

Исследование влияния температуры на периоды полураспада долгоживущих изомеров ^{180m}Hf и ^{87m}Sr

В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баяков, А. В. Давыдов¹⁾, Ю. Н. Исаев, Г. Р. Карташов, М. М. Коротков, В. М. Самойлов
Государственный научный центр Российской Федерации “Институт теоретической и экспериментальной физики”, 117259
Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 марта 2001 г.

Описаны эксперименты по измерению периодов полураспада долгоживущих изомеров ^{180m}Hf и ^{87m}Sr при комнатной температуре и при 77 К с использованием массивных образцов HfO_2 , $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ и SrCO_3 . Изомерные состояния соответствующих ядер образовывались при облучении образцов нейтронами от Pu–Be-источника. Согласно теории В. И. Высоцкого и др., окружение γ -активных ядер большим количеством тех же ядер в основном состоянии должно приводить к росту $T_{1/2}$ вследствие искажения спектра нулевых электромагнитных вакуумных колебаний вблизи значения энергии ядерного уровня. Снижение температуры образца ведет к сужению γ -линий, особенно для мессбауэровских низкоэнергичных переходов, что усиливает резонансное влияние на спектр нулевых колебаний. Для изомера ^{180m}Hf , в верхнем γ -переходе которого уносится энергия 57.55 кэВ, наблюдалось при охлаждении образца увеличение $T_{1/2}$ на $2.99 \pm 0.87\%$. В случае ^{87m}Sr , не имеющего в схеме распада мессбауэровских γ -линий, относительное изменение $T_{1/2}$ оказалось равным $0.77 \pm 0.53\%$.

PACS: 21.10.Tg

В эксперименте по исследованию мессбауэровского γ -резонанса ^{109}Ag [1] были получены указания на то, что соответствующая γ -линия (88 кэВ) если и уширена, то чрезвычайно мало. С вероятностью 67% фактор уширения лежит в пределах от 1 до 3, причем не исключено и меньшее единицы значение этого фактора, что соответствует сужению γ -линии. В работах Высоцкого и др. [2–4] обсуждается механизм влияния резонансного окружения на вероятность γ -распада возбужденных ядер, связанный с искажением спектра нулевых электромагнитных вакуумных колебаний вблизи γ -источника при внесении в эту область пространства массивного образца, содержащего те же ядра в основном состоянии. Поскольку именно нулевые колебания служат, по мнению авторов [2–4] причиной γ -распада, то ослабление спектра нулевых колебаний в области ядерного резонанса приводит к уменьшению вероятности γ -распада и к соответствующему сужению излучаемой γ -линии.

Ситуация с распадом возбужденных ядер ^{109m}Ag в нашем эксперименте [1] как раз соответствует условиям, в которых должен проявиться эффект Высоцкого и др. Гамма-источник представляет собой монокристаллическую серебряную пластинку, в которую термодиффузией внедрен материнский нуклид ^{109}Cd . Образующиеся при его распаде возбужденные

ядра ^{109m}Ag оказываются в окружении атомов серебра, среди которых изотоп ^{109}Ag содержится в количестве 48.2%, и, в соответствии с теорией Высоцкого и др., должны испытывать воздействие искаженного спектра нулевых колебаний.

Для того чтобы прямым путем убедиться в том, что вероятность γ -распада ядер ^{109m}Ag действительно уменьшается, если эти ядра находятся в массивном серебряном образце, надо сравнить измеренные временные законы распада этих ядер для массивного серебряного γ -источника и для радиоактивного образца ^{109}Cd , не содержащего серебра. Для реализации первого случая можно было бы использовать эксперимент по γ -резонансной активации ядер серебра, аналогичный опыту [5], но с γ -источником, изготовленным не на циклотроне, а по шадящей технологии термодиффузионного внедрения ^{109}Cd в монокристалл серебра. Если γ -линия мало или совсем не уширена, то гораздо более сильный эффект активации ядер серебра, чем наблюдавшийся в [5], можно получить, используя во много раз более слабые γ -источники. Это позволит с достаточной точностью измерить закон распада возбужденного изомерного состояния ^{109}Ag . Второй опыт надо осуществлять, используя очень слабые активности ^{109}Cd в отсутствие следов серебра.

