

ОБНАРУЖЕНИЕ ЭФФЕКТА ВЛИЯНИЯ ИМПУЛЬСНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА РАДИОАКТИВНЫЙ РАСПАД ^{137}Cs В КОЛЛОИДНОМ РАСТВОРЕ ЗОЛОТА. ПЕРВЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

С. Н. Андреев^{а, 1}, *Е. В. Бармина*^а, *В. Г. Калинин*^б,
А. В. Симакин^а, *А. А. Смирнов*^б, *В. И. Стегайлов*^б, *С. И. Тютюнников*^б,
Г. А. Шафеев^{а, 6}, *И. А. Щербаков*^а

^а Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, Москва

^б Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

⁶ Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва

Экспериментально исследовано влияние лазерного облучения водных растворов изотопов ^{137}Cs и ^{134}Cs в присутствии наночастиц золота на их гамма-активность при интенсивности лазерного излучения в среде порядка 10^{12} Вт/см². Установлено, что лазерное воздействие приводит к уменьшению гамма-активности проб. Это изменение активности не сопровождается избыточным гамма-излучением в той области спектра, в которой происходит спонтанный распад обоих изотопов. Обсуждаются возможные механизмы влияния лазерного облучения на активность изотопов на основе усиления лазерного поля на плазмонном резонансе наночастиц.

The influence of laser irradiation on the gamma-activity of aqueous solutions of both ^{137}Cs and ^{134}Cs is experimentally studied in presence of Au nanoparticles at laser intensity of order of 10^{12} W/cm². It is found that laser irradiation reduces the gamma-activity of both nuclides. This decrease is not accompanied by excessful gamma radiation in the spectral range of gamma-activity of their spontaneous decay. Possible mechanisms are discussed of the influence of laser radiation on the activity of isotopes on the basis of laser field enhancement on the plasmon resonance of nanoparticles.

PACS: 42.62.-b; 61.46.-w; 78.66.-w

В целом ряде работ сообщалось о наблюдении воздействий разного рода излучений относительно малых интенсивностей (10^{10} – 10^{12} Вт/см²) на распад радиоактивного вещества. В частности, в [1] было обнаружено уменьшение активности радиоактивного цезия в водном растворе после воздействия на него лазерным излучением. Измерения гамма-активности водного раствора цезия проводились с временной задержкой до и после облучения. Регистрация гамма-спектра раствора непосредственно во время лазерного

¹E-mail: efea@mail.ru

облучения с необходимым спектральным и временным разрешением не проводилась. В пользу существования обнаруженного эффекта говорила достаточно большая статистика результатов измерений.

В данной работе представлены результаты экспериментов с радиоактивным ^{137}Cs , в которых регистрация спектров гамма-излучения осуществлялась непрерывно до, во время и после лазерного облучения с необходимым спектральным, временным и пространственным разрешением и фиксированной геометрией эксперимента.

Схема эксперимента представлена на рис. 1. В работе использовался импульсный лазер Nd:YAG с длиной волны излучения 1064 нм, длительностью импульса по полувысоте 10 нс и частотой повторения импульсов 10 кГц. Энергия в импульсе составляла 2 мДж. Лазерное излучение фокусировалось с помощью асферической линзы сквозь прозрачное для него окно стеклянной кюветы на золотую мишень, помещенную в водный раствор соли хлорида цезия ^{137}Cs с активностью 330 Бк. Типичный объем раствора ^{137}Cs составлял 2 мл. Осуществлялось сканирование лазерного луча по поверхности мишени, приводящее к образованию наночастиц золота, концентрация которых в растворе определялась временем лазерного облучения и расстоянием от перетяжки лазерного пучка до поверхности мишени. На поверхности наночастиц, оказавшихся в перетяжке лазерного пучка, происходил пробой и инициировался плазменный разряд. Время существования плазменного разряда совпадало по порядку величины с длительностью лазерного импульса и составляло около 10–20 нс. Излучение плазмы имело сплошной спектр. Лазерное облучение водных растворов при указанных выше параметрах приводит к диссоциации молекул воды и выделению водорода и кислорода. Это происходит вследствие диссоциации молекул H_2O под действием прямого удара электронов плазмы лазерного пробоя [2].

