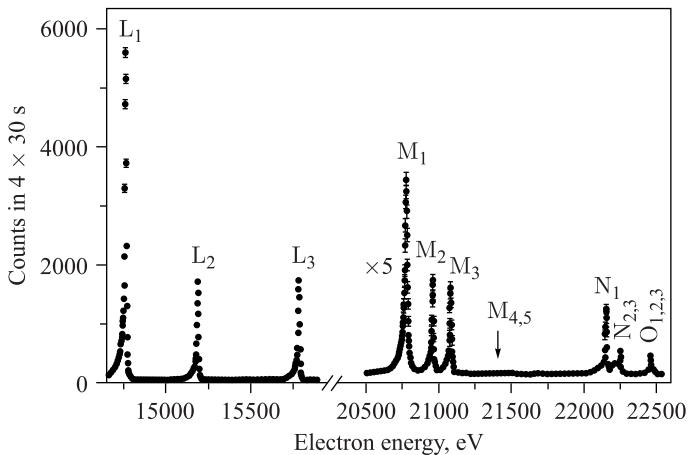


Рис. 16. Полный спектр конверсионных электронов ядерного перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$ , измеренный [67] с источником  $^{149}\text{Eu}_2\text{O}_3$  при приборном разрешении 7 эВ и шагом 2 эВ в четырех развертках с экспозицией 30 с в точке спектра в каждой из разверток

3,9(2), 4,2(2) и 5,7(9) эВ соответственно, чем в случае источника  $^{149}\text{Eu}_2\text{O}_3$ . При этом никаких различий (в пределах экспериментальных погрешностей) для относительных интенсивностей конверсионных линий и их естественных ширин между исследуемыми двумя лигандными комплексами не наблюдали.

В исследованиях намеренно использовали Sm/Eu — редкоземельные элементы из-за их уникальных свойств (в том числе и больших химических сдвигов, которыми мы и воспользовались), вытекающих из необычных свойств атомной оболочки  $4f$ . Это, конечно, не случай  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  источников. Тем не менее полученные результаты указывают на серьезную проблему источников в форме поверхностных слоев (приготовленных любым способом). В результате физико-химических процессов, проходящих в поверхностных слоях под влиянием атмосферы, остаточных газов в вакуумной камере (меняющих свой состав в течение измерения — улучшение/ухудшение вакуума в камере спектрометра) и т. п., безусловно, происходит изменение химического окружения исследуемых атомов (в разной степени), что приводит к нестабильности энергии излучаемых электронов во времени. Более того, как показали, например, исследования [75] радиоактивных источников  $^{57}\text{Co}$  (приготовленных методом испарения в вакууме) с помощью фотоэлектронной спектроскопии, в таких источниках находится очень много примесей, добавленных в них в процессе приготовления, которые могут оказать также существенное воздействие на стабильность энергии изучаемых электронов.

**2.5.3. Спектр конверсионных электронов переходов 9,4 и 32 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$  в двух разных подложках [68].** Также были проведены исследования влияния типа подложки источника на энергии конверсионных линий  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ,  $M_1$ ,  $M_2$  и  $M_3$  перехода 9,4 кэВ в  $^{83}\text{Kr}$ , как и на реперные электроны K-32. Для этого использовались источник  $^{83}\text{Sr}$  (материнский изотоп  $^{83}\text{Rb}$ , см. рис. 6), приготовленный имплантацией ионов  $^{83}\text{Sr}$  в поликристаллическую платиновую фольгу высокой чистоты при энергии 30 кэВ, и источник  $^{83}\text{Rb}$ , полученный испарением в вакууме на фольгу того же типа. Радиоактивные изотопы стронция и рубидия были получены в реакциях глубокого расщепления при облучении металлического иттрия протонами с энергией 300 МэВ на внутреннем пучке синхроциклотрона (фазотрона) ОИЯИ (Дубна). Процедура обработки облученной мишени, выделение фракции стронция и рубидия, а также приготовление источников  $^{83}\text{Sr}$  и  $^{83}\text{Rb}$  подробно излагаются в работе [68]. Измерения спектров электронов, сопровождающих распад этих двух изотопов, проводили с помощью спектрометра ESA50. Примеры измеренных спектров показаны на рис. 17 и 18.

Как продемонстрировано на примере конверсионной линии K-32 (см. рис. 18), пики дискретных потерь энергий конверсионных электронов (DEL) в случае источника  $^{83}\text{Rb}$ , приготовленного испарением в вакууме, бо-



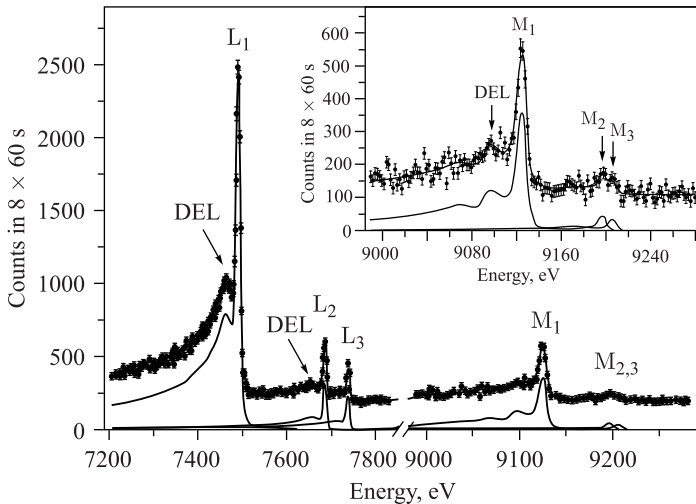


Рис. 17. Спектр конверсионных электронов L и M подболочек ядерного гамма-перехода с энергией 9,4 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$ , испускаемых в цепочке распада  $^{83}\text{Sr}$  (см. рис. 6). Источник  $^{83}\text{Sr}$  был получен ионной имплантацией в поликристаллическую Pt-фольгу высокой чистоты при энергии 30 кэВ. Спектр был измерен [68] после истечения 12 периодов полураспада  $^{83}\text{Sr}$  от приготовления источника при приборном разрешении 7 эВ, с шагом 2 эВ в 8 развертках с экспозицией 60 с в каждой точке спектра. Пики дискретных потерь энергии (см. п. 2.2) обозначены DEL. На вставке показана группа конверсионных линий  $M_{1-3,9,4}$  в увеличенном масштабе. Сплошные линии — результаты обработки спектра

лее интенсивные, чем для источника  $^{83}\text{Sr}$ , полученного ионной имплантацией. Но, с другой стороны, низкоэнергетические хвосты спектральных линий снижаются заметно медленнее к уровню фона для имплантированного источника, что вызвано нежелательным многократным рассеянием исследуемых электронов в Pt-фольге (из-за большого атомного номера Pt).

Полученные результаты показали, что энергии связи электронов в криптоне для изучаемых подболочек в случае имплантированного источника на 0,7(1) эВ больше, чем для напыленного слоя, а в сравнении с опубликованными данными [76] для газообразного криптона они ниже в среднем на 10,6(6) эВ для подболочек K,  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$  и на 12,1(7) эВ для  $M_1$ ,  $M_2$  и  $M_3$ . Из измеренных спектров KLL оже-электронов криптона было выявлено, что энергия доминирующего перехода  $KL_2L_3(^1D_2)$  на 1,0(2) эВ выше для напыленного источника  $^{83}\text{Rb}$ , чем для имплантированного, что находится в хорошем согласии со значением +0,8(2) эВ, полученным в работе [72] для разности энергии оже-перехода  $KL_2L_3(^1D_2)$  в рубидии между напыленным

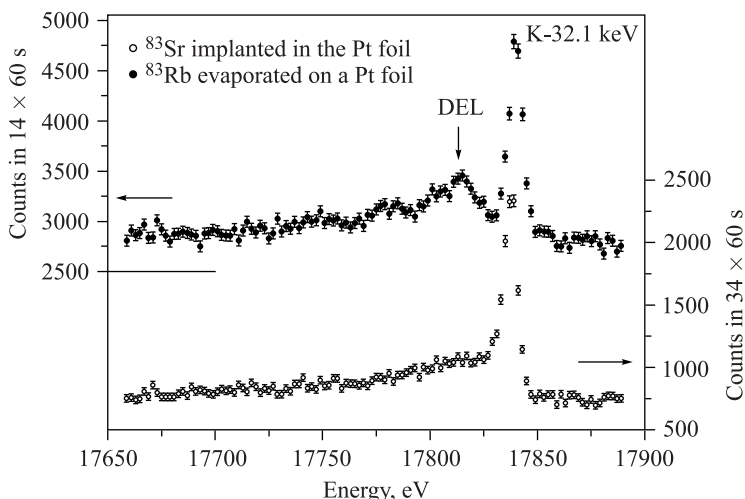


Рис. 18. Пример спектра К-конверсионных электронов ядерного перехода 32 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$  (К-32), измеренного [68] при приборном разрешении 7 эВ с шагом 2 эВ в 14 развертках с экспозицией 60 с в каждой точке спектра и развертке. Используемые источники  $^{83}\text{Rb}$  были получены испарением в вакууме на Pt-фольгу (темные кружки) и имплантацией ионов  $^{83}\text{Sr}$  с энергией 30 кэВ в одинаковые подложки (светлые кружки). Пик дискретных потерь (см. п. 2.2) обозначен DEL (верхний спектр)

и имплантированным источниками с использованием платиновой подложки с одинаковыми свойствами.

**2.5.4. Спектр конверсионных электронов переходов 63,1, 20,7 и 8,4 кэВ в  $^{169}\text{Tm}$  из распада  $^{169}\text{Yb}$  — широкий набор подложек [69].** Для исследования влияния более широкого набора подложек источников на энергии связи электронов в атоме был выбран редкоземельный элемент, а именно радиоизотоп тулия  $^{169}\text{Tm}$  (возникающий в электронном захвате  $^{169}\text{Yb}$  ( $T_{1/2} = 32,0$  сут)), поскольку (как уже упоминалось выше) редкоземельные элементы более чувствительны к изменению физико-химического окружения атомов, а также благодаря свойствам  $4f$ -электронов, что очень важно для проведения надежных измерений при приборном разрешении несколько эВ. Материнский изотоп  $^{169}\text{Yb}$  внедряли в пять различных подложек. Три из исследованных источников  $^{169}\text{Yb}$  были приготовлены напылением в вакууме на поликристаллическую углеродную фольгу (чистота 99,9%), поликристаллическую платиновую фольгу (чистота 99,95%) и окисленную естественным путем алюминиевую фольгу. Оставшиеся два источника  $^{169}\text{Yb}$  были получены ионной имплантацией в платиновую и алюминиевую фольги при энергии 30 кэВ.

Изотоп  $^{169}\text{Yb}$  получали в реакциях глубокого расщепления при облучении металлического тантала протонами с энергией 660 МэВ на внутрен-

нем пучке синхроциклотрона ОИЯИ (Дубна). После «охлаждения» в течение 30 сут была проведена химическая обработка облученной мишени, в результате которой получили фракцию иттербия, состоящую из нескольких капель 0,07 М альфа-НВ. В дальнейшем фракцию использовали для приготовления источников  $^{169}\text{Yb}$  двумя вышеупомянутыми методами. Подробности выделения фракции иттербия из облученной мишени, как и приготовления исследуемых источников, приводятся в работе [69].

Следует отметить, что точное химическое состояние *следовых* количеств (несколько нанogramм) иттербия в напыленных слоях неизвестно (слишком малые количества для надежного анализа с помощью стандартных методов, например, фотоэлектронной спектроскопии (XPS)). Скорее всего, это было соединение  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  или другие химические формы, такие как  $\text{Yb}(\text{HCO}_3)_3$ ,  $\text{Yb}_2(\text{CO}_3)_3$  и  $\text{Yb}(\text{OH})_3$ . Однако при перемещении напыленных источников в спектрометр ионы  $\text{Yb}$  были связаны с атомами атмосферного кислорода во всех возможных формах (оксиды, гидроксиды, карбонаты, гидрокарбонаты и т.д.), но имели степень окисления +3. Поскольку  $\text{Yb}$  и  $\text{Tm}$  являются лантаноидами со схожими химическими свойствами, то после распада из электронного захвата  $^{169}\text{Yb}$  дочерние атомы  $^{169}\text{Tm}$  были стабилизированы в вышеуказанных подложках  $^{169}\text{Yb}$  и имели также степень окисления +3.

Химическое состояние  $^{169}\text{Yb}$  в имплантированных источниках также не является однозначным. Для оценки распределения по глубине ионов  $^{169}\text{Yb}$ , имплантированных в подложки из алюминия и платины, были выполнены численные расчеты с помощью программы SRIM [77]. При моделировании предполагалось, что на поверхности подложек имеется контаминационный слой ( $\sim 3$  нм), состоящий из соединений углерода, кислорода и водорода в разных химических формах. Согласно результатам моделирования, средний пробег ионов  $^{169}\text{Yb}$  с энергией 30 кэВ в алюминии и платине составил 4 и 17 нм соответственно (без учета толщины контаминационного слоя). Около 3 % ионов задерживается в контаминационном слое. По аналогии с напыленными слоями можно предположить, что ионы  $^{169}\text{Yb}$  в этом слое образуют всевозможные соединения с присутствующими там элементами.

Исследования были проведены с помощью конверсионных линий низкоэнергетических ядерных переходов в  $^{169}\text{Tm}$  (в скобках приведены изучаемые атомные подболочки тулия): 63,1 кэВ (К), 20,7 кэВ ( $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ) и 8,4 кэВ ( $M_1$ ,  $M_2$ ,  $N_1$ ,  $N_2$ ,  $N_3$ ,  $O_1$ ,  $O_2$ ,  $O_3$ ,  $P_1$ ). Измерения проводились на спектрометре ESA50. В качестве примера на рис. 19 приведены спектры конверсионных электронов атомных подболочек  $O_1$ ,  $O_2$ ,  $O_3$  и ( $N_{6,7} + P_1$ ) ядерного перехода 8,4 кэВ в  $^{169}\text{Tm}$ , измеренные со всеми исследуемыми источниками  $^{169}\text{Yb}$ .

