

## ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЙ СПЕКТР КОНВЕРСИОННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ И ЭНЕРГИЯ ВОЗБУЖДЕНИЯ ( $1/2^+$ ) – ИЗОМЕРА УРАНА-235

*В.И.Жудов, А.Г.Зеленков, В.М.Кулаков,  
В.И.Мостовой, Б.В.Одинов*

Впервые измерен дифференциальный спектр конверсионных электронов  $^{235m}\text{U}$ . В случае внедрения изомера в поликристаллическую матрицу  $\text{UF}_4$  проведено сопоставление конверсионного спектра с рентгено-электронным спектром  $\text{UF}_4$ . На основании этого сделан вывод об участии в процессе конверсии электронов "валентной зоны"  $\text{UF}_4$ ,  $6p_{1/2}^-$ ,  $6p_{3/2}^-$  – электронов урана и, возможно,  $2s^-$  – электронов фтора. <sup>1</sup> Определена энергия возбуждения изомера  $76,8 \pm 0,5$  эВ. <sup>1</sup>

Распад "26-минутного" ( $1/2^+$ ) – изомера  $^{235m}\text{U}$  в основное ( $7/2^-$ ) – состояние  $^{235}\text{U}$  представляет собой уникальный случай конверсии ядер-

ного  $E3$ -перехода на внешних электронных оболочках атома урана [1,2]. Энергия перехода по последним данным составляет всего лишь  $74 \pm 4$  эВ [3]. Спектр конверсионных электронов  $^{235m}\text{U}$  исследовался неоднократно [4 – 7], однако структуру спектра до сих пор выявить не удавалось. Тем не менее, предполагалось, что конверсия происходит, на  $(6p_{1/2})^2$ -,  $(6p_{3/2})^4$ - и  $6d$ -оболочках урана [7].

Недавно мы измерили дифференциальный спектр конверсионных электронов  $^{235m}\text{U}$ , идентифицировали его структуру и уточнили энергию изомерного перехода. В качестве матрицы для изомера был выбран тетрафторид урана ( $\text{UF}_4$ ).

Для получения  $^{235m}\text{U}$  использовался альфа-распад образца  $^{239}\text{Pu}$  ( $25 \text{ мкг/см}^2$ ,  $100 \text{ см}^2$ ). Изомер – атомы отдачи при альфа-распаде  $^{239}\text{Pu}$  – собирался в атмосфере химически-чистого гелия ( $100 \text{ мм рт. ст.}$ ) с помощью аксиально-симметричного электростатического поля ( $100 \text{ В/см}$ ) на приповерхностную область поликристаллического слоя  $\text{UF}_4$ , нанесенного предварительно на золотую фольгу. Во избежание разрушения слоя  $\text{UF}_4$ , ток коронного разряда на поверхности слоя ограничивался до  $\sim 1 \text{ мкА}$ . Ожидалось, что дрейф вглубь слоя  $\text{UF}_4$  и дальнейший изотопный обмен будут способствовать образованию соединения  $^{235m}\text{UF}_4$ . Какое-либо накопление окислов урана на поверхности слоя  $\text{UF}_4$ , даже после выдержки его в условиях сбора изомера, не обнаружено, судя по сопоставлению рентгено-электронных спектров<sup>1)</sup>  $\text{UF}_4$ , измеренных нами до и после изомера. Рабочие источники  $^{235m}\text{U}$  имели площадь  $1,5 \times 5 \text{ мм}^2$  и обладали исходной активностью  $10^5$  расп/сек.

Измерения дифференциального спектра конверсионных электронов  $^{235m}\text{U}$  и рентгено-электронного спектра  $\text{UF}_4$ , проводились на спектрометре модели HP5950A ESCA фирмы "Hewlett-Packard" [8]. Энергетический диапазон электронно-оптической части спектрометра ( $300 - -1500$  эВ) был расширен нами до  $0 - 2500$  эВ без существенных изменений физических характеристик этого прибора. В частности, измеренная нами полуширина на половине высоты рентгено-электронной линии  $\text{Au } 4f_{7/2}$  составляла  $\sim 0,8$  эВ. Энергетическая шкала спектрометра градуировалась с точностью  $\sim 0,5$  эВ путем нахождения с помощью ЭВМ HP 2100A максимумов рентгено-электронных линий  $\text{Cu } 2p_{1/2}$ ,  $\text{C } 1s$  и  $\text{Au } 4f_{7/2}$ , энергии связи которых хорошо известны [9]. Начало отсчета шкалы энергии связи совмещалось с положением уровня Ферми ( $E_f$ ) на "нуль-срезе" (границе зоны проводимости) рентгено-электронного спектра палладия. В режиме измерений конверсионного спектра  $^{235m}\text{U}$  разрешение спектрометра, определенное нами по срезу вторично-эмиссионного пика в области электронов "нулевой энергии" изотопа  $^3\text{T}$ , было не хуже  $0,5$  эВ.