Поскольку мы не располагаем в настоящее время требуемой установкой для осуществления опытов по γ -активации ядер ^{109}Ag , провести прямое изме-

¹⁾e-mail: Andrey.Davydov@itep.ru

рение среднего времени жизни этих ядер в изомерном состоянии в условиях резонансного окружения пока не представляется возможным. Поэтому были проведены опыты с другими изомерами – с ^{180m}Hf и ^{87m}Sr . Схемы распада этих изомеров показаны на рис.1. Для того чтобы резонансное окружение ядер

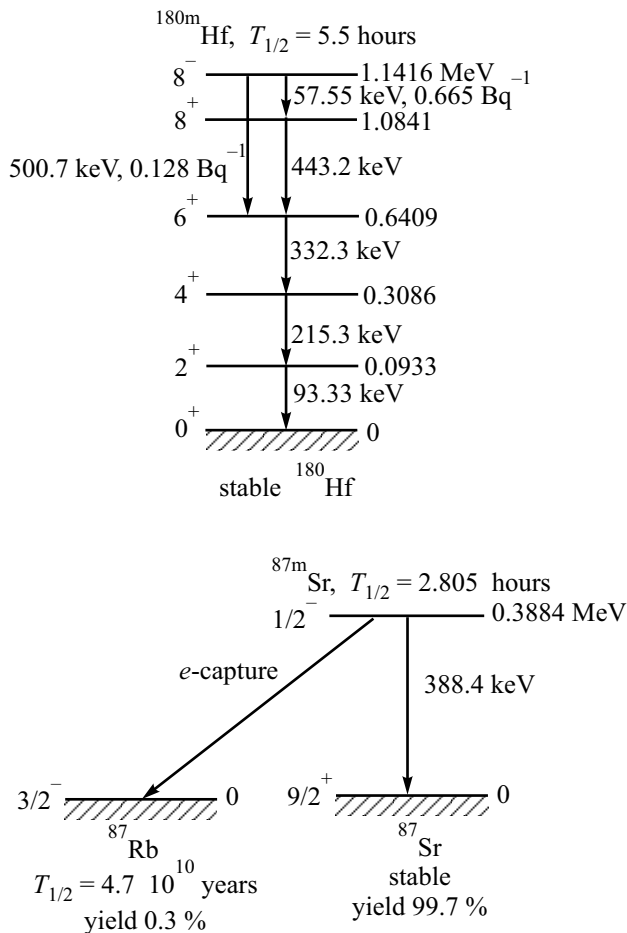


Рис.1. Схемы распада изомеров ^{180m}Hf и ^{87m}Sr

^{180m}Hf могло влиять на период полураспада состояния 8^- , необходимо, чтобы ядра ^{180}Hf , принадлежащие этому окружению, каким-то образом оказались бы в состоянии 8^+ . Тогда их воздействие на спектр нулевых электромагнитных колебаний вблизи энергии γ -линии 57.55 кэВ было бы аналогичным влиянию двухуровневых ядер, находящихся в основном состоянии, это влияние можно представить себе в виде ненаблюдаемого обмена виртуальными фотонами между ядрами и полем нулевых колебаний. Если именно такой обмен имеет место, то становится возможным многоступенчатый процесс последовательного виртуального возбуждения уровней ядра ^{180}Hf и при этом с определенной конечной вероятностью

часть этих ядер могла бы оказаться в виртуальном состоянии 8^+ . При охлаждении массивного гафниевого γ -источника будут уменьшаться ширины всех γ -линий, испускаемых в каскаде переходов, начинающегося с линии 57.55 кэВ. При этом определенные доли интенсивностей γ -линий 93.3 кэВ и 57.55 кэВ будут испытывать очень сильное мессбауэровское сужение, а для линий более высоких энергий будут снижаться их доплеровские ширины (приблизительно в 2 раза при переходе от комнатной температуры к 77 К). Это сужение должно привести к более сильному искажению спектра нулевых колебаний в резонансной для перехода 57.55 кэВ области, что, в свою очередь, сказалось бы на величине периода полураспада состояния 8^- .

В случае изомера ^{87m}Sr энергия γ -линии слишком велика (388.4 кэВ), чтобы заметным образом мог проявиться эффект Мессбауэра, поэтому при охлаждении стронциевого источника меняется только доплеровская ширина его γ -линии. Следовательно, эффект уменьшения $T_{1/2}$ для ^{87m}Sr должен быть, по нашим ожиданиям, меньшим, чем для ^{180m}Hf .