Из относительных положений измеренных конверсионных линий на шкале тормозящего напряжения (см. п. 2.2.1) для разных подложек были определены с высокой точностью (более высокой, чем та, которую можно было бы достигнуть с использованием абсолютных энергий изучаемых линий) раз-

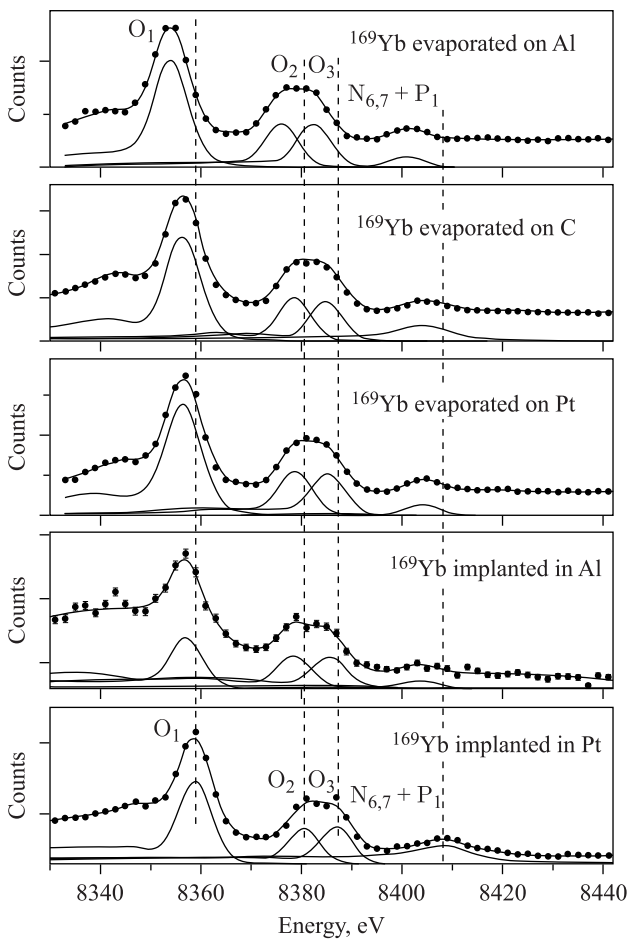


Рис. 19. Спектры конверсионных электронов атомных подболошек  $O_1$ ,  $O_2$ ,  $O_3$  и  $(N_{6,7} + P_1)$  ядерного перехода  $M1 + E2$  с энергией 8,4 кэВ в  $^{169}\text{Tm}$ , измеренные [69] со всеми исследуемыми источниками  $^{169}\text{Yb}$  (как приводится на рисунке) на спектрометре ESA50. Сплошные линии — результаты обработки спектров. Четко видны энергетические сдвиги конверсионных линий между разными подложками источников

ности их энергий, т. е. изменения соответствующих энергий связи электронов в Tm. Согласно результатам экспериментов (табл. 1 и 2), энергии связи электронов в тулии одинаковы (в пределах погрешностей измерений) для источников  $^{169}\text{Yb}$ , изготовленных вакуумным напылением на поверхность платиновой ( $\text{Pt}_{\text{evap}}$ ), углеродной ( $\text{C}_{\text{evap}}$ ) подложек и имплантацией в алюминиевую ( $\text{Al}_{\text{impl}}$ ) подложку. Наибольший сдвиг энергий связи (в среднем

Таблица 1. Сдвиги энергий связи электронов (эВ) в тулии, измеренные с источниками  $^{169}\text{Yb}$ , изготовленными испарением в вакууме на поверхность и имплантацией в подложки из алюминия и платины, относительно энергий связи, измеренных с источником, изготовленным испарением на поликристаллический углерод ( $C_{\text{evap}}$ ). Имплантация ионов  $^{169}\text{Yb}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подоболочка	$Al_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	$Pt_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	$Al_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	$Pt_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$
L <sub>1</sub>	+ 2,8(2)	+ 0,2(2)	+ 0,4(2)	- 1,4(2)
L <sub>2</sub>	+ 3,2(2)	+ 0,5(2)	+ 0,5(3)	- 1,4(2)
L <sub>3</sub>	+ 3,1(5)	- 0,3(2)	- 0,1(4)	- 1,9(3)
M <sub>1</sub>	+ 2,6(2)	+ 0,6(2)	+ 0,2(3)	- 1,6(2)
M <sub>2</sub>	+ 2,9(2)	+ 0,3(2)	+ 0,4(4)	- 1,7(2)
N <sub>1</sub>	+ 2,5(2)	+ 0,1(2)	- 0,9(2)	- 2,4(2)
N <sub>3</sub>	+ 2,5(2)	- 0,1(2)	+ 0,3(2)	- 1,8(2)
O <sub>1</sub>	+ 2,4(2)	- 0,2(2)	- 0,4(2)	- 2,4(2)
O <sub>2</sub>	+ 2,6(2)	- 0,1(3)	+ 0,2(3)	- 1,8(2)
O <sub>3</sub>	+ 2,6(2)	- 0,1(3)	- 0,4(3)	- 1,9(2)
P <sub>1</sub>	+ 3,1(4)	+ 0,3(4)	+ 0,7(9)	- 3,9(4)
<b>w. m. *</b>	<b>+ 2,7(1)</b>	<b>+ 0,1(1)</b>	<b>0,0(1)</b>	<b>- 1,8(1)</b>

\* w. m. — средневзвешенное значение (без подоболочки P<sub>1</sub>).

Таблица 2. Сдвиги энергий связи электронов (эВ) в тулии, измеренные между разными парами источников  $^{169}\text{Yb}$ , изготовленных испарением в вакууме на поверхность и имплантацией в подложки из алюминия и платины. Имплантация ионов  $^{169}\text{Yb}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подоболочка	$Al_{\text{impl}} - Al_{\text{evap}}$	$Pt_{\text{impl}} - Pt_{\text{evap}}$	$Pt_{\text{impl}} - Al_{\text{impl}}$	$Al_{\text{evap}} - Pt_{\text{impl}}$
L <sub>1</sub>	- 2,8(2)	- 1,5(2)	- 1,8(2)	+ 4,2(2)
L <sub>2</sub>	- 2,7(3)	- 1,9(2)	- 1,9(3)	+ 4,6(2)
L <sub>3</sub>	- 3,2(3)	- 1,6(3)	- 1,8(4)	+ 5,0(4)
M <sub>1</sub>	- 2,4(3)	- 2,0(2)	- 1,7(3)	+ 4,3(2)
M <sub>2</sub>	- 2,5(4)	- 2,0(2)	- 2,1(4)	+ 4,6(2)
N <sub>1</sub>	- 3,4(2)	- 2,4(2)	- 1,4(2)	+ 4,8(2)
N <sub>3</sub>	- 2,3(2)	- 1,7(2)	- 2,1(3)	+ 4,3(2)
O <sub>1</sub>	- 2,7(2)	- 2,2(2)	- 1,8(2)	+ 4,8(2)
O <sub>2</sub>	- 2,4(4)	- 1,7(4)	- 2,0(4)	+ 4,4(3)
O <sub>3</sub>	- 3,0(4)	- 1,8(4)	- 1,5(4)	+ 4,5(3)
P <sub>1</sub>	- 2,4(8)	- 4,2(5)	- 4,6(8)	+ 7,0(5)
<b>w. m. *</b>	<b>- 2,8(1)</b>	<b>- 1,9(1)</b>	<b>- 1,8(1)</b>	<b>+ 4,5(1)</b>

\* w. m. — средневзвешенное значение (без подоболочки P<sub>1</sub>).

на 4,5(1) эВ) наблюдается между измерениями с источником  $^{169}\text{Yb}$ , напыленным на поверхность алюминия ( $\text{Al}_{\text{evap}}$ ) и имплантированным в платину ( $\text{Pt}_{\text{impl}}$ ). Средние значения сдвигов энергий связи тулия при изменении состояния («поверхность–объем») атомов  $^{169}\text{Yb}$  в однотипных подложках составили в среднем 2,8(1) и 1,9(1) эВ для платины и алюминия соответственно.

Следует отметить, что в работе [78] были исследованы энергетические сдвиги линий конверсионных электронов ядерного перехода 14,4 кэВ в  $^{57}\text{Fe}$  (из распада  $^{57}\text{Co}$ ) с использованием источников  $^{57}\text{Co}$ , приготовленных напылением в вакууме на фольги из поликристаллического углерода, поликристаллической платины высокой чистоты и окисленного естественным путем поликристаллического алюминия. Было установлено, что для Fe в напыленном слое на алюминиевой подложке энергии связи электронов были выше на 2,4(3) эВ, чем на углеродной, а на платиновой на 0,6(2) эВ ниже. Как видно из сравнения, эти сдвиги хорошо согласуются с нашими результатами, полученными для  $^{169}\text{Tm}$  в соответствующих подложках. Более того, сдвиг 6,7(4) эВ энергии оже-линии  $\text{KL}_2\text{L}_3$  ( $^1D_2$ ) железа между двумя различными химическими состояниями железа, характеризующимися степенью окисления +2 и +3, был измерен в работе [79].

**2.5.5. Спектр конверсионных электронов перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  из распада  $^{149}\text{Eu}$  — сравнение напыленных и имплантированных источников [70].** В работе [70] изучалось влияние физико-химического окружения атомов на энергии связи электронов в самарии на подболочках  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ,  $M_1$ ,  $M_2$ ,  $M_3$  и  $N_1$ . Исследования проводились с помощью спектра конверсионных электронов ядерного перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  (возникающем из электронного захвата  $^{149}\text{Eu}$ ), измеряемого на спектрометре ESA50. Применяли четыре пары источников  $^{149}\text{Eu}$ . В каждой паре один из источников был приготовлен напылением в вакууме, а другой — ионной имплантацией при 30 кэВ с использованием подложек одинакового типа, в частности: поликристаллической углеродной фольги (толщина 150 мкм, чистота 99,9%), стандартной промышленной поликристаллической алюминиевой фольги толщиной 200 мкм, стандартной поликристаллической гадолиниевой фольги толщиной 100 мкм, поликристаллической платиновой фольги высокой чистоты (толщина 50 мкм, чистота 99,95%).

Как и в случае  $^{169}\text{Yb}$  (п. 2.5.4), радиоактивный изотоп  $^{149}\text{Eu}$  был получен в реакциях глубокого расщепления при облучении металлического тантала на внутреннем пучке синхротронного ускорителя ОИЯИ (Дубна) протонами с энергией 660 МэВ. После «охлаждения» в течение 10 сут проводилась сложная химическая обработка [70] облученной мишени. В результате получили фракцию европия (состоящую из нескольких капель 0,16 М альфа-NiВ), которую затем использовали для приготовления источников  $^{149}\text{Eu}$ . Кроме того, изотоп  $^{149}\text{Eu}$  был получен путем химического разделения фракций гадолиния и

европия, проведенного через 100 сут после облучения танталовой мишени. В течение этого периода  $^{149}\text{Eu}$  накапливался из электронного захвата  $^{149}\text{Gd}$  ( $T_{1/2} = 9,28$  сут). Полученная фракция использовалась для напыления источников  $^{149}\text{Eu}$  на C- и Gd-подложки.

С помощью компьютерной программы SRIM [77] провели моделирование имплантации, чтобы получить информацию о распределении имплантированных ионов  $^{149}\text{Eu}$  по глубине. В моделировании были учтены реальные условия имплантаций. Поверхностный слой загрязнения был аппроксимирован слоем углерода толщиной 3 нм. В случае алюминиевой фольги провели моделирование как для металлического алюминия, так и для композита, состоящего из оксида алюминия толщиной 4 нм (слой, который образуется на поверхности металлического алюминия, подверженной воздействию воздуха) и «бесконечного» слоя металлического алюминия. Для гадолиниевой фольги моделирование проводилось как для металлического гадолиния, так и для оксида гадолиния ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ), потому что используемая фольга явно была сильно окислена. Часть результатов моделирования показана на рис. 20 (следует отметить, что значения глубины на оси  $x$ , являющейся нормалью к поверхности фольги, включают в себя также толщину 3 нм поверхностного слоя «загрязнений»). Средний пробег ионов  $^{149}\text{Eu}$  в поликристаллической углеродной фольге, металлическом алюминии и композите металлического алюминия с поверхностным слоем  $\text{Al}_2\text{O}_3$  толщиной 4 нм составлял 19,2, 18,9 и 16,9 нм (включая слой 3 нм поверхностного «загрязнения») соответственно. Как видно, слой  $\text{Al}_2\text{O}_3$  толщиной 4 нм уменьшил средний пробег ионов в композите до 16,9 нм. Для Pt,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  и Gd расчетный средний пробег ионов  $^{149}\text{Eu}$  был существенно меньшим, а именно 7,1, 12,5 и 13,1 нм (включая также слой поверхностного «загрязнения» толщиной 3 нм) соответственно. В последних трех случаях часть ионов  $^{149}\text{Eu}$  (несколько процентов) была обнаружена в слоях поверхностного «загрязнения» (см. рис. 20), представляющих собой физико-химические среды, существенно отличающиеся от среды в объеме материала фольги.

Сдвиги энергий конверсионных линий перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  между разными источниками (т. е. изменения энергий связи в самарии) определяли не из абсолютных значений энергии этих линий, а из изменения их взаимных положений на шкале тормозящего напряжения (см. п. 2.2.1), как и в случае Tm (см. п. 2.5.4). В результате сдвиги были определены с гораздо большей точностью. Полученные значения приведены в той же форме (и с теми же обозначениями), что и для тулия (см. п. 2.5.4), в табл. 3 (по отношению к энергиям связи в Sm, возникающем в напыленном слое на поликристаллической углеродной фольге), табл. 4 (по отношению к энергиям связи в Sm, генерируемом в объеме поликристаллической платины высокой чистоты) и табл. 5 (разность энергий связи в Sm между напыленными и имплантированными источниками для той же подложки).