На рис. 1 показан спектр конверсионных электронов изомера  $^{235m}\text{U}$ , введенного в поликристаллическую матрицу  $\text{UF}_4$ . Это результат суммирования пяти отдельных спектров, измеренных нами с разными источниками  $^{235m}\text{U}$ . Спектр трехкратно сглажен по текущей последовательности пяти рядом стоящих точек. Аппаратурный фон вычтен. В спектре конверсионных электронов  $^{235m}\text{U}$  легко обнаруживаются три пика, положение которых соответствует кинетической энергии электронов  $42,6$ ;

<sup>1)</sup> Рентгено-электронный спектр – спектр фотоэлектронов, возникающих при облучении образца рентгеновским излучением.

52,6 и 64,4 эВ. Эти пики лежат в начале подъема очень интенсивного и асимметричного максимума с энергией около 2,7 эВ. Низкоэнергетический пик обусловлен процессами торможения электронов в слое  $UF_4$  и вторичной электронной эмиссией. Точно такой же максимум мы наблюдали в спектре низкоэнергетических электронов от радиоактивных источников  $^3T$ ,  $^{242}Cm$ ,  $^{252}Cf$  и др. В случае конверсионного спектра  $^{235m}U$  его подавляющая интенсивность свидетельствует об относительно глубоком проникновении изомера в толщу слоя  $UF_4$ . Три остальные пика спектра являются конверсионными.

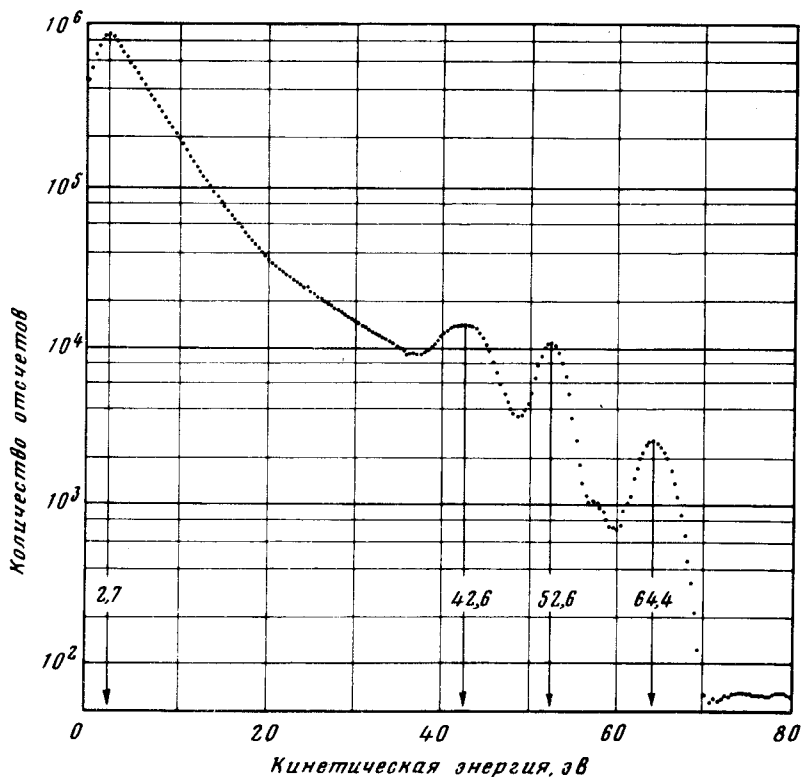


Рис. 1. Спектр конверсионных электронов  $^{235m}U$

Чтобы идентифицировать конверсионные пики и определить энергию возбуждения  $^{235m}U$ , мы сопоставили конверсионный и рентгено-электронные спектры, полученные нами с одним и тем же слоем  $UF_4$  в совершенно одинаковых условиях измерений. Совпадающие по относительному положению максимумов участки этих двух спектров приведены на рис. 2.

Плавная кривая в верхней части рис. 2 представляет область валентной зоны рентгено-электронного спектра  $UF_4$ . Кривая, построенная точками в нижней части рисунка относится к спектру  $^{235m}U$  в области его конверсионных линий.

Примем интерпретацию рентгено-электронного спектра  $UF_4$ , предложенную в работе [10]. И также применим для простоты одноэлектронные обозначения. Крайний правый пик рентгено-электронного спектра (1478,7 эВ) следует отнести к  $5f$  — электронам урана. Сразу же за ним идет собственно "(U — F)-валентная зона  $UF_4$ " с вершиной при 1474,2 эВ.

Следующий пик на 1462,4 эВ отвечает  $6p_{3/2}$  — компоненте спин орбитального дублета ( $6p_{3/2} - 6p_{1/2}$ ) урана. Другая  $6p_{1/2}$  — компонента дублета расположена вблизи 1452 эВ и почти совпадает по своему энергетическому положению с более интенсивной  $2s$ -линией фтора. †

Пики конверсионного спектра совмещаются с "валентной зоной",  $6p_{3/2}$ -пиком и ( $F 2s - U 6p_{1/2}$ ) — сдвоенным пиком рентгено-электронного спектра  $UF_4$ . Последний пик в конверсионном спектре также является двойным. На основании сопоставления спектров можно сделать вывод, что конверсия изомерного перехода в случае  $^{235m}U$  происходит на электронах "валентной зоны",  $(6p_{3/2})^4$ ,  $(6p_{1/2})^2$  — электронах урана и, по-видимому, на  $2s$ -электронах фтора.