Экспериментальная установка для опытов по проверке этих рассуждений очень проста. Внутри пенопластового теплового экрана установлен металлический сосуд, на дно которого кладется достаточно массивный образец исследуемого вещества, содержащего находящиеся в изомерном состоянии ядра. Под этим примитивным криостатом находится Ge(Li)-детектор, соединенный с амплитудным анализатором Nokia LP 4900В. Использовались образцы HfO_2 (19 г) и $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ (20 г) во фторопластовых ампулах с внутренним диаметром 35 мм. Опыт с каждым образцом протекал следующим образом. На ночь образец ставился на облучение нейтронами от Pu-Be-источника интенсивностью $\sim 2 \cdot 10^7$ нейтрон/с. К образованию изомера приводила как реакция (n, γ) с медленными нейтронами на изотопах ^{179}Hf и ^{86}Sr , соответственно, так и неупругое рассеяние быстрых нейтронов на изотопах ^{180}Hf и ^{87}Sr . В течение последующего дня с помощью Ge(Li)-детектора измерялся период полураспада изомера, причем, если в какой-то день измерения шли при комнатной температуре, то на следующий день – при 77 К, для чего в металлический сосуд с образцом заливался жидкий азот. При измерениях с гафнием период полураспада определялся в отдельности по γ -линиям 215.3, 332.3 и 443.2 кэВ и результаты усреднялись.

Одной из основных проблем, связанных с обработкой результатов измерений, был выбор наиболее корректного метода определения интенсивностей γ -линий 215.3, 332.3 и 443.2 кэВ изомера ^{180m}Hf и

388.4 кэВ изомера ^{87m}Sr . Кроме ^{180m}Hf , вклады в измеряемый γ -спектр дают и другие долгоживущие радиоактивные изотопы гафния, образующиеся одновременно с ^{180m}Hf при облучении нейтронами образца гафния естественного изотопного состава. В результате оказывается, что перечисленные γ -линии лежат на довольно высоких пьедесталах, обусловленных низкоэнергичными “хвостами” γ -линий как самого ^{180m}Hf , так и других γ -излучающих изотопов гафния. Среди последних наибольшие вклады в формирование пьедесталов дают ^{181}Hf , испытывающий β -распад с периодом полураспада $T_{1/2} = 42.4$ суток, и ^{175}Hf , распадающийся путем электронного захвата с периодом полураспада 70 суток. Наиболее интенсивная γ -линия ^{181}Hf (точнее, продукта его распада – ^{181}Ta) имеет энергию 482 кэВ и, следовательно, дает вклады в пьедесталы под всеми тремя γ -линиями ^{180m}Hf . В γ -спектре ^{175}Hf основную роль играет γ -линия 343.4 кэВ, излучаемая в 86.9% всех распадов и дающая вклады в пьедесталы под γ -линиями 215.3 и 332.3 кэВ.

Были опробованы несколько способов разделения γ -пиков и пьедесталов. Первый из этих способов состоял в том, что с некоторым запасом (то есть с выходом на левую и правую части пьедесталов) задавались границы области суммирования отсчетов в пиках γ -линий и равные этому интервалу области пьедесталов с обеих сторон от пика. Интенсивность γ -линии определялась как разность между суммой отсчетов под пиком и полусуммой отсчетов в левом и правом отрезках пьедестала. Этим способом, в частности, были получены данные, представленные в [6, 7]. У этого способа, однако, есть недостаток: в части пьедестала слева от γ -пика (ниже по энергии) содержится некоторое количество отсчетов, относящихся к самому пику. Поэтому найденная интенсивность γ -линии оказывается заниженной. В дальнейшем были испытаны два других метода определения пьедестала с использованием только правой (большей по энергии) части спектра за пиком. Один из этих способов состоял в линейном описании по методу наименьших квадратов правой части пьедестала и в экстраполяции полученной прямой в область под пиком. Этот способ годился для γ -линий 215.3 и 443.2 кэВ, но не для пика 332.3 кэВ, выше которого на близком к нему расстоянии находятся γ -линии 343.4 кэВ (^{175}Hf) и 345.8 кэВ (^{181}Hf). Поэтому в случае пика 332.3 кэВ пьедестал под ним определялся усреднением чисел отсчетов в 8 каналах выше пика по энергии. Выяснилось, однако, что этот метод дает слишком большую погрешность определения площади пиков, прежде всего вследствие погрешности