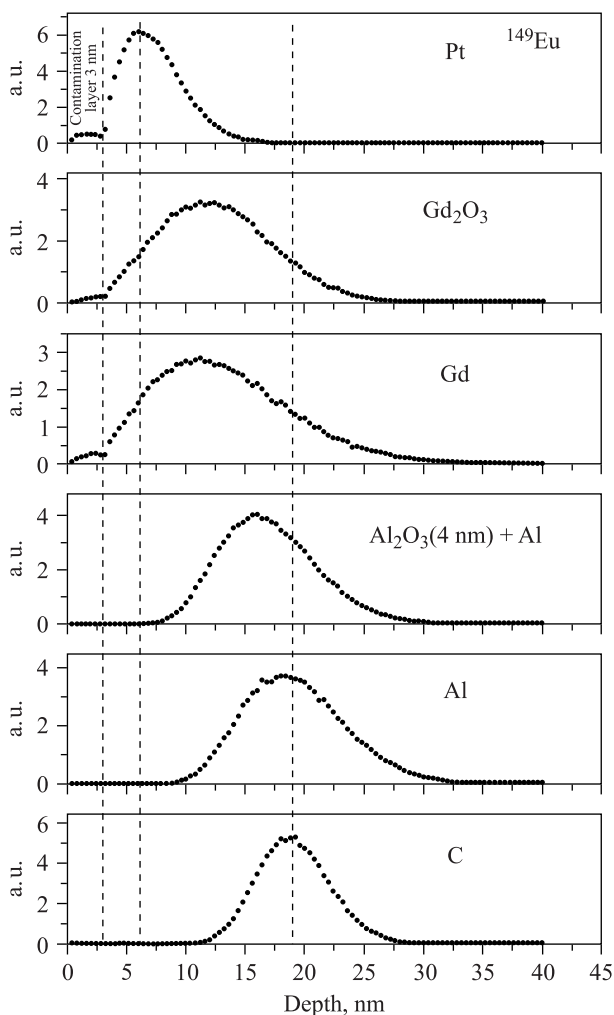


Рис. 20. Распределения по глубине ионов  $^{149}\text{Eu}$ , имплантированных при 30 кэВ в поликристаллические подложки Pt,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ , Gd, Al и C, а также в композит слоя оксида алюминия толщиной 4 нм на поликристаллической металлической алюминиевой подложке, рассчитанные с помощью программы SRIM [77]. Значения глубины на оси  $x$  включают в себя толщину слоя загрязнений, адсорбированного на поверхностях подложек, представленного в моделировании слоем углерода толщиной 3 нм (как показано первой вертикальной штриховой линией). Две другие штриховые линии проходят через максимумы распределений ионов  $^{149}\text{Eu}$  на подложках Pt и C



Таблица 3. Сдвиги энергий связи электронов (эВ) в самарии, измеренные с источниками  $^{149}\text{Eu}$ , изготовленными испарением в вакууме на поверхность и имплантацией ионов в подложки из алюминия, гадолиния и платины, относительно энергий связи, измеренных с источником, изготовленным испарением на поликристаллический углерод ( $C_{\text{evap}}$ ). Имплантация ионов  $^{149}\text{Eu}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подоболочка	$\text{Al}_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	$\text{Gd}_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	$\text{Pt}_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	$\text{C}_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	$\text{Al}_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	$\text{Gd}_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	$\text{Pt}_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$
L <sub>1</sub>	+ 2,1(1)*	+ 1,8(1)	- 0,5(1)	- 0,4(2)	+ 1,8(2)	+ 1,2(1)	- 1,1(1)
L <sub>2</sub>	+ 1,5(2)	+ 2,0(2)	- 0,7(2)	- 0,5(3)	+ 2,7(2)	+ 1,2(2)	- 0,5(2)
L <sub>3</sub>	+ 1,3(2)	+ 2,3(2)	- 0,3(2)	- 0,5(5)	+ 2,5(2)	+ 1,1(2)	- 0,7(2)
w. m.*	+ <b>1,9(2)</b>	+ <b>1,9(2)</b>	- <b>0,5(1)</b>	- <b>0,4(2)</b>	+ <b>2,3(3)</b>	+ <b>1,2(1)</b>	- <b>0,9(2)</b>
Tm [69]	+ 3,0(2)		+ 0,1(1)		+ 0,4(2)		- 1,5(1)

\* w. m. — средневзвешенное значение.

Таблица 4. Сдвиги энергий связи электронов (эВ) в самарии, измеренные с источниками  $^{149}\text{Eu}$ , изготовленными испарением в вакууме на поверхность и имплантацией ионов в подложки из алюминия и платины, относительно энергий связи, измеренных с источником, изготовленным имплантацией в платину. Имплантация ионов  $^{149}\text{Eu}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подоболочка	$C_{\text{evap}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{Al}_{\text{evap}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{Gd}_{\text{evap}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{Pt}_{\text{evap}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{C}_{\text{impl}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{Al}_{\text{impl}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$	$\text{Gd}_{\text{impl}} - \text{Pt}_{\text{impl}}$
L <sub>1</sub>	+ 1,1(1)	+ 3,2(1)	+ 2,9(1)	+ 0,6(1)	+ 0,6(2)	+ 3,1(1)	+ 2,3(1)
L <sub>2</sub>	+ 0,5(2)	+ 2,0(1)	+ 2,5(1)	- 0,1(2)	+ 0,0(3)	+ 3,3(2)	+ 1,7(1)
L <sub>3</sub>	+ 0,7(2)	+ 2,0(2)	+ 2,9(2)	+ 0,4(2)	+ 0,2(5)	+ 3,1(2)	+ 1,8(1)
M <sub>1</sub>		+ 2,4(5)		- 0,4(5)	+ 0,7(4)	+ 2,4(9)	+ 1,4(5)
w. m.*	+ <b>0,9(2)</b>	+ <b>2,5(3)</b>	+ <b>2,7(1)</b>	+ <b>0,4(2)</b>	+ <b>0,4(2)</b>	+ <b>3,1(1)</b>	+ <b>1,9(2)</b>
Tm [69]	+ 1,5(1)	+ 4,4(1)		+ 1,8(1)		+ 1,8(2)	

\* w. m. — средневзвешенное значение.

Как видно из табл. 3 и 4, для напыленных источников  $^{149}\text{Eu}$  изменение материала подложки с углерода на платину приводит к незначительному изменению энергий связи электронов в самарии (в среднем на 0,5(1) эВ). Энергии связи практически одинаковые для подложек из алюминия и гадолиния: одинаковый сдвиг (в среднем на 1,9(2) эВ) относительно референтного источника на углеродной подложке. Что касается имплантированных источников, минимальное изменение энергий связи наблюдается между подложками из углерода и платины (в среднем на 0,4(2) эВ). Изменение состояния («поверхность–объем») атомов  $^{149}\text{Eu}$  в однотипных подложках (табл. 5) при-

Таблица 5. Сдвиги энергий связи электронов (эВ) в самарии при изменении состояния («поверхность–объем») атомов  $^{149}\text{Eu}$  в однотипных подложках. Имплантация ионов  $^{149}\text{Eu}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подоболочка	$C_{\text{evap}} - C_{\text{impl}}$	$Al_{\text{evap}} - Al_{\text{impl}}$	$Gd_{\text{evap}} - Gd_{\text{impl}}$	$Pt_{\text{evap}} - Pt_{\text{impl}}$
$L_1$	+0,4(2)	+0,1(1)	+0,6(1)	+0,6(1)
$L_2$	+0,5(3)	-1,3(2)	+0,8(1)	-0,1(2)
$L_3$	+0,5(5)	-1,2(2)	+1,1(1)	+0,4(2)
$M_1$		0,0(9)		-0,4(5)
$M_2$		+1,2(5)		
$M_3$		0,0(7)		
<b>w. m.*</b>	<b>+0,4(2)</b>	<b>-0,3(3)</b>	<b>+0,8(2)</b>	<b>+0,4(2)</b>
Tm [69]		+2,8(2)		+1,8(1)

\*w. m. — средневзвешенное значение.

Таблица 6. Сравнение средневзвешенных значений сдвигов энергий связи электронов (эВ) в самарии и тулии. Имплантация ионов  $^{149}\text{Eu}$  и  $^{169}\text{Yb}$  в подложки производилась при энергии 30 кэВ

Подложки	$\Delta S_m$	$\Delta T_m$	$ \Delta T_m - \Delta S_m , \sigma$
Максимальная разность между $\Delta S_m$ и $\Delta T_m$			
$Al_{\text{evap}} - Al_{\text{impl}}$	-0,3(3)	+2,8(2)	9
$Al_{\text{evap}} - Pt_{\text{impl}}$	+2,5(3)	+4,4(1)	6
$Al_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	+2,3(3)	+0,4(2)	5
Минимальная разность между $\Delta S_m$ и $\Delta T_m$			
$Pt_{\text{impl}} - C_{\text{evap}}$	-0,9(2)	-1,5(1)	3
$Pt_{\text{evap}} - C_{\text{evap}}$	-0,5(1)	+0,1(1)	4

водит к изменению энергий связи самария в среднем на 0,5(2) эВ для всех используемых подложек. Сравнение результатов экспериментов с радиоизотопами  $^{149}\text{Eu}$  и  $^{169}\text{Yb}$  указывает на то, что изменение материала подложки и состояния радиоизотопов в них оказывают существенно разное влияние на энергии связи дочерних самария и тулия (табл. 6).

**2.5.6. Спектры оже-электронов  $^{54}\text{Cr}$  ( $KL_{2,3}L_{2,3}$ ) и  $^{85}\text{Rb}$  ( $KLL, KLM$ ).  $KL_{2,3}L_{2,3}$  оже-переходы в  $^{54}\text{Cr}$  из распада  $^{54}\text{Mn}$  [71].** Влияние степени окисления материнского радиоизотопа  $^{54}\text{Mn}$  на энергии доминирующей группы оже-линий  $KL_{2,3}L_{2,3}$  дочернего изотопа  $^{54}\text{Cr}$  исследовалось в работе [71]. Изменение химического состояния атомов  $^{54}\text{Mn}$  проводилось путем намеренного отжига на воздухе при температуре 100, 200 и 300 °С в течение 30 мин источника  $^{54}\text{Mn}$ , приготовленного вакуумным испарением на платиновую фольгу. Радиоактивный изотоп  $^{54}\text{Mn}$  был получен облучением природной меди на внутреннем пучке синхротрона ОИЯИ (Дубна) протонами

с энергией 650 МэВ. Способ выделения марганца из облученной мишени, ее отделение от лантана и других радиоактивных примесей, как и процесс приготовления источника  $^{54}\text{Mn}$ , подробно описываются в работе [71]. Спектры оже-электронов измеряли при приборном разрешении 4,5 эВ на спектрометре ESA50. Сложность поставленной задачи демонстрируется на рис. 21,

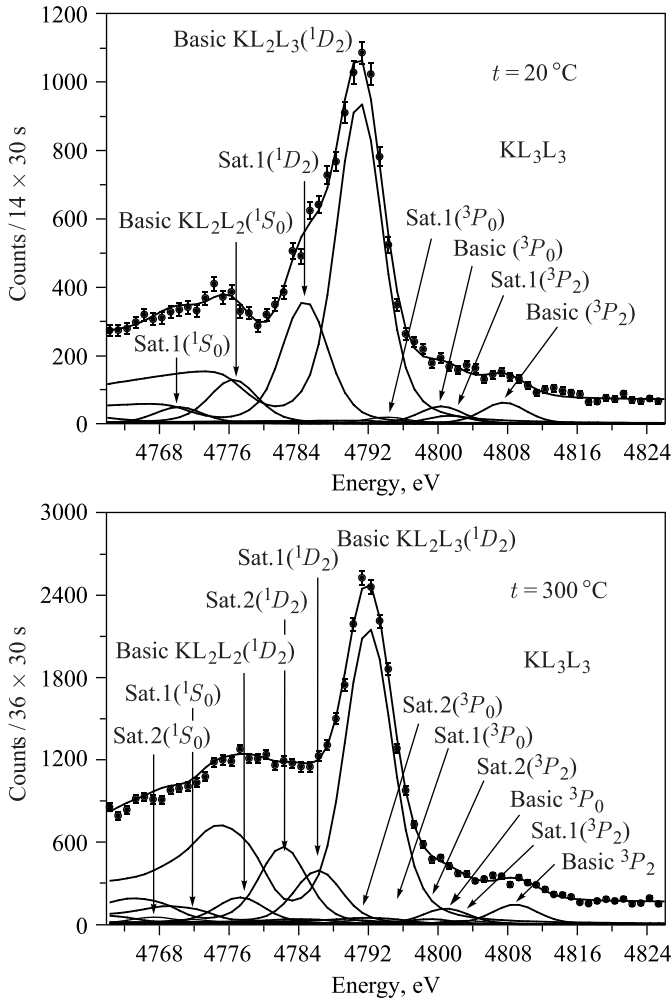


Рис. 21. Спектр  $\text{KL}_{2,3}\text{L}_{2,3}$  оже-электронов  $^{54}\text{Cr}$ , измеренный [71] после напыления слоя материнского радиоизотопа  $^{54}\text{Mn}$  на платиновую фольгу (вверху) и после отжига источника на воздухе при температуре 300 °C в течение 30 мин (внизу). Линии, обозначенные как «basic» ( $^1S_0$ ,  $^1D_2$ ,  $^3P_0$  и  $^3P_2$ ), относятся к химическому состоянию  $\text{Mn}^{+2}$ , «Sat. 1» —  $\text{Mn}^{+3}$  и «Sat. 2» —  $\text{Mn}^{+4}$

на котором показан спектр  $KL_{2,3}L_{2,3}$  оже-электронов  $^{54}\text{Cr}$ , измеренный сразу после приготовления источника  $^{54}\text{Mn}$  (вверху) и после его отжига при температуре  $300^\circ\text{C}$  (внизу). Большинство атомов марганца после приготовления источника, вероятно, находилось в состоянии  $\text{Mn}^{+2}$  (соответствующие линии  $KL_{2,3}L_{2,3}$  ( $^1S_0$ ,  $^1D_2$ ,  $^3P_0$ ,  $^3P_2$ ), обозначенные как «basic»), существенно меньше — в состоянии  $\text{Mn}^{+3}$  (оже-линии, обозначенные как «сателлитные» — «Sat. 1») и незаметная доля — в состоянии  $\text{Mn}^{+4}$  («сателлитные» линии — «Sat. 2»). До температуры отжига  $200^\circ\text{C}$  отношение количества атомов марганца в состоянии  $\text{Mn}^{+2}$  и  $\text{Mn}^{+3}$  не менялось. При более высоких температурах отжига интенсивность спектра «basic» практически не менялась, но доля атомов марганца в состоянии  $\text{Mn}^{+4}$  начала увеличиваться за счет  $\text{Mn}^{+3}$ . Из измеренных спектров было определено значение химического сдвига  $KL_{2,3}L_{2,3}$  оже-линий хрома как  $-5$  эВ на единицу степени окисления. При этом измеренные [74] химические сдвиги энергий связи электронов для подболочки  $2p_{3/2}$  ( $L_3$ ) в случае хрома и марганца составляют около  $1$  эВ на единицу степени окисления. В связи с этим стоит еще раз напомнить (см. начало п. 2.5), что химические сдвиги энергии оже-электронов не совпадают с химическими сдвигами энергий связи электронов на атомных подболочках, участвующих в оже-переходе.

*Спектры KLL и KLM оже-электронов рубидия из распада  $^{85}\text{Sr}$  [72, 73].* Исследование влияния подложки источника на энергии связи электронов на подболочках криптона K,  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ,  $M_1$ ,  $M_2$  и  $M_3$  [68] (см. п. 2.5.3) было расширено и на спектры KLL и KLM оже-электронов соседнего элемента — рубидия, возникающего в распаде (из электронного захвата)  $^{85}\text{Sr}$  ( $T_{1/2} = 64,9$  сут). Источники  $^{85}\text{Sr}$  были получены путем вакуумного напыления на поликристаллическую углеродную фольгу, а также ионной имплантацией при  $30$  кэВ на масс-сепараторе ЛЯП ОИЯИ как в поликристаллическую платиновую фольгу высокой чистоты, так и в углеродную фольгу.

