

## Поиски влияния резонансного окружения на периоды полураспада долгоживущих изомерных состояний ядер

В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баюков, А. В. Давыдов, Ю. Н. Исаев, Г. Р. Карташов, М. М. Коротков, В. М. Самойлов

Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 сентября 2003 г.

После переработки 21 октября 2003 г.

Описаны эксперименты по поискам влияния резонансного окружения на периоды полураспада  $T_{1/2}$  долгоживущих ядерных изомеров. Показано, что полученный в прежних опытах с  $^{180m}\text{Hf}$  эффект изменения  $T_{1/2}$  при охлаждении образца, по-видимому, связан с недостаточной корректностью примененной процедуры отделения  $\gamma$ -пиков от пьедесталов в измеренных  $\gamma$ -спектрах. Новый подход к решению этой проблемы показал отсутствие данного эффекта для  $T_{1/2}$  в пределах точности опытов в 1.2%. Однако для  $^{103m}\text{Rh}$  найдено различие величин  $T_{1/2}$  для твердого и жидкого  $\gamma$ -источников в  $2.25 \pm 0.77\%$ . Контрольный опыт с изомером  $^{80m}\text{Br}$ , как и ожидалось, не показал различия величин  $T_{1/2}$  для двух температур в пределах 1%.

PACS: 21.10.Tg

В работах Высоцкого и др. [1–3] обсуждается механизм воздействия на периоды полураспада возбужденных состояний ядер посредством возмущения спектра нулевых электромагнитных колебаний, служащих, по мнению авторов работ [1–3], причиной спонтанных электромагнитных переходов в ядрах. Это возмущение осуществляется путем помещения вблизи  $\gamma$ -источников массивных экранов, содержащих те же атомы, что и источники, но с ядрами в основных состояниях. В работах [4, 5] экспериментально выявлены эффекты, которые можно было истолковать, как подтверждение теоретических предсказаний Высоцкого и др [1–3].

Некоторое время назад нами были проделаны эксперименты [6] с долгоживущими изомерами  $^{180m}\text{Hf}$  и  $^{87m}\text{Sr}$  с целью обнаружения эффектов влияния резонансного окружения на периоды полураспада  $T_{1/2}$  этих изомеров. Если действительно массивный образец искажает спектр нулевых электромагнитных колебаний вблизи места своего расположения, то это, по нашему мнению, может быть только результатом виртуального обмена фотонами между ядрами образца и полем нулевых колебаний. При этом определенная часть ядер образца будет находиться в виртуальном возбужденном состоянии, а интенсивность спектра нулевых колебаний в соответствующей энергетической области будет ослаблена и, следовательно, станет в меньшей степени влиять на  $\gamma$ -распад ядер источника, что приведет к увеличению  $T_{1/2}$ .

Заметим, однако, что по мнению некоторых авторитетных физиков спонтанные переходы в ядрах

никак не связаны с нулевыми электромагнитными колебаниями (см., например, [7]).

Идея наших опытов заключалась в том, чтобы путем сужения  $\gamma$ -линий испускания и поглощения исследуемых ядер усилить предполагаемое влияние резонансного образца на спектр нулевых колебаний. Это можно сделать, в частности, путем охлаждения образца и находящегося рядом  $\gamma$ -источника. Если энергия изомерного перехода мала, то для соответствующих  $\gamma$ -квантов при охлаждении возникнут мессбауэровские условия и в спектрах испускания и поглощения появятся с заметной (а иногда и с большой) интенсивностью чрезвычайно узкие линии. Для  $\gamma$ -переходов большой энергии возникновение узких мессбауэровских линий невозможно в сколько-нибудь заметной степени, но охлаждение образцов приводит к уменьшению доплеровских ширин  $\gamma$ -линий. При охлаждении  $\gamma$ -источника и резонансного образца от комнатной температуры до 77 К доплеровские ширины убывают приблизительно в 2 раза. Таким образом, опыт сводится к измерениям  $T_{1/2}$  при двух температурах: 293 и 77 К. Эксперименты [6] показали, что изменение  $T_{1/2}$  изомера  $^{180m}\text{Hf}$  составило при таком охлаждении  $2.99 \pm 0.87\%$ , а для изомера  $^{87m}\text{Sr}$  –  $0.77 \pm 0.53\%$ . Такая картина и ожидалась, поскольку в  $\gamma$ -спектре  $^{180m}\text{Hf}$  есть линии малой энергии, для которых возможно мессбауэровское сужение, а при изомерном переходе ядра  $^{87m}\text{Sr}$  испускается  $\gamma$ -линия большой энергии (388 кэВ), для которой эффект Мессбауэра практически не наблюдаем.