вычисленного коэффициента наклона прямой, мало отличающегося от нуля. Второй способ, который и был в конечном счете принят для обработки результатов измерений, состоял именно в простом усреднении чисел отсчетов в лежащей выше пика части пьедестала, взятой в сравнительно небольшом числе каналов (~ 20 для пиков 215.3 и 443.2 кэВ и 8 для пика 332.3 кэВ; заметим, что максимум пика 443.2 кэВ находился в 1065-м канале), и в вычитании полученной средней величины из чисел отсчетов в каждом канале анализатора под пиком. Правомомерность такого усреднения полностью подтверждена критерием χ^2 .

Всего было выполнено по два цикла измерений с каждым изомером. В первом цикле опытов с ^{180m}Hf период полураспада изомера измерялся по 5 раз при каждой температуре, причем одно измерение продолжалось 9–10 ч. В результате получено:

$$293 \text{ К} : T_{1/2} = 5.471 \pm 0.043 \text{ ч},$$

$$77 \text{ К} : T_{1/2} = 5.655 \pm 0.042 \text{ ч},$$

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = 3.4 \pm 1.1\%.$$

Для ^{87m}Sr в первом цикле опытов получена следующая величина относительного изменения $T_{1/2}$ при переходе от комнатной температуры к 77 К:

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = -1.1 \pm 2.0\%.$$

Во втором цикле измерений была слегка увеличена толщина теплоизоляционного слоя пенопласта под металлическим сосудом, в который помещались γ -источники. Это привело к некоторому увеличению расстояния от источника до детектора и к соответствующему снижению скорости счета. Поскольку повторный опыт с ^{180m}Hf проводился в течение того же времени, что и первый, результат этого опыта получен с несколько большей погрешностью, чем в первом случае. Относительное изменение $T_{1/2}$ при переходе от 273 к 77 К таково:

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = 2.4 \pm 1.4\%.$$

Усреднение согласующихся между собой результатов двух опытов с ^{180m}Hf дало следующие цифры:

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = 2.99 \pm 0.87\%.$$

Чтобы убедиться в том, что наблюдаемое изменение $T_{1/2}$ изомера ^{180m}Hf не связано с постепенным приближением γ -источника к детектору вследствие очень медленного процесса сжатия нижнего слоя пенопласта при его охлаждении залитым в криостат

жидким азотом, был проделан следующий контрольный опыт. Под фторопластовый контейнер с необлученным образцом окиси гафния был подложен γ -источник, представлявший собой серебряную фольгу с внедренным в нее нуклидом ^{57}Co . В течение достаточно длительного времени измерялась скорость счета γ -квантов 122 кэВ от этого источника при комнатной температуре и при 77 К. Результаты измерений приведены на рис.2. Видно, что при обеих темпера-

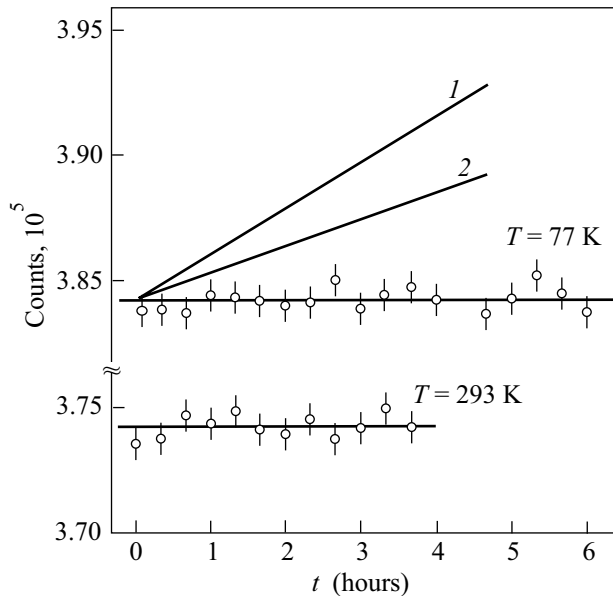


Рис.2. Зависимости скорости счета от времени t в контрольном опыте с тонким γ -источником (^{57}Co в серебряной фольге) при комнатной температуре и при 77 К. Линии 1 и 2 показывают, как должны были бы лечь значения скоростей счета, полученные при температуре 77 К в первом и втором циклах измерений, соответственно, чтобы наблюдаемый рост $T_{1/2}$ изомера $^{180\text{m}}\text{Hf}$ объяснялся постепенным сближением γ -источника с детектором вследствие медленного сжатия пенопласта при охлаждении