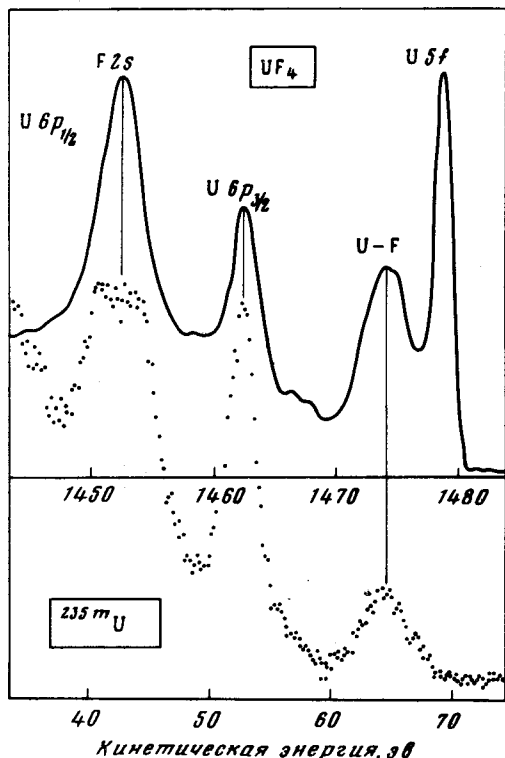


Рис. 2. Сопоставление конверсионного и рентгено-электронного спектров

Сопоставление рентгено-электронного и конверсионных спектров (см. рис. 2) позволяет определить энергию возбуждения  $^{235m}U$  без привлечения значения работы выхода образца и энергии связи электронов, участвующих в процессе конверсии изомерного перехода. Баланс энергии при возбуждении любой линии в процессах конверсии и фотоэффекта можно записать следующим образом:

$$E^* = T_K + E_{CB} + e\phi, \quad (1)$$

$$h\nu = T_\phi + E_{CB} + e\phi, \quad (2)$$

где  $E^*$  — энергия возбуждения  $^{235m}U$ ,  $h\nu$  — энергия возбуждаемого рент-

геновского излучения,  $E_{\text{св}}$  — энергия связи электронов возбуждаемой оболочки,  $e\phi$  — работа выхода материала образца, а  $T_{\text{К}}$  и  $T_{\text{Ф}}$  — кинетические энергии конверсионных и фотоэлектронов соответственно. Из соотношения (1) и (2) следует:

$$E^* = h\nu + (T_{\text{К}} - T_{\text{Ф}}). \quad (3)$$

В наших экспериментах рентгено-электронный спектр  $\text{UF}_4$  возбуждался монохроматизированным характеристическим излучением алюминия ( $\text{Al}_{K\alpha}$ ), энергия которого  $h\nu = 1486,6$  эВ. Измеренная разность  $(T_{\text{К}} - T_{\text{Ф}})$  по результатам серии пяти измерений составила  $(1409,6 \pm 0,5)$  эВ. Таким образом, энергия изомерного перехода  $(1/2^+) \rightarrow (7/2^-)$  урана — 235 определена нами в  $76,8 \pm 0,5$  эВ.

В заключение выражаем благодарность за помощь в выполнении работы А.И. Леонову и В.М. Шатинскому, а также Д.П. Гречухину, А.А. Солдатову и Ю.А. Тетерину за полезные дискуссии при обсуждении результатов.

Поступила в редакцию  
21 августа 1979 г.

### Литература

- [1] F.Asaro, I Perlman. Phys. Rev., **107**, 318, 1957.
- [2] J.R.Huizenga, C.L.Rao, D.V.Engelkemeir. Phys. Rev., **107**, 319, 1957.
- [3] I.Almeida, T.Von Egidy, P.H.M.Van Assche, H.G.Börner, W.F.Davidson, K.Schreckenbach, A.I.Namenson. Nucl. Physics., **A315**, 71, 1979.
- [4] M.C.Michel, F.Asaro, I.Pperlman. Bull. Amer. Phys. Soc., Ser. 2, №8, 394, 1957.
- [5] M.S.Freedman. F.T.Porter, Jr. P.P.Day. Phys. Rev., **108**, 836, 1957.
- [6] H.Mazaki, S.Shimizu. Phys. Lett., **23**, 137, 1966.
- [7] M.Neve de Mevergnies. Phys. Lett., **32B**, 482, 1970.
- [8] M.A.Kelly, C.E.Tyler. HP-Journal, №2, 1973.
- [9] G.Johansson, J.Hedman, A.Berndtsson, M.Klasson, R.Nilsson. J.Elect. Spectr. and Relat. Phenom., **2**, 295, 1973.
- [10] J.J.Pireaux, N.Martenson. R.Didriksson, K.Siegban. Chem. Phys. Lett., **46**, 215, 1977.