Однако полученные в этом опыте данные для изомера  $^{180m}\text{Hf}$  вызывали у нас некоторые сомнения.

Во-первых, изомерный переход этого ядра происходит между 5-м и 4-м возбужденными состояниями, и для того, чтобы ядра резонансного окружения влияли требуемым образом на спектр нулевых колебаний, нужно чтобы определенная их часть находилась в 4-м возбужденном состоянии. Для этого приходится принять малоубедительную гипотезу о многоступенчатом виртуальном возбуждении ядер резонансного образца. Во-вторых, опыт [6] был проделан с образцом порошка окиси гафния. Поэтому оставалась не исключенной возможность того, что причиной наблюдавшегося снижения  $T_{1/2}$  было постепенное уплотнение порошка  $\text{HfO}_2$  при охлаждении и соответствующее медленное приближение эффективно центра  $\gamma$ -источника к детектору. Однако опыты, проделанные с образцами металлического гафния, тоже показали, что охлаждение образцов ведет к росту  $T_{1/2}$  в масштабах, сравнимых с эффектом для окиси гафния ( $3.6 \pm 1.2\%$ ). Основные же опасения вызывала примененная процедура отделения пиков полного поглощения  $\gamma$ -квантов в измеренных спектрах от довольно высоких пьедесталов. При работе с изомером  $^{180m}\text{Hf}$  мы определяли интенсивности  $\gamma$ -линий с энергиями 215.3, 332.3 и 443.2 кэВ. Применявшаяся в работе [6] (и в упомянутых опытах с металлическим гафнием) процедура выделения  $\gamma$ -пиков состояла в вычитании пьедесталов, определяемых по небольшой области чисел отсчетов в каналах анализатора, лежащих сразу за соответствующим пиком (выше по энергии). Заметим, что пьедесталы под  $\gamma$ -линиями 215.3 и 332.3 кэВ существенно выше, чем под линией 443.2 кэВ. Все пьедесталы растут по мере увеличения числа облучений одного и того же образца вследствие постепенного накопления сравнительно долгоживущего ( $T_{1/2} = 42.4$  суток) нуклида  $^{181}\text{Hf}$ , в спектре которого, помимо  $\gamma$ -линии 345.8 кэВ, имеется интенсивная  $\gamma$ -линия с энергией 482 кэВ. В свое время было обнаружено, что периоды полураспада, определяемые по временным зависимостям  $\gamma$ -линий 215.3 и 332.3 кэВ, систематически оказываются несколько большими, чем соответствующие величины, определяемые по  $\gamma$ -линии 443.2 кэВ. Кроме того, наблюдалось различие значений  $T_{1/2}$ , определяемых по разному числу последовательных измерений интенсивности  $\gamma$ -излучения. Казалось, что распад слегка замедляется с ростом общей длительности измерений. Такая ситуация могла быть связана с неполным вычитанием пьедестала при определении площадей  $\gamma$ -пиков. Малая примесь относящихся к пьедесталам отсчетов, спадающая со временем медленнее, чем лежащий над пьедесталом  $\gamma$ -пик, должна была сильнее исказить истинный закон распада именно

в конце временного интервала измерений, когда интенсивность  $\gamma$ -пика была много меньше, чем в его начале. В этих условиях рост измеряемой величины  $T_{1/2}$  при охлаждении образца гафния мог оказаться связанным с малым вкладом в пьедестал дополнительных чисел отсчетов от  $\gamma$ -квантов, относящихся к долгоживущей активности, которые могли попасть в детектор в результате рассеяния на жидком азоте. Все это указывало на недостаточную корректность примененной методики вычитания пьедесталов. Поэтому опыты с металлическим гафнием были повторены, причем, помимо прежней процедуры вычитания пьедесталов, при обработке данных был применен и метод определения пьедесталов по части спектра, лежащей ниже  $\gamma$ -линии по энергии (в той достаточно близкой к  $\gamma$ -пику области, где числа отсчетов можно было считать не зависящими от номера канала анализатора). При такой методике, конечно, терялась часть отсчетов, относящихся к  $\gamma$ -пику, но зато оставшаяся часть наверняка не содержала отсчетов, относящихся к пьедесталу.