Радиоизотопы стронция получали в реакциях глубокого расщепления при облучении протонами с энергией  $300$  МэВ металлического иттрия на внутреннем пучке синхротронного ЛЯП ОИЯИ. После «охлаждения» в течение трех суток была проведена химическая обработка облученной мишени. Ее подробности излагаются в работах [72, 73], как и детали приготовления источников напылением в вакууме и ионной имплантацией. В тех же работах приводятся рассуждения по поводу распределения по глубине имплантированных ионов  $^{85}\text{Sr}$ , их химического состояния в приготовленных источниках, а также дочерних атомов  $^{85}\text{Rb}$ . Измерения спектров оже-электронов проводились с помощью спектрометра ESA50.

Было обнаружено, что *относительные* энергии KLL-переходов в рубидии (по отношению к доминирующему переходу  $KL_2L_3(^1D_2)$ ), измеренные с помощью испаренного на углеродной фольге ( $C_{\text{evap}}$ ) и имплантированного в платиновую фольгу ( $\text{Pt}_{\text{impl}}$ ) источников, согласуются друг с другом в пре-

делах одного стандартного отклонения, т. е. в пределах экспериментальных погрешностей влияние физико-химического окружения атомов  $^{85}\text{Sr}$  на относительные энергии переходов не наблюдалось.

Влияние окружения атомов  $^{85}\text{Sr}$  на абсолютные энергии KLL оже-линий рубидия исследовалось на двух из них, а именно на доминирующей  $\text{KL}_2\text{L}_3(^1D_2)$  и близлежащей и хорошо выделенной  $\text{KL}_3\text{L}_3(^3P_2)$ . При этом сравнение проводилось на шкале тормозящего напряжения для получения более высокой точности. Как видно из табл. 7, самые высокие абсолютные энергии исследуемых оже-линий рубидия были измерены для напыленного слоя  $^{85}\text{Sr}$  на углеродной подложке. В случае имплантированных в платину ( $\text{Pt}_{\text{impl}}$ ) и углерод ( $\text{C}_{\text{impl}}$ ) источников  $^{85}\text{Sr}$  энергии оже-линий в среднем ниже на 0,7(1) и 2,9(1) эВ соответственно по сравнению с напыленным источником (см. последний столбец).

В случае KLM спектра изменения абсолютных энергий оже-линий определялись с помощью трех самых интенсивных компонентов спектра (имеющих довольно сложную структуру), в частности  $\text{KL}_2\text{M}_3(^1D_2, ^3D_1) + \text{KL}_2\text{M}_2(^3P_1)$ ,  $\text{KL}_3\text{M}_2(^3P_2, ^3S_1) + \text{KL}_3\text{M}_3(^3P_0)$  и  $\text{KL}_3\text{M}_3(^3D_2, ^3D_3, ^1P_1)$ . Опять самые высокие абсолютные энергии исследуемых оже-линий были измерены для напыленного слоя  $^{85}\text{Sr}$  на углеродной подложке. Для имплантированных в платиновую и углеродную подложки источников энергии были в среднем ниже на 0,2(2) и 2,2(3) эВ соответственно. Эти значения согласуются в пределах трех стандартных отклонений со сдвигами, измеренными для KLL спектра.

Результаты, полученные при исследовании влияния физико-химического окружения на энергии конверсионных и оже-электронов, приведенные в п. 2.5, и в особенности результаты работ [69, 70] (пп. 2.5.4 и 2.5.5), которые являются самыми широкомасштабными исследованиями в данной области, показывают чрезвычайную сложность поставленной задачи — создания естественного источника реперных электронов, обладающих сверхстабильной во времени энергией для нейтринного проекта KATRIN. Чувствительность энергий связи электронов в исследуемых атомах (включая криптон, рубидий и строн-

Таблица 7. Измеренные сдвиги энергии (в эВ) оже-линий  $\text{KL}_2\text{L}_3(^1D_2)$  и  $\text{KL}_3\text{L}_3(^3P_2)$  рубидия между источником  $^{85}\text{Sr}$ , полученным напылением в вакууме на углеродную подложку ( $\text{C}_{\text{evap}}$ ), и источниками  $^{85}\text{Sr}$ , приготовленными ионной имплантацией в углеродную ( $\text{C}_{\text{impl}}$ ) и платиновую ( $\text{Pt}_{\text{impl}}$ ) фольги [72, 73]

Источник $^{85}\text{Sr}$	$\text{KL}_2\text{L}_3(^1D_2)$	$\text{KL}_3\text{L}_3(^3P_2)$	w. m.*
$\text{C}_{\text{evap}}$	0,0	0,0	0,0
$\text{Pt}_{\text{impl}}$	– 0,8(2)	– 0,6(2)	– 0,7(1)
$\text{C}_{\text{impl}}$	– 2,7(2)	– 3,0(2)	– 2,9(1)

\* w. m. — средневзвешенное значение.

ций) к изменениям физико-химического окружения в реальных условиях для напыленных и имплантированных источников с использованием вышеприведенных подложек существенно превышает требование к допустимой нестабильности энергии реперных электронов. В случае напыленных источников изменение физико-химического окружения в пределах, изучаемых в наших работах, под влиянием изменения вакуума (состава остаточных газов) в главном спектрометре проекта KATRIN вполне допустимо. Поэтому атомы, эмитирующие реперные электроны, должны находиться в четко определенном и стабильном во времени физико-химическом окружении. По всей видимости, у источников, приготовленных ионной имплантацией в соответствующие подложки, есть принципиальные предпосылки удовлетворить этим требованиям. Поэтому в дальнейшем разработка источника реперных электронов на базе К-конверсионных электронов перехода 32 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$  из распада  $^{83}\text{Rb}$  шла в этом направлении.

**2.6. Исследования источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных ионной имплантацией.** Источники  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  приготавливались на масс-сепараторе установки ISOLDE в ЦЕРН ионной имплантацией при 30 кэВ в поликристаллические фольги диаметром 12 мм из золота и платины высокой чистоты. Только в одном случае ионный пучок  $^{83}\text{Rb}$  замедлялся до 15 кэВ с помощью напряжения. При этом фольги фиксировались перпендикулярно направлению ионного пучка и выдерживались при комнатной температуре. Имплантации проходили при вакууме  $10^{-4}$  мбар. Перед имплантацией фольги были очищены с помощью ультразвука в химически чистом метаноле. После завершения имплантации фольги хранились на воздухе в специальных держателях с пластиковыми колпачками, предотвращающих контакт с поверхностью источника.

Можно предположить, что  $^{83}\text{Rb}$  ведет себя после имплантации как  $\text{Rb}^+$  и связывается с окружением в объеме фольг. Нельзя также исключить диффузию, но из-за высокой реактивности рубидия, вероятно,  $^{83}\text{Rb}$  останется на своем первоначальном месте. Поскольку в течение  $10^{-10}$  с после распада  $^{83}\text{Rb}$  электронные оболочки реорганизуются под ядро  $\text{Kr}$ , то нельзя ожидать и сильную связь дочернего  $^{83m}\text{Kr}$  с окружением. Однако некоторое влияние окружения  $^{83m}\text{Kr}$  на энергии конверсионных электронов может иметь место, так как метастабильное состояние живет около 2 ч.

Всего было приготовлено четыре источника со следующими обозначениями и характеристиками:

- Pt-30 (энергия ионов  $^{83}\text{Rb}$  — 30 кэВ; подложка — поликристаллическая платиновая фольга толщиной 40 мкм, чистота — 99,7 %, основная примесь — родий; активность источника — 3,3 МБк);
- Pt-30-2 (энергия ионов  $^{83}\text{Rb}$  — 30 кэВ; подложка — поликристаллическая платиновая фольга толщиной 25 мкм, чистота — 99,99 %; активность источника — 4,9 МБк);

- Au-30 (энергия ионов  $^{83}\text{Rb}$  — 30 кэВ; подложка — поликристаллическая золотая фольга, чистота — 99,99%; активность источника — 3,3 МБк);
- Pt-15 (энергия ионов  $^{83}\text{Rb}$  — 15 кэВ; подложка — поликристаллическая платиновая фольга, чистота — 99,99%; активность источника — 1,9 МБк).

Приведенная активность источников сразу после имплантации была определена из измерений активности с помощью гамма-спектроскопии, проведенных примерно 5 месяцев спустя. Надо также отметить, что два источника Pt-30 не были строго идентичны из-за разных уровней примесей в подложках, а также имплантированных доз.

Распределение активности  $^{83}\text{Rb}$  по площади источников определяли с помощью пиксельных детекторов (Timerix). В случае источников, имплантированных при 30 кэВ, пятна можно было приблизительно описать двумерным гауссовским распределением, а в случае источника Pt-15 (применение тормозящего электрода) — как круговые сегменты.

Из активности источников и площади пятен получили среднюю имплантированную дозу, которая находилась в пределах от  $1 \cdot 10^{16}$  до  $6 \cdot 10^{16}$  ионов/см<sup>2</sup>. Как и ожидалось, имплантированная доза была самой высокой в случае источников Pt-30-2 и Au-30. Доля удерживания  $^{83m}\text{Kf}$  в источниках достигала 90% и больше. Но не 100%. Этот факт объясняется возможной диффузией имплантированных ионов к поверхности (см., например, [80]). Распределение атомов  $^{83}\text{Rb}$  по глубине подложек оценивали с помощью уже упомянутой программы SRIM [77], примененной с той же целью при имплантации ионов  $^{169}\text{Yb}$  (п. 2.5.4) и  $^{149}\text{Eu}$  (п. 2.5.5). Средний пробег ионов  $^{83}\text{Rb}$  в источниках Pt-30, Pt-30-2 и Au-30 составлял 8,9, 8,9 и 9,6 нм соответственно, а в источнике Pt-15 — только 6,1 нм. В этой области источника концентрации атомов  $^{83}\text{Rb}$  достигали значений в пределах 0,2–0,8% от плотности материала подложки.

**2.6.1. Измерения источников на спектрометре МАС-Е-фильтр.** Измерения приготовленных источников  $^{83m}\text{Kf}/^{83}\text{Rb}$  проводились в основном на спектрометре типа МАС-Е-фильтр в Майнце. Примерно за месяц до начала измерений было проведено тщательное выпекание всей вакуумной установки. Каждый источник был установлен в свой держатель из позолоченной меди, и все вместе они были закреплены в специальное приспособление в части спектрометра для источников, которое позволяло зафиксировать один из источников в рабочем положении без нарушения вакуума в камере спектрометра. После установки вся секция с источниками нагревалась в течение 32 ч при температуре около 80 °С. При этом вакуум в вакуумной камере самого МАС-Е-фильтра был стабильным, около  $10^{-10}$  мбар.

В начале измерения каждого источника было найдено положение в плоскости  $x-y$ , при котором наблюдалась максимальная амплитуда линии изучаемых конверсионных электронов К-32. Положение относительно центра соленоида (ось  $z$ ) было общим для всех источников.

Измерялись все значимые линии конверсионных электронов  $^{83m}\text{Kг}$  каждого источника, в частности К-32 (17,8 кэВ), L<sub>1</sub>-9,4 (7,5 кэВ), L<sub>3</sub>-32 (30,5 кэВ) и N<sub>2,3</sub>-32 (32,1 кэВ). Более часто, конечно, К-32. Другие линии оказались очень важными для проведения дополнительных систематических исследований.

Измерение линии конверсионных электронов производилось циклическим сканированием (с шагом 0,5 В) соответствующей области энергетической шкалы (как правило,  $\pm 25$  В от положения максимума линии) спектрометра замедляющим напряжением. Результаты каждого сканирования («вверх» или «вниз») рассматривались как отдельное измерение. Продолжительность одного сканирования (от 0,5 до 4 ч) пренебрежимо мала по сравнению с периодом полураспада  $^{83}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 82,2$  сут), что освобождало от необходимости вводить в измеренный спектр соответствующие поправки.

На 26-й день во время измерения произошло внезапное падение вакуума с  $10^{-10}$  до  $10^{-4}$  мбар во всей вакуумной системе спектрометра в результате аварийного отключения электроэнергии в здании. В результате энергия конверсионной линии К-32 для всех источников снизилась в среднем на 0,15(2) эВ. В случае источника Pt-30-2 было проведено измерение всех четырех вышеупомянутых конверсионных линий, и уменьшение энергии наблюдалось у всех в среднем на 0,16(4) эВ. Эти наблюдения привели к заключению, что уменьшение энергии конверсионных линий было вызвано резким увеличением работы выхода тормозящих электродов спектрометра в результате адсорбции остаточных газов. Это заключение было нами позже подтверждено экспериментально при повторном намеренном кратковременном напуске воздуха только в секцию источников. Для всех источников положение конверсионной линии К-32 осталось неизменным в пределах экспериментальной ошибки. В целом измерения сдвигов энергии конверсионной линии К-32 со всеми источниками длились 46 сут.

**2.6.2. Обработка, результаты и их обсуждение.** Для исследования долгосрочной стабильности энергий конверсионных электронов из распада  $^{83m}\text{Kг}$  использовался только пик без потерь, и при этом только в энергетическом диапазоне, в котором влияние разных процессов, деформирующих энергию электронов, можно было считать минимальным. Из-за серьезных трудностей с надежным описанием этого пика с помощью одной линии, для определения энергетических сдвигов исследуемых конверсионных линий применили метод взаимной корреляции. Суть метода состоит в сравнении двух интегральных конверсионных электронных спектров с помощью метода наименьших квадратов, причем один из них (измеренный с высокой статистикой и мелким шагом) служит в качестве реперного. Качество подгонки оценивали на основании полученного значения хи-квадрата и поведения нормализованных невязок. Такого рода сравнение проводится просто, поскольку только три параметра являются свободными в подгонке: амплитуда, энергетический сдвиг и фон.



