

Осциллирующий радиоактивный распад долгоживущих изомеров с промежуточными мессбауэровскими уровнями

С. К. Годовиков

Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына МГУ им. М. В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 апреля 2002 г.

Наблюдались осцилляции на кривых радиоактивного распада изомеров ^{119m}Sn и ^{125m}Te . Предложена феноменологическая модель явления на основе нелинейного уравнения распада.

PACS: 21.10.Tg, 23.20.Lv, 76.80.+y

В работе [1], опубликованной в 1998 г., экспериментально были найдены условия, при которых возможно существенное изменение константы радиоактивного распада λ до величины $\Delta\lambda/\lambda = -(0.114 \pm 0.027)$ на примере изомера ^{119m}Sn . Схема распада этого изотопа приведена на рис.1. Энергия изомерного уровня 89.53 кэВ, $T_{1/2} = 293$ дня, энергия промежуточного мессбауэровского уровня 23.87 кэВ. Идея состояла в том, чтобы окружить ядра-изомеры продуктами собственного распада, то есть стабильным изотопом ^{119}Sn . С этой целью к источнику вплотную был прикреплен экран из вещества “черного” мессбауэровского поглотителя (с очень широким спектром поглощения), содержащего очень много стабиль-

ного изотопа ^{119}Sn (до 15 мг/см²). Предполагалось, что взаимодействие безотдачного мессбауэровского излучения и безотдачного переизлучения от стабильных ядер может создать в локальных микрообластях долгоживущие ($\sim 10^{-8}$ с) по ядерным масштабам интерференционные картины на основе стоячих волн, в пучностях которых могут оказаться ядра, находящиеся в предраспадном состоянии. Эта ситуация может привести к резкому изменению ядерных параметров. Был сделан прогноз о том, что кривая распада в таких экспериментальных условиях в принципе может иметь осцилляторный характер [1–3].

Дальнейшие исследования позволили углубить и расширить эти представления. А именно, следующий опыт [4] был поставлен так, что источник со всех сторон был окружен резонансным экраном, то есть использовалась геометрия телесного угла 4π . Это привело к тому, что эффект возрос более чем в 2 раза: $\Delta\lambda/\lambda = -(0.25 \pm 0.03)$. Возникла также идея окружения ядер-излучателей продуктами распада на атомном уровне путем перемешивания стабильных и радиоактивных изотопов (внутренний экран). Результат был еще более впечатляющим: $\Delta\lambda/\lambda = -(0.32 \pm 0.01)$ [4]. И, наконец, был осуществлен переход к исследованиям на другом изотопе – ^{125m}Te . Схема распада этого изомера, получаемого из материнского ядра ^{125}Sb ($T_{1/2} = 2.7$ года), приведена на рис.1. Энергия изомерного уровня здесь 145.0 кэВ, $T_{1/2} = 58$ дней, энергия промежуточного мессбауэровского уровня 35.6 кэВ. Здесь также была использована схема эксперимента с внутренним экраном. Результат был таков, что наблюдалась кривая распада, на которой были выявлены участки торможения распада, его остановки, “генерации излучения” и ускорения распада [4, 5]. Полученные результаты носили пионерский характер и требовали развития исследований в этом направлении. Реализации этой цели и посвящена настоящая работа.

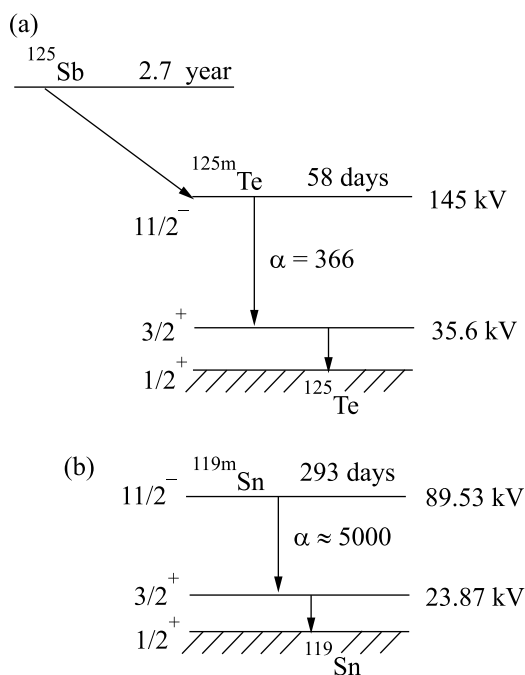


Рис.1. Схемы распада изотопов: а – ^{125}Sb (^{125m}Te), б – ^{119m}Sn , α – коэффициент конверсии