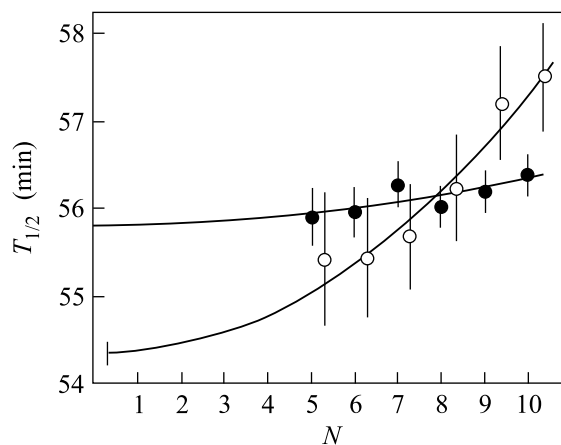
Измерения выполнены на той же установке, что и в работе [6]. Исследуемые образцы металлического гафния представляли собой пластинки площадью  $2.5 \times 2.5$  см и толщиной 1 мм. Две такие пластинки со слегка срезанными углами помещались в цилиндрический графитовый контейнер одна над другой, повернутые относительно друг друга на угол  $45^\circ$ . Контейнеры закрывались графитовыми крышками на криостойком клее ВТ-200 (порошок нитрида бора в эпоксидном клее). Два таких контейнера поочередно облучались нейтронами от  $^{236}\text{Pu}$ -источника в течение 12 ч. Измерения шли в течение 11 ч, каждое измерение  $\gamma$ -спектра длилось 1700 с при интервалах между началами последовательных измерений по 30 мин. Было отмечено, что прежняя процедура вычета пьедесталов по-прежнему приводит к разным значениям  $T_{1/2}$  для трех  $\gamma$ -линий. В то же время новая методика дала одинаковые в пределах погрешностей опытов значения  $T_{1/2}$  для всех трех  $\gamma$ -линий и полностью исключила зависимость результата от общей длительности измерений. Данные этих опытов показывают, что новая методика вычитания пьедесталов приводит к хорошо согласующимся результатам для всех  $\gamma$ -линий, причем, при обеих температурах. Опираясь на более корректную новую методику выделения  $\gamma$ -пиков, можно утверждать, что в пределах погрешностей наших экспериментов понижение температуры не оказывает влияния на  $T_{1/2}$  изомера  $^{180m}\text{Hf}$ , то есть результат нашей прежней работы не подтвердился. Изменение величины  $T_{1/2}$  при переходе от одной температуры к другой равно

$$T_{1/2}(77\text{ K}) - T_{1/2}(293\text{ K}) = (5.366 + 0.049) - \\ (5.395 + 0.045) = -0.029 + 0.067\text{ ч.}$$

Это составляет  $-0.54 \pm 1.20\%$  от  $T_{1/2}(293\text{ K})$ . Данный результат, конечно, требует дальнейшей экспериментальной проверки в лаборатории, для которой оказалось бы возможным получение изомера  $^{180m}\text{Rh}$  с  $\gamma$ -активностью, существенно превосходящей доступную в наших опытах.