Дрейфы энергии конверсионной линии К-32 исследуемых источников показаны на рис. 22. Для каждого из них дрейф был уникальным с самого начала измерений, но составлял порядка ppm в месяц. Это не удивительно, так как источники отличались своими свойствами. Значения дрейфов для отдельных источников (скорректированные на сдвиги делителя высокого на-

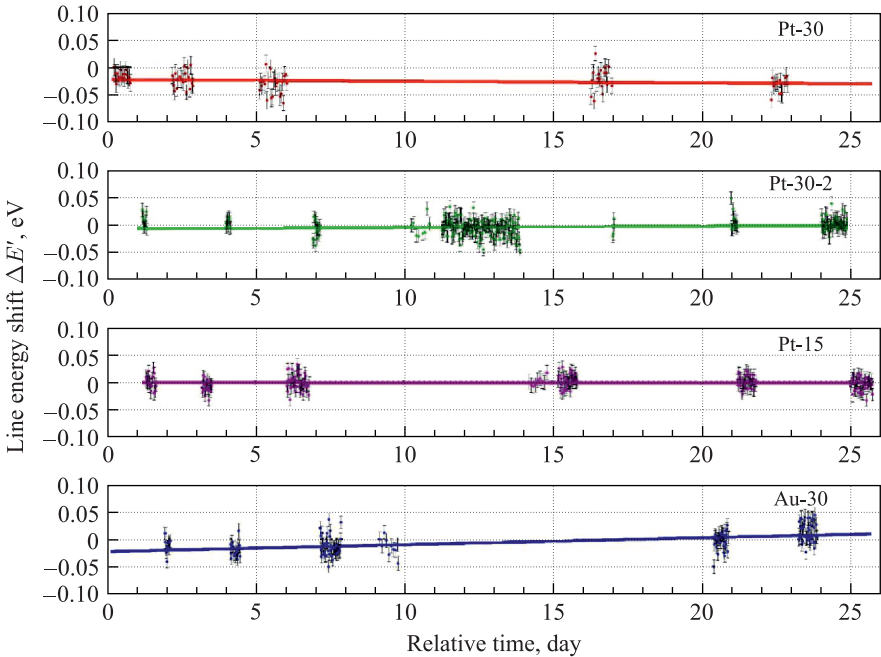


Рис. 22. Дрейф положения (в эВ) конверсионной линии К-32 во времени, измеренный с источниками Pt-30, Pt-30-2, Pt-15 и Au-30. Сплошные линии — результат линейной аппроксимации экспериментальных данных [81]

Таблица 8. Дрейф положения (в эВ) конверсионной линии К-32 в течение 26 суток от начала измерений —  $d_i$  (когда условия измерений были стабильными) и за весь период измерений (включая дни, когда имели место сбои в энергоснабжении) —  $b_i$  [81]

Источник	Дрейф $d_i$ (период 0–26 сут)		Дрейф $b_i$ (период 0–46 сут)	
	Абсолютный, мэВ/мес	Относительный, ppm/мес	Абсолютный, мэВ/мес	Относительный, ppm/мес
Pt-30	-5(6)	-0,27(32)	-17(3)	-0,96(17)
Pt-30-2	11(3)	0,63(18)	18(3)	1,02(16)
Au-30	4(2)	0,23(14)	3(3)	0,19(14)
Pt-15	43(3)	2,39(19)	47(3)	2,64(16)

пряжения и цифрового вольтметра) приведены в табл. 8. Как видно из таблицы, дрейфы энергии конверсионной линии K-32 для источников Pt-30 и Pt-15 совместимы с нулем в пределах  $1\sigma$  и  $2\sigma$  соответственно. Положительный дрейф в случае источника Pt-30-2 несовместим с нулем, что указывает на его отличие от его предшественника Pt-30. Тем не менее дрейфы энергии линии K-32 источников  $^{83}\text{Rb}$  в платиновой подложке находятся в суб-ppm диапазоне, в то время как дрейф источника Au-30 является относительно высоким (2,39(19) ppm/мес). Наблюдаемое различие можно объяснить разными физико-химическими свойствами золота и платины. Энергетические дрейфы других линий спектра конверсионных электронов  $^{83m}\text{Kr}$  измерялись гораздо реже и, следовательно, с более низкой статистикой. Тем не менее их абсолютные значения были совместимы с дрейфами конверсионной линии K-32 отдельных источников.

Было рассмотрено также возможное влияние всех известных систематических эффектов на проведенные измерения долгосрочной стабильности энергии конверсионных электронов K-32. По нашим оценкам, их суммарный вклад в погрешность измеренного дрейфа не превышает значение 0,5 ppm/мес. Если сложить это значение квадратично с оценкой вклада от примененного метода взаимной корреляции, то общая систематическая погрешность измеренных дрейфов составит 0,64 ppm/мес.

Таким образом, можно констатировать, что все три источника  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  в платиновой подложке удовлетворили жесткому требованию проекта KATRIN к временной стабильности энергии реперных электронов  $\pm 1,6$  ppm/мес. Относительно высокий дрейф источника Au-30 может быть вызван слишком высокой имплантационной дозой  $^{83}\text{Rb}$  из-за хорошо сфокусированного ионного пучка, вследствие чего произошло серьезное повреждение кристаллической решетки подложки. Но то же самое относится и к источнику Pt-30-2, где дрейф был низким. Это можно объяснить разными физико-химическими свойствами золота и платины.

Было установлено, что имплантированные источники превосходят испаренные в вакууме (см. п. 2.4, а также работу [59]) по чувствительности энергии эмитируемых ими реперных электронов к условиям вакуума. Надо, однако, заметить, что в случае имплантированных источников серьезные временные ухудшения вакуума в камере спектрометра привели к отрицательным сдвигам энергии измеряемых конверсионных электронов.

Стоит отметить, что источник Pt-30 проявил нулевой дрейф спустя почти 9 мес с момента его приготовления на установке ISOLDE. С этой точки зрения такой твердотельный источник  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  действительно очень хорошо подходит для долгосрочного мониторинга стабильности энергетической шкалы спектрометра KATRIN. Но ввиду того, что четыре имплантированных источника показали разные дрейфы, нельзя утверждать ничего определенного относительно *воспроизводимости* источников. Это должно быть

предметом дальнейших исследований. Тем не менее три разных источника  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  в платиновой подложке продемонстрировали стабильность, совместимую с требованиями проекта KATRIN.

Согласно моделированию, около 5–10 % имплантируемых ионов  $^{83}\text{Rb}$  не достигает окружения объема материала фольги (металлическое состояние), а остается в слое поверхностного «загрязнения» фольги (неметаллическое состояние). Влияние этого фактора не было обнаружено в наших исследованиях, но, тем не менее, поверхность источника можно очистить, например, с помощью ионного распыления или плазменного травления.

В дальнейшем необходимо проверить возможность имплантации ионов  $^{83}\text{Rb}$  при более низких энергиях (5–10 кэВ). Это способствовало бы желательному увеличению доли электронов без потерь энергии в исследуемой конверсионной линии К-32. Несмотря на то, что, по-видимому, использование поликристаллической платиновой фольги высокой чистоты в качестве подложки реперных источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  может быть достаточным для проекта KATRIN, для уменьшения неупругого рассеяния изучаемых электронов в подложке желательно применить материал с низким атомным номером, например, высокоориентированный пиролитический графит (HOPG), что будет предметом предстоящих исследований.

В итоге, источники  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленные ионной имплантацией в поликристаллические платиновые фольги, обеспечивают очень высокую стабильность во времени энергии реперных электронов порядка 0,1 ppm/мес в течение нескольких месяцев. Достигнутые скорости счета в пике без потерь достаточно высоки для проверки стабильности энергетической шкалы с точностью 15 мэВ за время несколько десятков минут. Поэтому такие источники вполне подходят для мониторинга стабильности энергетической шкалы спектрометра эксперимента KATRIN.

Подробности исследований, описанных в п. 2.6, излагаются в работе [81].

**2.6.3. Влияние материала подложки и ее повреждений на форму конверсионной линии.** При обработке измеренных спектров исследуемых конверсионных электронов (см. начало п. 2.6.2) были выявлены структуры в невязках, которые указывали на определенную асимметрию на низкоэнергетической стороне пика без потерь. Эту асимметрию можно было описать второй функцией Фойгта (свертка лоренциана и гауссиана — см. п. 2.2) с одинаковыми параметрами, как и в случае основного пика. Однако происхождение наблюдаемой асимметрии не было очевидным.

При обсуждении результатов в п. 2.6.2 было высказано предположение о том, что наблюдаемая большая разница в дрейфах энергии конверсионной линии К-32 между источниками Au-30 и Pt-30-2 может быть вызвана различием свойств используемых подложек из золота и платины после их облучения высокими дозами ионов  $^{83}\text{Rb}$ .

С целью пролить свет на эту проблему мы провели довольно обширное исследование формы измеренных линий конверсионных электронов перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  в рамках изучения влияния физико-химического окружения атомов на энергии связи электронов в самарии [70], которое описывается в п. 2.5.2. При этом использовали четыре пары источников  $^{149}\text{Eu}$ , один напыленный, а второй имплантированный при 30 кэВ в ту же подложку. В качестве подложек служили поликристаллическая углеродная фольга, стандартная промышленная поликристаллическая алюминиевая фольга, стандартная поликристаллическая гадолиниевая фольга и поликристаллическая платиновая фольга высокой чистоты.

Дочерний элемент  $^{149}\text{Sm}$  очень хорошо подходит для намеченной задачи, так как он относится к редкоземельным элементам, которые (как уже упоминалось) являются весьма чувствительными к изменению физико-химического окружения атомов, в особенности благодаря уникальным свойствам  $4f$ -оболочки. Некоторые детали эксперимента приведены в п. 2.5.2.

Форма линии конверсионных электронов  $L_1$  перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$ , измеренной с источниками, приготовленными напылением в вакууме на все исследуемые подложки, приводится на рис. 23, а ионной имплантацией в эти подложки — на рис. 24. Как видно из рисунков, в случае имплантированных в поликристаллическую алюминиевую и углеродную фольги источников наблюдается «дублетная» структура не только для конверсионной линии  $L_1$ , но и для всех остальных исследуемых конверсионных линий (см. рис. 25 для алюминиевой подложки; для углеродной подложки картина сходная). Разность энергий компонентов «дублета» линии  $L_1$  (соответствующая сдвигу энергии связи электронов на подоболочке  $L_1$ ) составляла 8,2(2) и 7,8(3) эВ для алюминиевой и углеродной подложек соответственно, а отношения интенсивностей низкоэнергетической компоненты к высокоэнергетической достигали значений 1,5(1) для Al и 1,6(2) для C. Более того, для обеих подложек разность энергий компонентов конверсионных линий  $M_1$ ,  $M_2$ ,  $M_3$  и  $N_1$  была в среднем на 0,9 эВ больше, чем для  $L_1$ . На наш взгляд, наблюдаемая дублетная структура конверсионных линий, вероятно, связана с наличием как трехвалентных, так и двухвалентных ионов Sm в исследуемых источниках (соответствующих электронным конфигурациям  $4f^5 5d^1 6s^2$  и  $4f^6 5d^0 6s^2$  соответственно). Это мнение основано на следующих фактах.

Вопреки тому, что энергии связи  $4f$ -электронов составляют всего несколько электронвольт (что характерно для валентных электронов), они сохраняют свой локализованный характер даже в случае редкоземельных металлов. Тем не менее  $4f$ -электроны являются чувствительными к физико-химическому окружению. В результате многие редкоземельные элементы не только встречаются в двух разных стабильных валентных состояниях, но и могут иметь так называемую *промежуточную валентность* (см., например, [82–85]), т. е. некий вид флуктуирующего состояния между этими

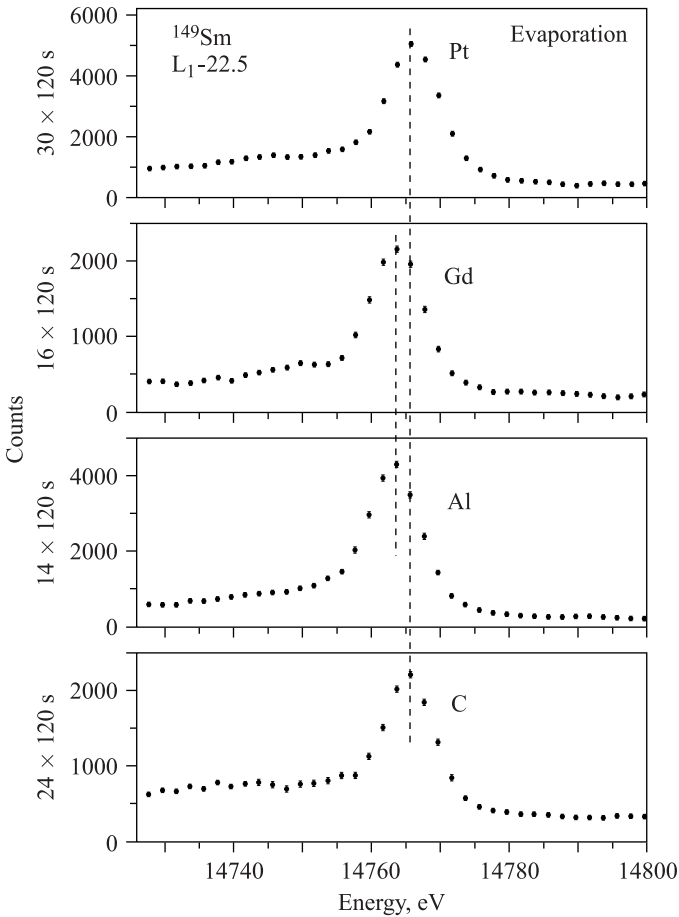


Рис. 23. Конверсионная линия  $L_1$  ядерного перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  (возникающем в распаде  $^{149}\text{Eu}$  из электронного захвата), измеренная [70] с напыленными на поликристаллические фольги Pt, Gd, Al и C источниками  $^{149}\text{Eu}$  (см. п. 2.6.3). Спектры измерялись при приборном разрешении 7 эВ с шагом 2 эВ с разным количеством разверток. Экспозиция в каждой точке спектра в развертке составляла 120 с. Широкие «бугры», наблюдаемые в особенности на низкоэнергетических склонах линий, измеренных с источниками на подложках из Pt и Gd, являются пиками дискретных энергетических потерь исследуемых электронов (см. начало п. 2.2). Для облегчения сравнения спектров через вершины конверсионных линий  $L_1$ , измеренных с источниками на подложках из Pt и Gd, проведены штриховые вертикальные линии

двумя устойчивыми состояниями. Более того, в Sm уровень  $4f$  очень близок к энергии Ферми. Следовательно, химические или другие эффекты могут вызвать переход Sm (трехвалентного в металле) в двухвалентное состояние.