жучего мессбауэровского уровня 23.87 кэВ. Идея состояла в том, чтобы окружить ядра-изомеры продуктами собственного распада, то есть стабильным изотопом ^{119}Sn . С этой целью к источнику вплотную был прикреплен экран из вещества “черного” мессбауэровского поглотителя (с очень широким спектром поглощения), содержащего очень много стабиль-

Методика эксперимента. Для того, чтобы резко усилить наблюдаемые на изотопе ^{119m}Sn эффекты, решено было провести длительные (~ 3 года) измерения кривой распада источника, пересыщенного искусственно введенным стабильным изотопом. С этой целью был синтезирован объект активностью 0.5 мКи на основе соединения BaSnO_3 , в котором на 1 радиоактивный атом было введено $2 \cdot 10^4$ стабильных. Такая модель соответствует источнику, “возраст” которого составляет $\sim 14T_{1/2}$. Метод регистрации излучения – сцинтилляционный с использованием кристалла $\text{NaJ}(\text{Tl})$ толщиной 1 мм. В этом и всех других опытах регистрировалось излучение промежуточного (мессбауэровского) уровня, распад которого идентично отражает распад верхнего (изомерного) уровня. Использовался мультискалярный режим работы многоканального анализатора с разверткой по 256 каналам. Измеряемый параметр J – число импульсов в 1 с на 1 канал. Электронные параметры установки и геометрическое расположение источник-регистратор сохранялись стабильными с высокой точностью в течение нескольких лет.

Аналогичный опыт был поставлен со стандартным мессбауэровским источником $^{125}\text{Sb}(^{125m}\text{Te})$ в матрице Cu , который был изготовлен в 1991 г. и имел начальную активность 5.4 мКи. К моменту начала измерений в нем накопилось 14 стабильных ядер ^{125}Te на 1 радиоактивное, то есть внутри источника сформировался достаточно активный внутренний экран. Этот объект соответствует случаю источника “старения” (в отличие от случая, описанного выше). Вековое равновесие между ^{125m}Te и ^{125}Sb достигается в первый год жизни источника, а далее скорость производства изотопа ^{125m}Te равна скорости распада материнского ядра (рис.1).

И, наконец, с целью проведения контрольных, реперных измерений был изготовлен немессбауэровский источник в виде водного раствора $^{119m}\text{SnCl}_2$, который был помещен в специальную ампулу, прозрачную для γ -излучения. Активность этого объекта была 0.5 мКи, условия опыта идентичны описанным выше.

Все эксперименты проводились при 293 К.

Результаты экспериментов. Результаты первого эксперимента представлены на рис.2. Начало измерений 12.03.99 г. По оси ординат отложена величина $\ln J$, по оси абсцисс – время в сутках. Сплошная линия – нормальный, обычный ход распада с $T_{1/2} = 293$ дня. Из рис.2 совершенно очевидно, что распад здесь носит колебательный характер с периодом ~ 380 дней. Отчетливо выявляются три “волны”

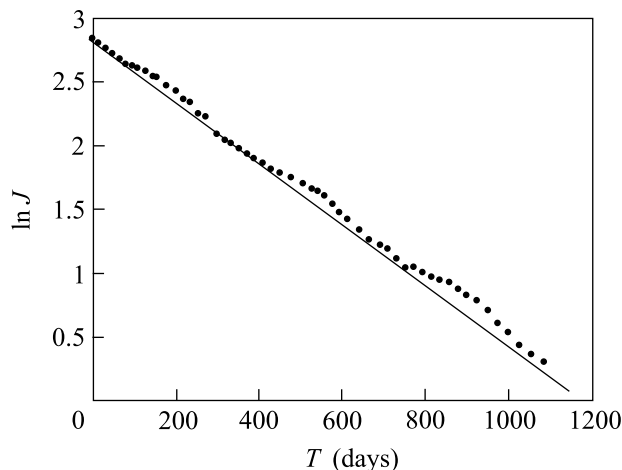


Рис.2. Кривая распада источника $\text{Ba } ^{119m}\text{SnO}_3$, в который введено $2 \cdot 10^4$ стабильных ядер ^{119}Sn на одно радиоактивное. Ошибки – в пределах размера кружка, сплошная линия – нормальный закон распада ($T_{1/2} = 293$ дня)