Второй эксперимент был выполнен с изомером  $^{103m}\text{Rh}$  по совершенно другой методике. Поскольку дебаевская температура металлического родия велика (480 К [8]), то уже при комнатной температуре вероятность испускания (поглощения)  $\gamma$ -кванта с энергией 39.75 кэВ ядром родия без отдачи равна  $\sim 0.46$ . Поэтому было решено сравнить периоды полураспада изомера  $^{103m}\text{Rh}$ , измеренные при комнатной температуре, с металлическим образцом родия и с образцом водного раствора нитрата родия. Ожидалось, что в первом случае из-за присутствия в  $\gamma$ -спектре узкой мессбауэровской компоненты большой интенсивности может произойти более сильное искажение спектра нулевых колебаний в резонансной для  $\gamma$ -перехода области, чем в случае жидкого образца. Металлические образцы родия представляли собой диски диаметром 35 мм, вырезанные из фольги толщиной 0.1 мм. Для жидких образцов были изготовлены кварцевые цилиндрические полностью закрытые ампулы диаметром 44 мм и высотой 18 мм с плоским тонким дном. В верхней части ампул имелись капилляры, через которые с помощью шприца ампулы наполнялись раствором нитрата родия с концентрацией родия 10%, после чего капилляры запаивались. В каждой из двух ампул содержалось по 12.5 г раствора. Образцы облучались быстрыми нейтронами от  $^{236}\text{Pu}$ -Ве-источника, и образование изомера  $^{103m}\text{Rh}$  происходило в результате неупругого рассеяния нейтронов. При облучении могло вследствие захвата нейтронов возникать некоторое количество радиоактивных ядер  $^{104}\text{Rh}$ . Этот нуклид имеет изомерное возбужденное состояние, для которого  $T_{1/2} = 4.41$  мин, в то время как распад из основного состояния  $^{104}\text{Rh}$  идет с  $T_{1/2} = 44$  с. Поскольку измерение  $T_{1/2}$  изомера  $^{103m}\text{Rh}$  велось путем регистрации рентгеновых лучей родия, то в начальный период измерений, кроме рентгеновского излучения, связанного с распадом  $^{103m}\text{Rh}$ , могла присутствовать небольшая доля этого излучения, относящаяся к распаду  $^{104m}\text{Rh}$ . Заметим, что при облучении нейтронами образцов раствора нитрата родия возникавшая доля короткоживущей активности была существенно больше, чем при работе с металлическими образцами. Это связано, конечно,

со смягчением спектра нейтронов при их рассеянии в жидкости (сечение образования изомера  $^{104m}\text{Rh}$  при захвате тепловых нейтронов ядрами  $^{103m}\text{Rh}$  равно  $10 \pm 1$  бн [9]). Промежутки времени между началами последовательных измерений интенсивности рентгеновых лучей составляли 45 мин, и данные первого из таких измерений не учитывались при расчете  $T_{1/2}$ ; тем самым вклад рентгеновых лучей от распада  $^{104}\text{Rh}$  исключался. Каждый цикл измерений состоял из 10 45-минутных серий, и величины  $T_{1/2}$  определялись по результатам 4, 5, 6, 7, 8 и 9 измерений, начиная со второго. Как видно из приведенных на рисунке данных, все шесть вариантов определения  $T_{1/2}$  для металлического родия согласуются между



Результаты первого цикла опытов с изомером  $^{103m}\text{Rh}$ . По оси абсцисс — число последовательных измерений интенсивности рентгеновых лучей, по которым определялось соответствующее значение периода полураспада (включая не учитываемое первое). Черные кружки относятся к измерениям с металлическими образцами родия, а светлые — к опытам с раствором нитрата родия; для большей ясности светлые кружки слегка сдвинуты вправо относительно своих истинных положений. Сплошные кривые — результаты аппроксимации экспериментальных данных функциями вида  $a + bN^2$  по методу наименьших квадратов

собой в пределах погрешностей, хотя просматривается слабая тенденция к росту  $T_{1/2}$  с увеличением общей продолжительности измерений. Это, скорее всего, связано с несколько большей площадью фонового пьедестала под пиками рентгеновского излучения по сравнению с лежащей выше по энергии областью, по которой определялся вычитаемый пьедестал. Данные измерений с раствором жидкого родия демонстрируют гораздо более сильный рост  $T_{1/2}$  с увеличением общей продолжительности измерений. Такой эффект мог бы, в частности, возникнуть в результате посте-

Образцы	$T_{1/2}$ по 9 измерениям, начиная с 4-го (мин)	$T_{1/2}$ по 8 измерениям, начиная с 5-го (мин)	$T_{1/2}$ по 7 измерениям, начиная с 6-го (мин)
Металлического Rh	$55.84 \pm 0.25$	$55.93 \pm 0.32$	$55.79 \pm 0.38$
Раствора нитрата Rh	$54.75 \pm 0.49$	$55.20 \pm 0.68$	$54.72 \pm 0.94$

пенного опускания в жидком образце эффективного центра распределения радиоактивного родия и соответствующего сближения его с детектором. Не исключено, что в результате радиолиза раствора при его облучении нейтронами в нем образуются тяжелые, содержащие родий, конгломераты, постепенно повышающие концентрацию родия в нижних слоях раствора вплоть до выпадения в осадок. Когда измерения с жидкими образцами были окончены, то на дне ампул действительно были обнаружены небольшие количества темного, очень мелкого осадка. Заметим, что ионы металлов, появляющиеся в растворах в результате диссоциации молекул солей, в осадок не выпадают.