Результаты исследований [86, 87] образцов, подобных нашим (содержащих Sm или Eu), с помощью фотоэлектронной спектроскопии сходны с данными, полученными нами из «расщепленных» конверсионных линий. На-

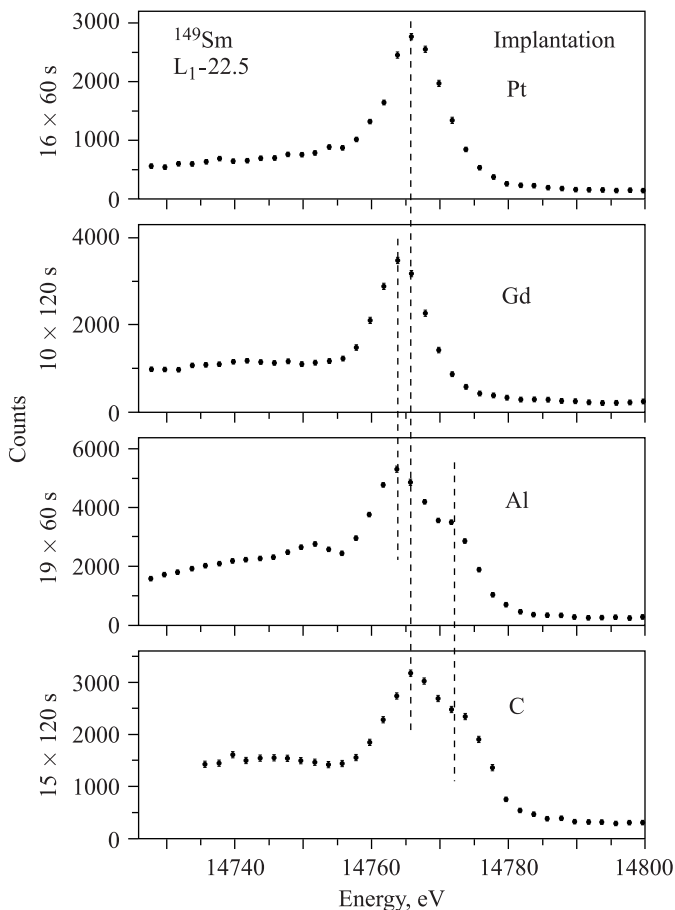


Рис. 24. Линия конверсионных электронов L<sub>1</sub> ядерного перехода 22,5 кэВ в <sup>149</sup>Sm (из распада <sup>149</sup>Eu), измеренная [70] с имплантированными в поликристаллические фольги Pt, Gd, Al и C источниками <sup>149</sup>Eu (см. п. 2.6.3) при приборном разрешении 7 эВ и с шагом 2 эВ с разным количеством разверток. Экспозиция в каждой точке спектра в развертке для Pt и Al была 60 с, а для Gd и C — 120 с. Штриховые вертикальные линии служат только для облегчения сравнения положения и формы изображенных спектров. В случае алюминиевой и углеродной подложек наблюдается «дублетная структура» измеренных линий, вызванная, по всей видимости, присутствием в источниках ионов <sup>149</sup>Sm со степенью окисления 3<sup>+</sup> и 2<sup>+</sup>. Широкие «бугры», наблюдаемые на низкоэнергетических склонах линий, являются пиками дискретных энергетических потерь исследуемых электронов (см. начало п. 2.2)

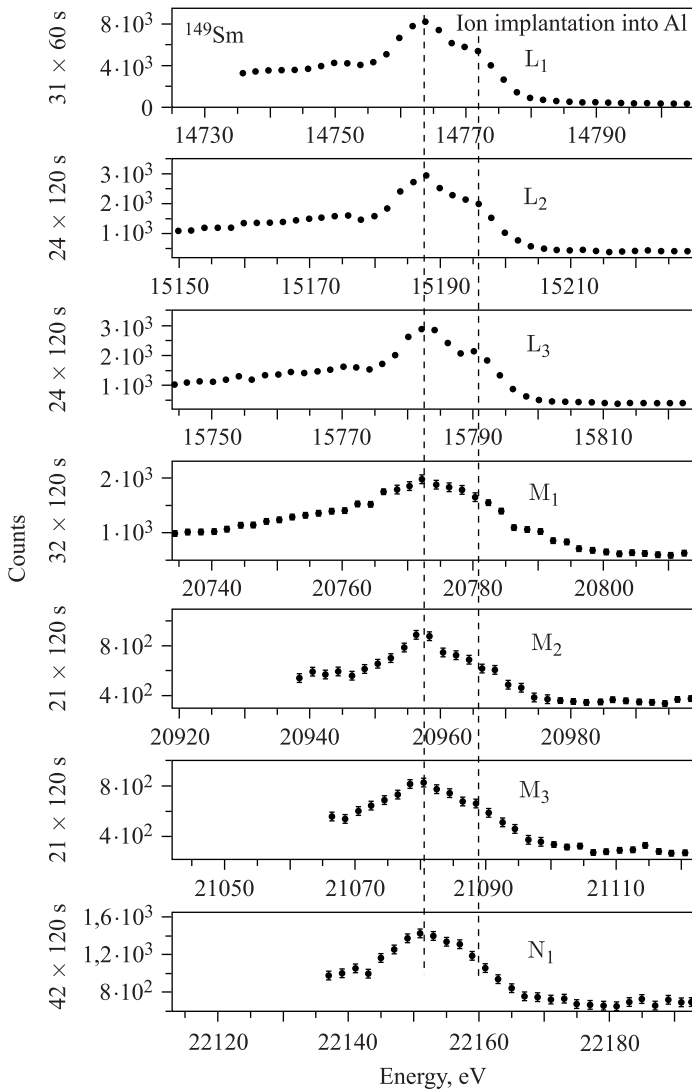


Рис. 25. Конверсионные линии  $L_{1-3}$ ,  $M_{1-3}$  и  $N_1$  ядерного перехода 22,5 кэВ в  $^{149}\text{Sm}$  (генерируемого в электронном захвате  $^{149}\text{Eu}$ ), измеренные [70] при приборном разрешении 7 эВ и с шагом 2 эВ с источником  $^{149}\text{Eu}$ , приготовленным ионной имплантацией при 30 кэВ в поликристаллическую алюминиевую фольгу (см. п. 2.6.3). Экспозиция в каждой точке спектра в развертке составляла 60 с для линии  $L_1$  и 120 с для остальных линий. Максимумы отдельных спектров, соответствующих трехвалентному и двухвалентному состояниям  $^{149}\text{Sm}$ , расположены друг под другом по вертикали

блюдаемые нами сдвиги энергии связи электронов на подболочках  $L_{1-3}$ ,  $M_{1-3}$  и  $N_1$  самария (расщепление соответствующих конверсионных линий) в случае имплантированных в алюминиевую и углеродную фольги источников  $^{149}\text{Eu}$  являются довольно большими и в значительной степени явно связаны с потерей полного  $4f$ -электрона при изменении электронной конфигурации с двухвалентной на трехвалентную. Для сравнения, изменение энергии связи электронов около 1 эВ на валентную единицу (степень окисления) было определено, например, в работе [53] при исследовании валентных форм  $^{99m}\text{Tc}$  в твердых телах с помощью спектроскопии конверсионных электронов (ICES).

Считается (см., например, [85]), что металлический самарий в объеме находится в трехвалентном состоянии, а на поверхности — в двухвалентном. Однако в нашем случае трехвалентные и двухвалентные состояния Sm наблюдались для «примесных» атомов  $^{149}\text{Sm}$  в подложках С и Al. Согласно результатам моделирования имплантации (см. рис. 20), ионы  $^{149}\text{Eu}$  находились глубоко под поверхностями алюминиевой и углеродной фольг, т. е. «никакие» атомы  $^{149}\text{Sm}$  не были осаждены на их поверхностях. Таким образом, наше наблюдение противоречит этому утверждению и открывает новое направление для исследований.

Следует, однако, подчеркнуть, что мы не смогли однозначно определить причину наблюдаемой дублетной структуры изучаемых конверсионных линий. Это могут быть также смешанные (неоднородно смешанные) валентные соединения, валентные флуктуации (промежуточная валентность или однородная смешанная валентность) и т. д. (см., например, [84]) или их смесь. Для решения этой проблемы необходимы новые исследования.

Также остается вопрос, почему «дублетная структура» конверсионных линий наблюдалась только для поликристаллической алюминиевой и углеродной подложек, но не для платиновой и гадолиниевой.

Очевидно, что после имплантации ионов  $^{149}\text{Eu}$  в алюминиевую и углеродную подложки в них могут образовываться сложные метастабильные структуры не только из-за присутствия имплантированных ионов, но и из-за радиационного повреждения подложек, создаваемого входящими ионами [88]. Более того, концентрация радиационно-индуцированных дефектов сильно зависит от расстояния от поверхности подложки. Имплантированные ионы  $^{149}\text{Eu}/^{149}\text{Sm}$  могут мигрировать и улавливаться (быть захваченными) на радиационных дефектах (играющих роль насыщенных или ненасыщенных ловушек), концентрация которых выше вблизи поверхности. Таким образом, локальная подвижность этих ионов может быть снижена. С другой стороны, наличие дефектов (таких как вакансии и «свободные объемы») может способствовать диффузии ионов. Не исключается агломерация ионов  $^{149}\text{Eu}/^{149}\text{Sm}$  (образование новых, более крупных частиц за счет агрегации ограниченного числа первичных частиц) в подложках источников. Таким образом, очевидно,



что ионы  $^{149}\text{Eu}/^{149}\text{Sm}$ , имплантированные в алюминиевую и углеродную подложки, могут находиться в существенно разном физико-химическом окружении. Как упоминалось выше, эти обстоятельства могут стабилизировать ионы  $^{149}\text{Sm}$  также в двухвалентном состоянии. Кроме того, алюминий и углерод обладают значительными восстановительными свойствами.

В отличие от углерода и алюминия, платина является благородным металлом, поэтому радиационные повреждения (нарушения физико-химического окружения) в подложках источников, вызванные имплантацией ионов  $^{149}\text{Eu}$ , вряд ли могут появиться при наших ионных флюенсах. Поэтому обоснованно предположить, что атомы материнского европия и дочернего самария в платиновой подложке стабилизируются в состояниях, близких к трехвалентному. Три валентных электрона активных элементов европия и самария могут быть значительно удалены от ионного остова. Однако механизм «вытягивания» (electron-withdrawing) электронов может отличаться от механизма «вытягивания» в оксидах. Следует также напомнить (см. рис. 20), что часть (несколько процентов) имплантированных ионов  $^{149}\text{Eu}$  скопилась в слое поверхностного загрязнения, представляющем собой другое физико-химическое окружение, чем объемный материал фольги. Но этот слой не был удален с поверхности платиновой фольги до измерений спектров электронов. Таким образом, аналогично испаренным источникам, из-за контакта с воздухом ионы  $^{149}\text{Eu}$  в слое поверхностного загрязнения создавали с атомами кислорода всевозможные химические формы (оксиды, гидроксиды, карбонаты, гидрокарбонаты), но при этом также обладали степенью окисления +3. Как обсуждалось в работе [70], есть веские основания полагать, что ионы  $^{149}\text{Sm}$ , рождающиеся в распаде  $^{149}\text{Eu}$ , также стабилизируются в степени окисления +3. Поскольку максимум распределения ионов  $^{149}\text{Eu}$  по глубине в платиновой фольге расположен близко к ее поверхности (примерно 4 нм), трудно ожидать большого различия между этими двумя окружениями.

Как уже отмечалось, используемая гадолиниевая фольга была сильно окислена. К сожалению, нам не удалось оценить толщину окисленного слоя. Поэтому трудно сделать какие-либо достоверные выводы о результатах, полученных с имплантированным в эту фольгу источником  $^{149}\text{Eu}$ .

Результаты проведенных исследований показали, что проблема влияния физико-химического окружения подложек источников на имплантированные ионы сложная, многопараметрическая и не поддается описанию простыми механизмами. На данной стадии она не является принципиальной для проекта KATRIN, так как исследованные источники  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , имплантированные в поликристаллическую платиновую фольгу высокой чистоты, гарантируют требуемую стабильность во времени энергии реперных конверсионных электронов K-32 (см. п. 2.6.2). Однако пока не объясненная наблюдаемая структура конверсионной линии K-32 становится стимулом для продолжения исследований в этой области.

**2.7. Возможности применения фотоэлектронов [89].** Как уже неоднократно упоминалось, энергии конверсионных и оже-электронов в случае «открытых» источников зависят от химического состояния и физико-химического окружения эмитирующих атомов, которые могут меняться со временем. При этом, как показали результаты наших исследований (часть из которых приведена и в этой работе), это касается и имплантированных источников, у которых, казалось бы, окружение имплантированных ионов должно быть более стабильным во времени и гарантировать воспроизводимость. С другой стороны, фотоэлектроны, эмитируемые металлическими конвертерами с очищаемой поверхностью (например, с помощью ионной бомбардировки) под воздействием гамма-излучения, должны, в принципе, обладать более стабильной во времени энергией, чем конверсионные и оже-электроны, испускаемые изученными нами источниками. Поэтому мы уделили внимание и этой тематике (см., например, [89, 90]).

Исследовалась возможность применения фотоэлектронов, выбитых гамма-лучами из атомной оболочки К. Так как период полураспада многих возбужденных ядерных состояний больше 1 пс, то естественные ширины гамма-лучей, испускаемых при их разрядке, меньше 1 мэВ. Этот факт является основным преимуществом гамма-лучей по сравнению с рентгеновскими лучами, естественная ширина которых порядка единиц или десятков электрон-вольт.

Были рассмотрены коммерчески доступные источники гамма-излучения  $^{241}\text{Am}$  и  $^{119\text{m}}\text{Sn}$  с конвертерами Co и Ti (детали расчетов интенсивностей фотоэлектронных линий приведены в работе [89]), а позже в [90] также коммерческие гамма-источники  $^{125\text{m}}\text{Te}$  и  $^{109}\text{Cd}$  с конвертерами Al и Mo. В результате был покрыт энергетический диапазон от 18 до 80 кэВ квазиодноэнергетическими фотоэлектронными линиями, имеющими ширины от 0,5 до 4,7 эВ.

Были также проведены тестовые измерения с  $^{241}\text{Am}/\text{Co}$  фотоэлектронным источником на спектрометрах ESA12 (см. п. 2.2.2) и MAC-E-фильтр в Майнце (см. п. 2.2.3), результаты которых в кратком изложении приводятся дальше (подробности можно найти в работе [91]). Измерения осуществлялись с источником  $^{241}\text{Am}$  (изотоп  $^{241}\text{Am}$  в керамической эмали толщиной 1 мм, герметизирован бериллием) [92] активностью 1,1 ГБк и кобальтовыми конвертерами различной толщины. Проведенные гамма-спектрометрические исследования показали, что поток гамма-лучей с энергией 26,3 кэВ, испускаемых в направлении оси источника, был подавлен с фактором  $2,09 \pm 0,10$  по сравнению с гамма-лучами с энергией 59,6 кэВ.