колебаний, размах которых нарастает со временем. На кривой можно видеть участки торможения распада (например, $\Delta\lambda/\lambda = -0.34$ при $t > 750$ дней), нормального хода и ускорения распада (например, $\Delta\lambda/\lambda = 0.42$ при $t > 920$ дней). Строго говоря, само понятие константы распада здесь теряет смысл, поскольку λ становится функцией времени. Таким образом, многократное окружение ядер-излучателей продуктами собственного распада имеет своим следствием осцилляции на кривой распада. Следует, однако, отметить, что в среднем и в целом нормальный закон распада здесь является все-таки доминирующим.

Результаты измерений с источником $^{125}\text{Sb}(^{125m}\text{Te})$ представлены на рис.3. Начало измерений 20.09.00 г. Очевидно, что здесь также наблюдается колебательный процесс с переменным периодом в несколько сотен дней. Очень ярко выражен начальный участок кривой (до 110 дней), где ускорение распада достигает 2.36 раза ($\Delta\lambda/\lambda = 1.36$). Далее кривая начинает притормаживаться, а при $t = 216$ дней впервые наблюдается феномен “остановки” распада ($dJ/dt = 0$), сменяющийся еще более острым феноменом “генерации” излучения ($dJ/dt > 0$), новой “остановкой” ($t = 259$ дней) и обычным распадом. Затем этот цикл в основных чертах повторяется, но с более выраженным пиком “генерации” излучения. Общий ход кривой опять-таки следует нормальному закону распада ($T_{1/2} = 2.7$ года).

На рис.4 представлены результаты измерений с немессбауэровским источником ^{119m}Sn . Начало из-

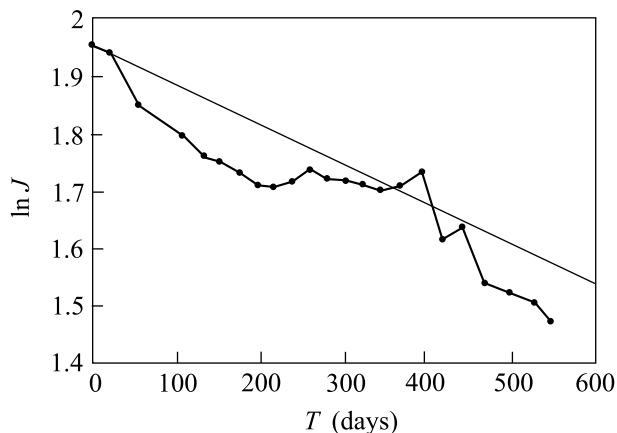


Рис.3. Кривая распада “старого” источника ^{125}Sb (^{125m}Te) в матрице Cu. Ошибки – в пределах размера кружка, сплошная линия – нормальный закон распада ($T_{1/2} = 2.7$ года)

мерений 20.07.01 г. Отчетливо видно, что радиоактивный распад здесь вполне стандартен и не имеет

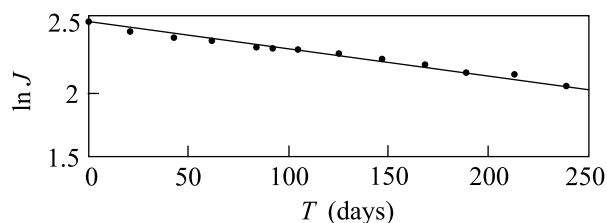


Рис.4. Кривая распада источника $^{119m}\text{SnCl}_2$ в водном растворе. Ошибки – в пределах размера кружка, сплошная линия – нормальный закон распада ($T_{1/2} = 293$ дня)

каких-либо аномалий, описанных выше. Это есть несомненное свидетельство мессбауэровской природы феномена осцилляций распада.