турах скорость счета стабильна. Для того чтобы эффект приближения источника к детектору мог объяснить наблюдаемый рост $T_{1/2}$ в первом и втором циклах опытов с гафнием, нужно, чтобы экспериментальные точки, полученные при температуре 77 К, легли на линии 1 и 2, соответственно. Таким образом, данное объяснение роста $T_{1/2}$ не проходит. Остается, однако, возможность того, что порошок HfO_2 очень медленно оседает внутри контейнера при температуре 77 К (заметим, что со стронциевыми образцами этого по-видимому не происходит). Поэтому необходимо провести аналогичные опыты с монокристаллическими образцами металлического гафния.

Повторный эксперимент с изомером $^{87\text{m}}\text{Sr}$ был проведен с образцами SrCO_3 массой 50 и 38 г. Измерения велись непрерывно в течение 10 суток поочередно с обоими образцами при периодически меняющихся температурных условиях. Каждое измерение $T_{1/2}$ занимало 6 ч. Для относительного изменения $T_{1/2}$ изомера $^{87\text{m}}\text{Sr}$ при переходе от 293 к 77 К во втором цикле опытов получена величина

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = 0.82 \pm 0.54\%.$$

Вместе с данными первого эксперимента имеем для $^{87\text{m}}\text{Sr}$:

$$\Delta T_{1/2}/T_{1/2} = 0.77 \pm 0.53\%.$$

Таким образом, данные наших опытов с $^{180\text{m}}\text{Hf}$ и $^{87\text{m}}\text{Sr}$ качественно согласуются с вышеприведенными модельными предсказаниями, и есть основания допустить, что подобный эффект должен проявляться и в наших экспериментах с изомером $^{109\text{m}}\text{Ag}$ и, следовательно, сужение γ -линии в условиях этих опытов вполне возможно. Заметим, что аналогичные эффекты наблюдались в работах [8–11].

Второй цикл экспериментов с $^{180\text{m}}\text{Hf}$ и $^{87\text{m}}\text{Sr}$ выполнялся при поддержке INTAS (контракт # 97-31566).

1. В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баюков, В. М. Гелис и др., *Laser Physics* **10**, 952 (2000).
2. В. И. Высоцкий, В. И. Воронцов, Р. Н. Кузьмин, *Письма в ЖТФ* **10**, 300 (1984).
3. V.I. Vysotskii, *Techn. Digest of 1-st Intern. Induced Gamma Emission Workshop*, PC-IGE Foundation, Bucharest, 1997, p. 81.
4. V.I. Vysotskii, *Phys. Rev.* **C58**, 337 (1998).
5. Г. Е. Бизина, А. Г. Беда, Н. А. Бургов, А. В. Давыдов, *ЖЭТФ* **45**, 1408 (1963).
6. В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баюков, А. В. Давыдов и др., *Сборник научных трудов Научной сессии МИФИ-2000*, Москва, 2000, том 7, стр. 211.
7. В. Г. Алпатов, Ю. Д. Баюков, А. В. Давыдов и др., *Тезисы докладов 50-го Совещания по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра*, Санкт-Петербург, 2000, стр. 193.
8. V.I. Vysotskii, V.P. Bugrov, A.A. Kornilova et al., *Hyperfine Interactions* **107**, 277 (1997).
9. С. К. Годовиков, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 599 (1998).
10. С. К. Годовиков, *Laser Physics* **10**, 1293 (2000).
11. В. И. Высоцкий, А. А. Корнилова, А. А. Сорокин, С. И. Рейман, *Программа и тезисы докладов Международной конференции "Эффект Мессбауэра: магнетизм, материаловедение, гамма-оптика"*, Казань, 2000, стр. 99.