Предварительные измерения проводились на спектрометре ESA12. Источник  $^{241}\text{Am}$  был закреплен в стандартный держатель источников электронов (предназначенных для этого спектрометра) вместе с кобальтовым конвертером толщиной 0,1 или 5 мкм на расстоянии 1 мм от бериллиевого

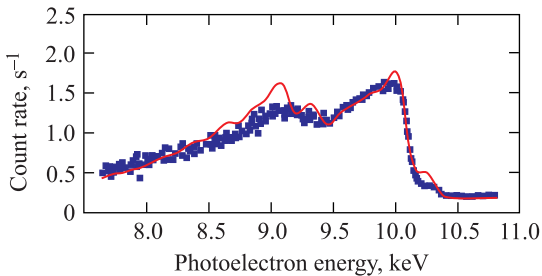


Рис. 26. Часть спектра фотоэлектронов от источника  $^{241}\text{Am}/\text{Co}$ , измеренного [89] с помощью Со-конвертера толщиной 0,1 мкм на спектрометре ESA12 с приборным разрешением 110 эВ (FWHM) при энергии 10 кэВ. Сплошная линия — результаты моделирования с применением метода Монте-Карло эмиссии фотоэлектронов из кобальтового конвертера при воздействии L-серии рентгеновских лучей дочернего  $^{237}\text{Np}$ , испускаемых в  $\alpha$ -распаде  $^{241}\text{Am}$ . В аналогичном спектре, полученном с помощью Со-конвертера толщиной 5 мкм, наблюдалась почти такая же интенсивность фотоэлектронов в пике при 10 кэВ, но фон был примерно в пять раз выше

окошка источника. Из-за ограниченного энергетического диапазона спектрометра измерялись только спектры фотоэлектронов в интервале 4,5–14 кэВ от L-рентгеновских лучей дочернего  $^{237}\text{Np}$ . Пример измеренного спектра показан на рис. 26.

Спектрометр МАС-Е-фильтр в Майнце позволил нам изучить пик без потерь фотоэлектронов с энергией 18 632 эВ при приборном разрешении 1 эВ с весьма высокой трансмиссией. Но, с другой стороны, интегральный способ измерения приводит к тому, что низкоэнергетические линии могут быть деформированы при увеличении фона от более высокоэнергетических электронов. Для измерений был использован источник  $^{241}\text{Am}/\text{Co}$  с Со-фольгой толщиной 3 мкм. После установки его в спектрометр в стандартное положение в области 18,6 кэВ наблюдали счет фотоэлектронов без потерь энергии около  $20 \text{ с}^{-1}$  на фоне около  $3200 \text{ с}^{-1}$ . При этом всего несколько процентов фона могло происходить от прямых гамма- и рентгеновских лучей, излучаемых самим источником. После оптимизации наклона источника относительно оси спектрометра фоновый счет упал на порядок (до  $310 \text{ с}^{-1}$ , рис. 27). Очистка «in situ» поверхности Со-конвертера ионами аргона привела лишь к небольшому усилению эффекта и уменьшению фона на несколько процентов. Существенное уменьшение фона было достигнуто только после настройки так называемой адиабатичности МАС-Е-фильтра. В окончательном спектре фотоэлектронов от гамма-квантов с энергией 26,3 кэВ счет в пике без потерь составлял  $2 \text{ с}^{-1}$  на фоне  $16 \text{ с}^{-1}$ . Из сравнения спектров, снятых до и после оптимизации спектрометра, следует, что фон удалось подавить в 20 раз, в то время как эффект уменьшился только в 3 раза.

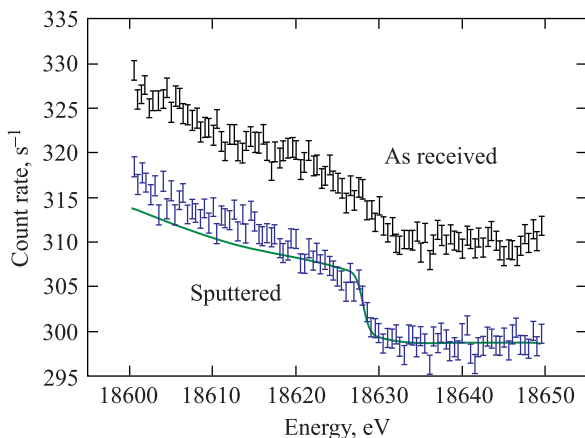


Рис. 27. Часть интегрального фотоэлектронного спектра от источника  $^{241}\text{Am}/\text{Co}$ , измеренного [89] с Co-конвертером толщиной 3 мкм на спектрометре MAC-E-фильтр в Майнце при приборном разрешении 1 эВ (FWHM) сразу после его установки в спектрометр (верхний спектр) и после очистки поверхности конвертера ионами аргона (нижний спектр). Сплошная линия — результаты моделирования с помощью метода Монте-Карло, причем энергонезависимый фон был единственным свободным параметром подгонки

Из проведенных исследований следует, что фотоэлектронные источники с металлическим конвертером могут гарантировать долгосрочную физико-химическую стабильность, но обеспечивают довольно низкие интенсивности. Их общим недостатком является и то, что используемые радионуклиды испускают не только «полезные» гамма-кванты, но и рентгеновские и другие гамма-лучи, которые увеличивают фон детектора. Одна часть этого фона возникает от фотоэффекта в конвертере и его креплении, а другая дается чувствительностью полупроводникового детектора спектрометра к прямым фотонам. Для подавления первой части необходимо применять очень тонкие конвертеры. В этом случае большинство полезных фотоэлектронов (без потерь энергии) сохранится, а количество неупруго рассеянных фотоэлектронов сведется к минимуму. Второй источник фона может быть, в принципе, устранен экранированием рентгеновских лучей, направленных на детектор. Это экранирование закроет только очень небольшую часть телесного угла для фотоэлектронов, направляемых магнитным полем мониторирующего спектрометра KATRIN.

К сожалению, источники фотоэлектронов, исследованные в этой работе, слишком слабы для частого измерения полного профиля линии, что необходимо для мониторинга стабильности энергетической шкалы главного спектрометра проекта KATRIN. Поэтому был предложен способ проверки стабильно-

сти энергетической шкалы главного спектрометра путем измерения скорости счета только в двух точках фотоэлектронного спектра, в частности в его «плоской части» и в точке перегиба в крутую часть, которая должна быть наиболее чувствительной к возможным смещениям энергетической шкалы спектрометра.

Несомненным преимуществом исследованных фотоэлектронных источников является их потенциальная стабильность и определенность энергии. Сочетание точно измеренной энергии гамма-лучей с так же точно установленной энергией связи электронов в химически чистом элементном конвертере будет способствовать разработке нормалей энергий фотоэлектронов, основанных на соответствующих атомных и ядерных стандартах. Совмещение такого источника фотоэлектронов, например, с МАС-Е-фильтром могло бы даже помочь в развитии абсолютного высоковольтного стандарта, как это было в случае определения разности энергий двух конверсионных линий  $^{83m}\text{Kr}$  с применением установки проекта KATRIN в ходе пусконаладочных измерений в июле 2017 г. (см., например, [93]).

Необходимым шагом в разработке прецизионных энергетических нормалей фотоэлектронов является проверка того, что возможные временные сдвиги энергии связи электронов конвертера и работы выхода спектрометра пренебрежимо малы в условиях сверхвысокого вакуума мониторирующего спектрометра. При этом такие исследования могут проводиться и с помощью коммерческих фотоэлектронных спектрометров.

### 3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Низкоэнергетическая ядерная электронная спектрометрия является основой метода определения массы антинейтрино с помощью анализа аппаратурной формы бета-спектров вблизи граничной энергии. В проекте KATRIN, единственном действующем проекте, нацеленном на решение этой сложной задачи, анализируется аппаратурная форма бета-спектра трития ( $E_0 \sim 18,6$  кэВ). Одним из критичных требований проекта KATRIN является долгосрочная (не менее двух месяцев) стабильность энергетической шкалы главного спектрометра. На электронных спектрометрах ESA-50 (ОИЯИ, Дубна), ESA-12 (ИЯФ АН Чешской Республики, Ржеж) и МАС-Е-фильтр (Университет г. Майнца, Германия) выполнены исследования по разработке и созданию сверхстабильного электронного энергетического репера (менее  $\pm 60$  мэВ за 2 месяца) для осуществления мониторинга стабильности энергетической шкалы спектрометра KATRIN. В качестве наиболее приемлемого кандидата на роль репера была выбрана К-конверсионная линия ( $E_e = (17824,3 \pm 0,5)$  эВ) сильно конвертированного ядерного гамма-перехода 32 кэВ в  $^{83m}\text{Kr}$ , образующемся из распада  $^{83}\text{Rb}$ .

Полученные результаты показали принципиальную применимость источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленных методом напыления  $^{83}\text{Rb}$  в вакууме, при условии обеспечения неизменности работы выхода мониторирующего спектрометра, а также стабильности физико-химического окружения атомов  $^{83}\text{Rb}$  в источниках в течение измерений. Чрезвычайную сложность поставленной задачи продемонстрировала и наблюдаемая сильная чувствительность спектроскопических свойств источников  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$  к самой процедуре их приготовления.

С другой стороны, источники  $^{83m}\text{Kr}/^{83}\text{Rb}$ , приготовленные ионной имплантацией  $^{83}\text{Rb}$  в поликристаллические платиновые фольги, обеспечили очень высокую стабильность во времени энергии реперных конверсионных электронов K-32 порядка  $\pm 0,1$  ppm/мес в течение нескольких месяцев (что существенно выше требуемого значения  $\pm 3$  ppm в течение двух месяцев). При этом скорости счета в пике без потерь конверсионной линии K-32 от исследуемых источников оказались достаточно высокими для проверки стабильности энергетической шкалы спектрометра в интервалах несколько десятков минут. Однако пока не объясненная наблюдаемая структура конверсионной линии K-32 требует продолжения исследований в этой области.

Разработка естественного источника реперных электронов для проекта KATRIN включала в себя также широкомасштабные исследования влияния физико-химического окружения атомов в источниках разного типа на энергии ими эмитируемых конверсионных и оже-электронов и на структуру соответствующих энергетических спектров. Измеренные величины чувствительности энергии связи электронов в исследуемых атомах (включая криптон, рубидий и стронций) к изменениям физико-химического окружения для напыленных и имплантированных источников различных радионуклидов в разнообразных подложках часто заметно превышали значение допустимой нестабильности энергии реперных электронных линий для проекта KATRIN. Результаты, полученные с источниками, приготовленными имплантацией ионов в соответствующие подложки, показывают их принципиальные преимущества с точки зрения стабильности энергий эмитируемых конверсионных и/или оже-электронов.

Проведенные нами исследования подтвердили, что фотоэлектронные источники с металлическим конвертером тоже могли бы служить в качестве источников реперных электронов для проекта KATRIN, поскольку для них можно обеспечить долгосрочную физико-химическую стабильность конвертера, а следовательно, и стабильность во времени энергии фотоэлектронов. Но их общими недостатками являются высокий уровень фона, вызванного рентгеновскими и гамма-лучами, а также низкая интенсивность фотоэлектронов для требуемой частоты измерения полного профиля реперной линии при мониторинге стабильности энергетической шкалы главного спектрометра KATRIN. Сочетание точно измеренной энергии гамма-лучей с так же точно

установленной энергией связи электронов в химически чистом элементарном конвертере будет способствовать разработке нормативов энергий фотоэлектронов, основанных на соответствующих атомных и ядерных стандартах. Это открывает возможность их применения и для калибровки абсолютной энергетической шкалы спектрометра KATRIN.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Cook C. S., Langer M., Price H. C., Jr. // *Phys. Rev.* 1948. V. 73. P. 1395.
2. Hamilton D. R., Alford W. P., Gross L. // *Phys. Rev.* 1951. V. 83. P. 215.
3. Langer L. M., Moffat R. J. D. // *Phys. Rev.* 1952. V. 88. P. 689–694.
4. Porter F. T. // *Phys. Rev.* 1959. V. 115. P. 450–453.
5. Salgo R. C., Staub H. H. // *Nucl. Phys. A.* 1969. V. 138. P. 417–428.
6. Daris R., St-Pierre C. // *Ibid.* P. 545–555.
7. Bergkvist K.-E. // *Nucl. Phys. B.* 1972. V. 39. P. 317–370.
8. Козик В. С., Любимов В. А., Новиков Е. Г. и др. // *ЯФ.* 1980. Т. 32. С. 309.
9. Fritschi M., Holzschuh E., Kündig W., Peterson J. W., Pixley R. E., Stüssi H. // *Phys. Lett. B.* 1986. V. 173. P. 485.
10. Wilkerson J. F., Bowles T. J., Browne J. C., Maley M. P., Robertson R. G. H., Cohen J. S., Martin R. L., Knapp D. A., Helffrich J. A. // *Phys. Rev. Lett.* 1987. V. 58. P. 2023.
11. Kawakami H., Nisimura K., Oshima T., Shibata S., Shoji Y., Sugai I., Ukai K., Yasuda T., Morikawa N., Nogawa N., Nagafuchi T., Naito F., Susuki T., Taketani H., Iwahashi N., Hisatake K., Fujioka M., Fukushima Y., Matsuda T., Taniguchi T. // *Phys. Lett. B.* 1987. V. 187. P. 198.
12. Wilkerson J. F., Bowles T. J., Friar J. L., Robertson R. G. H., Stephenson G. J., Jr., Wark D. L., Knapp D. A. // *Nucl. Phys. B.* 1991. V. 19. P. 215.
13. Robertson R. G. H., Bowles T. J., Stephenson G. J., Jr., Wark D. L., Wilkerson J. F., Knapp D. A. // *Phys. Rev. Lett.* 1991. V. 67. P. 957.
14. Kawakami H., Kato S., Oshima T., Shibata S., Ukai K., Morikawa N., Nogawa N., Haga K., Nagafuchi T., Shigeta M., Fukushima Y., Taniguchi T. // *Phys. Lett. B.* 1991. V. 256. P. 105.
15. Holzschuh E., Fritschi M., Kündig W. // *Phys. Lett. B.* 1992. V. 287. P. 381.
16. Sun H. C. et al. // *CJNP.* 1993. V. 15. P. 261.
17. Weinheimer Ch., Przyrembel M., Backe H., Barth H., Bonn J., Degen B., Edling Th., Fischer H., Fleischmann L., Grooß J. U., Haid R., Hermann A., Kube G., Leiderer P., Loeken Th., Molz A., Moore R. B., Osipowicz A., Otten E. W., Picard A., Schrader M., Steining M. // *Phys. Rev. Lett. B.* 1993. V. 300. P. 210.
18. Stoeffl W., Decman D. J. // *Phys. Rev. Lett.* 1995. V. 75. P. 3237.