Обсуждение результатов. Совершенно очевидно, что полученные результаты не могут быть описаны традиционным уравнением радиоактивного распада

$$dN/dt = -\lambda N, \quad (1)$$

где N – число радиоактивных ядер в данный момент времени. Модификация этого уравнения была принята в работах [4, 5] и выглядит она так:

$$dN/dt = -\lambda(N - AN^3), \quad (2)$$

где A – некая константа пропорциональности. Физический смысл выражения $-AN^3$ связан с тем, что это есть число ядер, которые “выбывают” из процесса распада или “задерживаются”, получая неопределенно большую величину $T_{1/2}$. Механизм их возникновения представляется следующим образом. Ядра-излучатели и ядра-поглотители формируют систему стоячих волн мессбауэровского излучения, в пучнос-

тях которых могут оказаться еще не распавшиеся ядра-изомеры. В результате возникает система “ядро – волна” с двумя возбужденными энергетическими уровнями, кратными по величине энергии (для $^{125m}\text{Te} - 145/35.6 = 4$). В таких условиях вполне может возникнуть эффект динамической синхронизации колебаний [6], то есть ситуация, когда заселенный нижний уровень влияет на параметры верхнего. Иными словами, распад верхнего уровня затруднен по причине того, что нижний уровень “занят” значительную часть времени. Результат этого процесса – образование “задержанных” (retarded) ядер. Предположим, что в данный момент времени t число излучающих ядер в единице объема равно λN . Вероятность образования стоячей волны как продукта типично парного взаимодействия пропорциональна квадрату концентрации взаимодействующих компонентов, то есть $\sim (\lambda N)^2$. При этом предполагается, что на каждое ядро-излучатель найдется ядро-рассеиватель, что действительно соблюдается в данных экспериментах. Количество “задержанных” ядер есть произведение вероятности образования системы стоячих волн на число радиоактивных ядер, то есть $\sim (\lambda N)^2 \cdot N$, или равно AN^3 . Аналитическое решение (2) приведено в [5]. Оно приводит к степенному закону “торможения” распада, который, однако, при больших t приобретает традиционный экспоненциальный вид. Самой замечательной особенностью (2) является возможность осцилляции распада. Действительно, $dN/dt = 0$ при $N = \pm \sqrt{1/A}$. Решение (2) со знаком минус означает, что (2) может приобрести вид

$$dN/dt = +\lambda(N - AN^3), \quad (3)$$

что означает возможность “генерации” излучения, или бифуркации распада.

Возникает естественный вопрос – откуда может возникнуть “автокатализ”, “генерация” излучения по типу уравнения (3)? Источник этого процесса может быть только один – “задержанные” ядра, которые при достижении некоторого порогового уровня концентрации начинают переходить в обычное состояние, и притом переходить быстро, в виде коллективного сбора энергии и “вспышки” γ -излучения.

Уравнения (2) и (3) удобно проанализировать в терминах понятий фазовой плоскости: скорость (dN/dt) – координата (N). Для определенности можно рассмотреть случай условий эксперимента с ^{125m}Te (рис.3). Для него в 2001 г. исходное число ядер в источнике $N_0 = 0.177 \cdot 10^{16}$ и $A = 3.19 \cdot 10^{-31}$.

Константа λ для ^{125}Sb равна $70.3 \cdot 10^{-5}$ 1/день. Экстремумы на кривых (2) и (3) существуют при

$$dN/dt = \lambda \cdot 2/3 \cdot \sqrt{\frac{1}{3A}}. \quad (4)$$

В соответствии с этими исходными условиями на рис.5 (кривая *a*) представлена зависимость dN/dt от

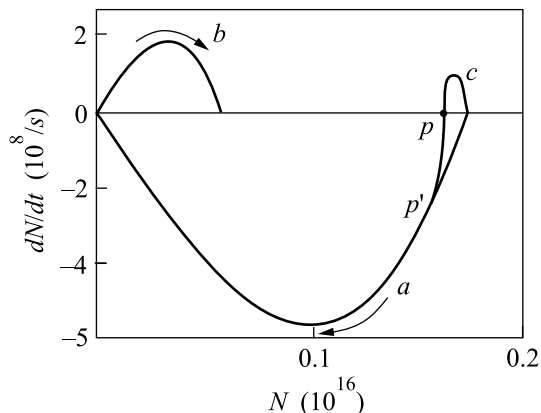


Рис.5. Графическое представление выражений (2) и (3) на фазовой плоскости: скорость (dN/dt) – координата (N). Кривая *a* соответствует выражению (2), кривая *b* – (3), кривая *c* – суммированному представлению (2) и (3)