Для определения истинных величин периодов полураспада изомерного состояния  $^{103m}\text{Rh}$  в образцах обоих типов следует экстраполировать зависимости величин  $T_{1/2}$  от общей продолжительности измерений к нулевому значению этой продолжительности. Это было сделано путем представления таких зависимостей функциями вида  $a + bN^2$ , где  $N$  – число последовательных измерений интенсивности рентгеновского излучения для определения данного значения  $T_{1/2}$ , включая не учитываемое первое. Для металлического родия эта процедура дала величину  $T_{1/2} = 55.79 \pm 0.23$  мин, а для раствора нитрата родия  $54.33 \pm 0.61$  мин. Разница составляет  $1.46 \pm 0.65$  мин или  $2.7 \pm 1.2\%$ .

Второй цикл измерений с изомером родия был проделан в другом временном режиме. Интервалы времени между началами последовательных измерений интенсивности рентгеновых лучей составляли 15 мин и в каждом опыте делалось по 12 измерений. Таким образом, общая продолжительность одного опыта составляла 3 ч, что соответствовало длительности первых 4-х измерений в опытах предыдущего экспериментального цикла. В таких условиях к концу опыта еще не успевает заметно опуститься эффективный центр жидкого  $\gamma$ -источника, и можно сравнить полученные величины  $T_{1/2}$  для обоих типов источников, используя данные 9 измерений каждого опыта, начиная с 4-го, то есть, выдержав 45 мин для исключения вклада короткоживущей активности  $^{104m}\text{Rh}$ .

Второй цикл опытов дал следующие величины периодов полураспада:

Металлические образцы:  $T_{1/2} = 55.84 \pm 0.25$  мин

Жидкие образцы:  $T_{1/2} = 54.75 \pm 0.49$  мин

Видно, что эти величины хорошо согласуются с результатами экстраполяции данных первого цикла измерений.

Усреднение данных обоих циклов измерений приводит к таким результатам:

Металлические образцы:  $T_{1/2} = 55.82 \pm 0.19$  мин.

Жидкие образцы:  $T_{1/2} = 54.59 \pm 0.38$  мин.

Разность этих величин составляет  $2.25 \pm 0.77\%$  относительно периода полураспада изомера  $^{103m}\text{Rh}$  в жидких образцах.

Чтобы убедиться в том, что короткоживущие компоненты не влияют заметным образом на значения  $T_{1/2}$ , определенные по 9 последовательным измерениям, начиная с четвертого, были рассчитаны также величины  $T_{1/2}$  по 8 и 7 измерениям, то есть, начиная с 5-го и 6-го измерений. Соответствующие данные представлены в таблице. Явных тенденций к росту  $T_{1/2}$  с увеличением промежутка времени до первого учитываемого измерения в пределах погрешностей опытов не видно для обоих типов образцов.

Наши данные можно сравнить с результатами работ [10, 11], в которых, насколько можно понять из их текстов, использовались жидкие образцы, содержащие весьма чистый изомер  $^{103m}\text{Rh}$ , и работы [12], в которой применялись металлические образцы, изготовленные электролизом радиоактивного родия. Средний результат работ [10, 11] таков:  $T_{1/2} = 56.115 \pm 0.005$  мин. В статье [12] для образцов металлического родия дается величина  $T_{1/2} = 56.6 \pm 0.4$  мин. Разница этих величин в пределах погрешностей не противоречит нашим данным, но, конечно, невысокая точность значения  $T_{1/2}$  из работы [12] не позволяет считать данное различие статистически значимым. Следует также обратить внимание на то, что значения  $T_{1/2}$  для обоих типов источников в работах [10–12] превосходят соответствующие величины, полученные нами.