19. Weinheimer C., Degen B., Bleile A., Bonn J., Bornschein L., Kazachenko O., Kovalík A., Otten E. W. // *Phys. Lett. B.* 1999. V.460. P.219.
20. Lobashev V. M., Aseev V. N., Belev A. I., Berlev A. I., Geraskin E. V., Golubev A. A., Kazachenko O. V., Kuznetsov Yu. E., Ostroumov R. P., Rivkis L. A., Stern B. E., Titov N. A., Zadorozhny S. V., Zakharov Yu. I. // *Ibid.* P. 227.
21. Hernández J. J. et al. (*Particle Data Group Collab.*) // *Phys. Lett. B.* 1990. V. 239. P. 1.
22. Lobashev V. M., Spivak P. E. // *Nucl. Instr. Meth. A.* 1985. V. 240. P. 305.
23. Picard A., Backe H., Barth H., Bonn J., Degen B., Edling Th., Haid R., Hermanni A., Leiderer P., Loeken Th., Molz A., Moore R. B., Osipowicz A., Otten E. W., Przyrembel M., Schrader M., Steinger M., Weinheimer Ch. // *Nucl. Instr. Meth. B.* 1992. V. 63. P. 345.
24. Kraus Ch., Bornschein B., Bornschein L., Bonn J., Flatt B., Kovalík A., Ostrick B., Otten E. W., Schall J. P., Thümmler Th., Weinheimer Ch. // *Eur. Phys. J. C.* 2005. V. 40. P. 447; arXiv:hep-ex/0412056.
25. Aseev V. N., Belev A. I., Berlev A. I., Geraskin E. V., Golubev A. A., Lihovid N. A., Lobashev V. M., Nozik A. A., Pantuev V. S., Parfenov V. I., Skasyrskaya A. K., Tkachov V., Zadorozhny S. V. // *Phys. At. Nucl.* 2012. V. 75. P. 464.
26. Olive K. A. et al. (*Particle Data Group Collab.*). Review of Particle Physics // *Chin. Phys. C.* 2014. V. 38. P. 090001.
27. *Particle Data Group Collab.* <http://pdg.lbl.gov>.
28. Angrik J., Armbrust T. et al. KATRIN Design Report 2004. FZKA Scientific Report 7090. Karlsruhe, 2004; [www.katrin.kit.edu](http://www.katrin.kit.edu) (Letter of Intent).
29. Siegbahn K., Nordling C., Johansson G., Hedman J., Hedén P. F., Hamrin K., Gelius U., Bergmark T., Werme L. O., Manne R., Baer Y. ESCA Applied to Free Molecules. Amsterdam; London: North-Holland, 1969.
30. Fahlman A., Nordling C., Siegbahn K. ESCA: Atomic, Molecular and Solid State Structure Studied by Means of Electron Spectroscopy // *Nova Acta Regiae Soc. Sci. Upsal.* 1967. V. 20.
31. *Surface Analysis by Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy* / Eds.: D. Bliggs, J. T. Grant. Chichester; Manchester, UK: IM Publ. and Surface Spectra Ltd., 2003.
32. Shirley D. A., Martin R. L., Kowalczyk S. P., McFeely F. R., Ley L. // *Phys. Rev. B.* 1977. V. 15. P. 544.
33. Weightman P. X-Ray-Excited Auger and Photoelectron Spectroscopy // *Rep. Prog. Phys.* 1982. V. 45. P. 753.
34. Houston J. E., Park R. L., Laramore G. E. // *Phys. Rev. Lett.* 1973. V. 30. P. 846.
35. Mandel T., Domke M., Kaindl G., Laubschat C., Prietsch M., Middelman U., Horn K. // *Surface Sci.* 1985. V. 162. P. 453.
36. Kaindl G., Chiang T.-C., Eastman D. E., Himpfel F. J. // *Phys. Rev. Lett.* 1980. V. 45. P. 1808.



37. *Lobashev V. M.* // Nucl. Phys. A. 2003. V. 719. P. 153.
38. *Ostrick B.* Eine kondensierte  $^{83m}\text{Kr}$ -Kalibrationsquelle für das KATRIN-Experiment. PhD Thesis. Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Germany, 2008 (in German); [http://miami.uni-muenster.de/servlets/DerivateServlet/Derivate-5046/diss\\_ostrick.pdf](http://miami.uni-muenster.de/servlets/DerivateServlet/Derivate-5046/diss_ostrick.pdf).
39. *Vénos D., Dragoun O., Špalek A., Vobecký M.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2006. V. 560. P. 352.
40. *Kovalík A., Gorozhankin V. M., Novgorodov A. F., Minkova A., Mahmoud M. A., Ryšavý M.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 1992. V. 58. P. 49.
41. *Kovalík A., Gorozhankin V. M.* // J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. 1993. V. 19. P. 1921.
42. Table of Isotopes / Eds.: R. B. Firestone, V. S. Shirley. 8th ed. New York: John Wiley and Sons Inc., 1996.
43. *Kovalík A.* Neutrino Masses in the Sub-eV Range // Intern. Workshop on Massive Neutrinos in Sub-eV Region, Bad Liebenzell, Germany, Jan. 18–21, 2001; <http://www-ik.fzk.de/~katrin/publication/index.html#liebenzell>.
44. *Špalek A.* // Surf. Interface Anal. 1990. V. 15. P. 739.
45. *Špalek A.* // Nucl. Instr. Meth. A. 1988. V. 264. P. 410.
46. *Špalek A.* // Nucl. Instr. Meth. 1982. V. 198. P. 399.
47. *Špalek A., Dragoun O.* // J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. 1993. V. 19. P. 2071.
48. *Dragoun O., Špalek A., Kovalík A., Ryšavý M., Frána J., Brabec V., Yakushev E. A., Novgorodov A. F., Liljequist D.* // Nucl. Instr. Meth. B. 2002. V. 194. P. 112.
49. *Brianc̄on Ch., Legrand B., Walen R. J., Vyllov Ts., Minkova A., Inoyatov A.* // Nucl. Instr. Meth. 1984. V. 221. P. 547.
50. *Varga D., Kádár I., Kövér Á., Cserny I., Móriik G., Brabec V., Dragoun O., Kovalík A., Adam J.* // Nucl. Instr. Meth. 1982. V. 192. P. 277.
51. *Brabec V., Dragoun O., Dragounová N., Novák J., Fišer M., Kovalík A., Ryšavý M.* // Acta Phys. Hung. 1989. V. 65. P. 183.
52. *Dragoun O., Fišer M., Brabec V., Kovalík A., Kuklík A., Mikušík P.* // Phys. Lett. A. 1983. V. 99. P. 187.
53. *Fišer M., Brabec V., Dragoun O., Kovalík A., Frána J., Ryšavý M.* // Intern. J. Appl. Rad. Isot. 1985. V. 36. P. 219.
54. *Fišer M., Dragoun O., Brabec V., Kovalík A., Ryšavý M.* // Technetium in Chemistry and Nuclear Medicine 2 / Eds.: M. Nicolini, G. Bandoli, U. Mazzi. Verona: Cortina Intern., New York: Raven Press, 1986.
55. *Fišer M., Brabec V., Dragoun O., Kovalík A., Ryšavý M., Dragounová N.* // Intern. J. Appl. Rad. Isot. 1988. V. 39. P. 943.
56. *Kovalík A., Gorozhankin V. M., Novgorodov A. F., Minkova A., Mahmoud M. A., Ryšavý M.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 1992. V. 58. P. 49.
57. *Vénos D., Špalek A., Lebeda O., Fišer M.* // Appl. Rad. Isot. 2005. V. 63. P. 323.

58. *Vénos D., Jakůbek J., Dragoun O., Pospíšil S.* Report NPI ASCR REZ, EXP-01/2007; <http://www.arXiv.org/abs/0712.3860>.
59. *Венос Д., Зборжил М., Каунар Й., Драгоун О., Бонн Й., Ковалик А., Лебеда О., Лебедев Н.А., Рышавы М., Шлоессер К., Шпалек А., Вайнхаймер Х.* // Измерит. техника. 2010. № 3. С. 41.
60. *Siegbahn K., Nordling C., Fahlman A., Nordberg R., Hamrin K., Hedman J., Johansson G., Bergmark T., Karlsson S.-E., Lindgren I., Lindberg B.* ESCA, Atomic, Molecular and Solid State Structure Studied by Means of Electron Spectroscopy. Uppsala: Almqvist and Wiksells Boktryckeri AB, 1967.
61. *Granroth S., Olovsson W., Holmström E., Knut R., Gorgoi M., Svensson S., Karis O.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2011. V. 183. P. 88.
62. *Was B., Kovalík A., Novgorodov A. F., Rak J.* // Nucl. Instr. Meth. A. 1993. V. 332. P. 334.
63. *Ryšavý M., Fišer M.* // Comp. Phys. Commun. 1983. V. 29. P. 171.
64. *Kovalík A., Gorozhankin V. M., Novgorodov A. F., Minkova A., Mahmoud M. A., Ryšavý M.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 1992. V. 58. P. 49.
65. *Inoyatov A., Filosofov D. V., Gorozhankin V. M., Kovalík A., Perevoshchikov L. L., Vylov Ts.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2007. V. 160. P. 54.
66. *Špalek A., Dragoun O.* // Czech J. Phys. B. 1974. V. 24. P. 161.
67. *Inoyatov A. Kh., Perevoshchikov L. L., Kovalík A., Dragoun O., Filosofov D. V.* // Eur. Phys. J. A. 2011. V. 47. P. 84.
68. *Inoyatov A. Kh., Perevoshchikov L. L., Kovalík A., Filosofov D. V., Yushkevich Yu. V., Ryšavý M., Lee B. Q., Kibédi T., Stuchbery A. E., Zhdanov V. S.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2014. V. 197. P. 64.
69. *Inoyatov A. Kh., Kovalík A., Filosofov D. V., Ryšavý M., Perevoshchikov L. L., Yushkevich Yu. V., Zbořil M.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2015. V. 202. P. 46.
70. *Inoyatov A. Kh., Kovalík A., Filosofov D. V., Ryšavý M., Vénos D., Yushkevich Yu. V., Perevoshchikov L. L., Zhdanov V. S.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2016. V. 207. P. 38.
71. *Inoyatov A. Kh., Filosofov D. V., Perevoshchikov L. L., Kovalík A., Gorozhankin V. M., Vylov Ts.* // J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom. 2008. V. 168. P. 20.
72. *Inoyatov A. Kh., Perevoshchikov L. L., Kovalík A., Filosofov D. V., Yushkevich Y. V., Ryšavý M., Lee B. Q., Kibédi T., Stuchbery A. E., Zhdanov V. S.* // Phys. Scripta. 2015. V. 90. P. 025402.
73. *Inoyatov A. Kh., Kovalík A., Perevoshchikov L. L., Filosofov D. V., Vénos D., Lee B. Q., Ekman J., Baimukhanova A.* // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 2017. V. 50. P. 155001.
74. *Нефедов В. И.* Рентгеноэлектронная спектроскопия химических соединений. М.: Химия, 1984. С. 32.
75. *Špalek A., Dragoun O., Kovalík A., Yakushev E. A., Ryšavý M., Frána J., Brabec V., Novgorodov A. F., Cserny I., Tóth J., Varga D., Kövér L.* // Nucl. Instr. Meth. B. 2002. V. 196. P. 357.

76. *Sevier K. D.* // *At. Data Nucl. Data Tables.* 1979. V. 24. P. 323.
77. *Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P.* // *Nucl. Instr. Meth. B.* 2010. V. 268. P. 1818; <http://www.srim.org>.
78. *Kovalík A., Yakushev E. A., Novgorodov A. F., Gorozhankin V. M., Mahmoud M.* // *Proc. of the 51st Intern. Conf. Nucl. Spectrosc. Nucl. Struct. "Features of Nuclear Excitation States and Mechanisms of Nuclear Reactions"*, Sarov, Russia, Sept. 3–8, 2001. P. 177.
79. *Kovalík A., Yakushev E. A., Reiman S. I., Novgorodov A. F., Filosofov D. V., Gorozhankin V. M., Vaga D., Kóvér L., Dragoun O., Vyllov C.* // *Ibid.* P. 239.
80. *Santry D. C.* // *Appl. Rad. Isot.* 2006. V. 64. P. 1528.
81. *Zbořil M., Bauer S., Beck M., Bonn J., Dragoun O., Jakůbek J., Johnston K., Kovalík A., Otten E. W., Schlösser K., Slezák M., Špalek A., Thümmeler T., Vénos D., Žemlička J., Weinheimer Ch.* // *JINST.* 2013. V. 8; doi: 10.1088/1748-0221/8/03/P03009.
82. *Wertheim G. K.* // *J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom.* 1979. V. 15. P. 5.
83. *Hanzawa K.* // *J. Phys. Soc. Japan.* 1998. V. 67. P. 3151.
84. *Lawrence J. M., Riseborough P. S., Parks R. D.* // *Rep. Prog. Phys.* 1981. V. 44. P. 1.
85. *Yakovin I. N.* // *Surface Science.* 2007. V. 601. P. 1001.
86. *Fadley C. S., Hagstrom S. B. M., Klein M. P., Shirley D. A.* // *J. Chem. Phys.* 1968. V. 48. P. 3779.
87. *Wertheim G. K., Crecelius G.* // *Phys. Rev. Lett.* 1978. V. 40. P. 813.
88. *Vacík J., Hnatowicz V., Köster U., Červená J., Havránek V., Pasold G. G.* // *Nucl. Instr. Meth. B.* 2006. V. 249. P. 865.
89. *Dragoun O., Špalek A., Kašpar J., Bonn J., Kovalík A., Otten E. W., Vénos D., Weinheimer Ch.* // *Appl. Rad. Isot.* 2011. V. 69. P. 672–677.
90. *Dragoun O., Špalek A., Kašpar J., Bonn J., Kovalík A., Otten E. W., Vénos D., Weinheimer Ch.* Report NPI ASCR Řež, EXP-01/2010; <http://arxiv.org/ftp/arxiv/papers/1003/1003.3758.pdf>.
91. *Kašpar J.* Am/Co Photoelectron Source for Energy Scale Monitoring of the KATRIN Neutrino Experiment. Ph.D. Thesis. Czech Techn. Univ. in Prague, 2008; <http://www-ik.fzk.de/~katrin/publications/thesis/html>.
92. Nuclitec. 2010: <http://www.nuclitec.de>.
93. *Arenz M. et al. (KATRIN Collab.)* // *Eur. Phys. J. C.* 2018. V. 78. P. 368; arXiv:1802.05227 [physics.ins-det].