N для уравнения (2). Время здесь является параметром и его направление в соответствие с общепринятыми нормами для такого класса дифференциальных уравнений соответствует движению справа налево (указано стрелкой) [7]. Предположим далее для определенности, что число “заторможенных” ядер в данном источнике составляет, например, $1/3$ от числа нормальных. Это увеличивает параметр A до $2.78 \cdot 10^{-30}$, что в 8.7 раза больше, чем для случая нормальных ядер. Уравнению (3) соответствует кривая *b*, представленная на рис.5. Естественно, что здесь $N_0 = 0$, так как при $t = 0$ “генерации” еще нет. Направление времени здесь соответствует движению слева направо.

Очевидно, что комбинация кривых *a* и *b* рис.5 позволяет объяснить все наблюдаемые результаты. Действительно, если вести отсчет времени от крайних точек по оси N , то суммарный результат есть сумма кривых *a* и *b*. Для получения зависимости dN/dt от t необходимо корректно суммировать кривые *a* и *b* для каждого момента времени t . Корректность заключается в том, что кривая *b* “пробегается” чрезвычайно быстро, поскольку “генерация” излучения, ее “притормаживание” и дальнейший ускоренный распад происходят за ~ 100 дней (рис.3), что в ~ 10 раз быстрее средней тенденции обычного распада ($T_{1/2} = 2.7$ года = 985 дней). Пример такого

суммирования приведен на рис.5 (кривая *c*). Из него видно, что суммарная кривая, начинающаяся с уровня $dN/dt = 0$, сразу входит в режим “генерации” ($dN/dt > 0$), который постепенно “притормаживается” и достигает точки *p*, где опять $dN/dt = 0$, далее происходит ускоренный распад (более крутая кривая, чем AN^3) вплоть до точки *p'*, где всплеск кривой заканчивается. Но это не означает, что “вспышка” излучения может быть только однократной. Вновь накопленные в результате “вспышки” заторможенные ядра, а также часть ранее неиспользованных ядер способны через некоторое время обеспечить новую “вспышку”, что и наблюдается на рис.3.

Рис.5 можно в общих чертах использовать и для трактовки поведения кривой распада ^{119m}Sn (рис.2). Отличия состоят в том, что кривая типа *b* рис.5 здесь слабо выражена, а распад типа *a* начинается где-то левее точки *p'*, в результате чего суммарная кривая никогда не достигает уровня $dN/dt = 0$. Наблюдается лишь “рябь”, осцилляции на нормальном ходе распада. По-видимому, это связано с тем, что в ^{119}Sn кратность по энергии изомерного и мессбауэровского уровней не столь точна ($89.53/23.87 = 3.75$) и динамическая синхронизация колебаний здесь не столь эффективна.

В заключение следует отметить, что процесс управления распадом описываемого класса изомеров можно довести, в принципе, до уровня “катастрофы”, то есть мгновенной разрядки изомерного уровня. Для этого необходимо создать тем или иным способом высокую концентрацию “задержанных” ядер как минимум в двух идентичных источниках, а затем в нужный момент времени соединить их вплотную друг с другом. Ожидаемая “вспышка”, несомненно, будет иметь коллективный (а возможно, и когерентный) характер режима сверхизлучения. Это раскрывает широчайшее поле физических и технологических применений обнаруженного явления.

Работа поддержана грантом НИИЯФ МГУ за 2002г.

1. С. К. Годовиков, Письма в ЖЭТФ **68**, 599 (1998).
2. S. K. Godovikov, Laser Physics **8**, 1100 (1998).
3. С. К. Годовиков, Известия Академии наук, сер. физ. **63**, 1397 (1999).
4. S. K. Godovikov, Laser Physics **10**, 1293 (2000).
5. С. К. Годовиков, Известия Академии наук, сер. физ. **65**, 1063 (2001).
6. И. И. Блехман, Синхронизация в природе и технике, М.: Наука, 1981.
7. В. Каннигхэм, Введение в теорию нелинейных систем, Л.-д.: Госэнергоиздат, 1962.