Третий опыт был сделан с изомером  $^{80m}\text{Br}$ . Этот изомер может быть получен в реакции захвата нейтронов ядрами  $^{79}\text{Br}$ . Изомерное состояние с энергией 85.9 кэВ распадается путем последовательного испускания  $\gamma$ -квантов с энергиями 48.9 и 37 кэВ. Первый из

$\gamma$ -переходов сильно конвертирован, а  $\gamma$ -кванты 37 кэВ испускаются с интенсивностью 0.39 на один распад  $^{80m}\text{Br}$ . Период полураспада этого изомера измерялся с помощью регистрации  $\gamma$ -квантов 37 кэВ. Поскольку стабильного изотопа  $^{80}\text{Br}$  в природе не существует, то создать резонансное окружение для  $\gamma$ -активных ядер  $^{80m}\text{Br}$  невозможно. И этот опыт с самого начала рассматривался как контрольный. Он выполнялся аналогично опытам с изомером  $^{180m}\text{Hf}$  путем сравнения результатов измерений при комнатной температуре и при 77 К. Образцы были изготовлены из порошка бромистого калия, плотно упакованного в цилиндрические графитовые контейнеры с крышками, герметизированными криостойким клеем ВТ-200. Внутренние диаметры и высота контейнеров составляли 30 и 20 мм, соответственно. Каждый цикл определения  $T_{1/2}$  состоял из 20 последовательных измерений интенсивности  $\gamma$ -линии 37 кэВ с помощью детектора из германия высокой чистоты с тонким входным окном. Промежутки времени между началами последовательных измерений составляли 30 мин. Значения  $T_{1/2}$ , определенные по разным количествам последовательных измерений в одном цикле (от всех 20 до первых 15), в пределах погрешностей опыта совпадают между собой. Период полураспада, определенный при комнатной температуре по 20 измерениям в цикле, равен  $4.754 \pm 0.032$  ч, а полученный при 77 К оказался равным  $4.791 \pm 0.034$  ч. Разница составляет  $0.037 \pm 0.047$  ч или  $0.78 \pm 0.99\%$ . Таким образом, в данном случае в пределах погрешностей наших измерений различий в периодах полураспада изомера  $^{80m}\text{Br}$  не обнаружено, как и ожидалось. Единственным изомером, для которого проявилось различие периодов полураспада для условий, когда, казалось бы, по-разному должен был быть возмущен спектр нулевых электромагнитных колебаний, остается пока

$^{103m}\text{Rh}$ . Однако точность определения этого различия невелика и требуются дальнейшие исследования распада этого изомера, может быть и по другой методике, например, путем сравнения периодов полураспада при нормальной и очень высокой температурах металлического родия.

Работа выполнялась при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 01-02-16577) и частично при поддержке INTAS (проект # 97-31566).

1. В. И. Высоцкий, В. И. Воронцов, Р. Н. Кузьмин, Письма в ЖТФ **10**, 300 (1984).
2. V. I. Vysotskii, *Techn. Digest of 1-st Int. Induced Gamma Emission Workshop*, PC-IGE Foundation, Bucharest, Romania, 1997, p. 81.
3. V. I. Vysotskii, *Phys. Rev.* **C58**, 337(1998).
4. V. I. Vysotskii, V. P. Bugrov, A. A. Kornilova et al., *Hyperfine Interactions* **107**, 277 (1997).
5. В. И. Высоцкий, А. А. Корнилова, А. А. Сорокин, С. И. Рейман, *Laser Physics* **11**, 442 (2001).
6. В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баюков, А. В. Давыдов и др., Письма в ЖЭТФ **73**, 430 (2001).
7. В. Л. Гинзбург, УФН **140**, 687(1983).
8. P. Boolchand, *J. Quant. Spectr. & Radiat. Transfer* **40**, 777 (1988).
9. S. F. Mughabghab, M. Divadeenam, and N. E. Holden, *Neutron Cross Sections*, 1981, New York, Academic Press, v. 1, p. 45–1.
10. E. Günther, K. Knauf, and K. F. Walz, *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **24**, 87 (1973).
11. F. Lagoutine, J. Legrand, and C. Bac, *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **29**, 269 (1978).
12. A. Vuorinen, *Proc. of a Symposium on the Standardization of Radionuclides*, Vienna, 10-14/X-1966, Int. At. En. Agency, Vienna, 1967.