Кювета охлаждалась проточной водой, поэтому нагрев всего объема раствора во время лазерной экспозиции не превышал нескольких градусов. Кювета фиксировалась на расстоянии нескольких миллиметров от чувствительной части детектора гамма-излучения на основе сверхчистого германия (Canberra) с охлаждением жидким азотом с относительной эффективностью 30 %, но без механического контакта с ней. Объем раствора много

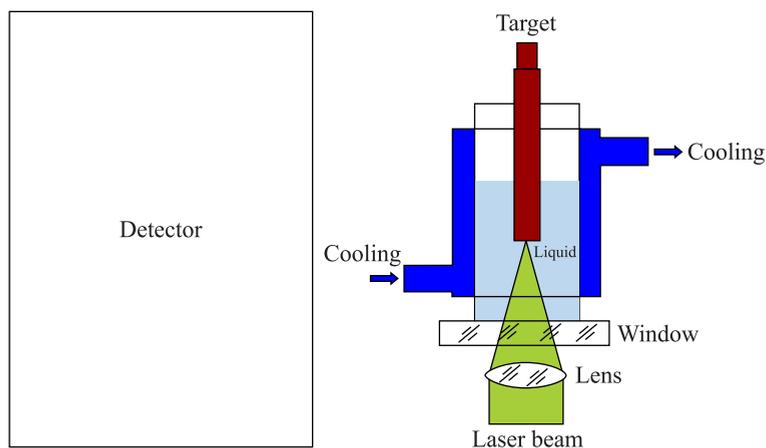


Рис. 1. Схема эксперимента (пояснения в тексте)

меньше, чем объем кристалла, поэтому раствор можно считать источником, близким точечному. Ядро ^{137}Cs распадается по двум основным каналам с вероятностью 95 и 5 % соответственно: это распад в возбужденное состояние ядра бария ^{137m}Ba , релаксация которого в основное состояние ^{137}Ba сопровождается излучением гамма-кванта с энергией 662 кэВ, и прямой распад в основное состояние ядра ^{137}Ba без излучения гамма-квантов. Активность пробы ^{137}Cs измерялась по площади под спектральным пиком гамма-кванта с энергией 662 кэВ с помощью специальной программы. Значения активности сохранялись в памяти компьютера с частотой 1 раз в секунду, причем время накопления сигнала выбиралось таким, чтобы ошибка измерений не превышала 0,5 %. Для контроля стабильности работы детектора вблизи него располагался образец водного раствора другого изотопа цезия — ^{134}Cs , не подвергавшийся лазерному облучению. Измерения активности этого изотопа с энергией гамма-квантов 605 кэВ позволяли контролировать процесс измерений активности ^{137}Cs .

Неизменность геометрии измерений, постоянное нахождение пробы в одной и той же кювете, непрерывность измерений активности пробы непосредственно до, во время и после облучения с высоким временным, спектральным и пространственным разрешением минимизируют методические ошибки в эксперименте.

На рис. 2 приводятся результаты измерений активности пробы до, во время и после лазерного облучения. Естественно предположить, что ход кривой на первом участке — до включения лазера — описывается зависимостью, соответствующей бета-распаду ядра ^{137}Cs с периодом полураспада 30 лет. В относительно малом временном интервале наблюдения она воспринимается как константа. Второй участок — временной интервал лазерного облучения — характеризуется включением нового механизма, индуцированного в условиях нашего эксперимента лазерным излучением и его взаимодействием с облучаемой средой. Временной ход кривой на третьем участке — после выключения лазера — аналогичен ходу на первом участке.

Измеренная зависимость активности качественно совпадает с предыдущими наблюдениями по лазерному воздействию на раствор ^{137}Cs [1]. Принципиально важным ре-

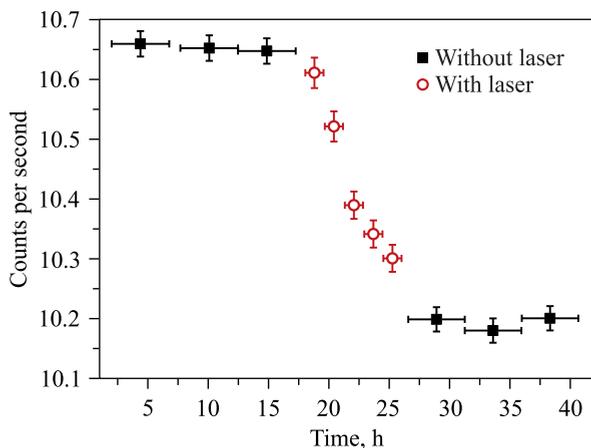


Рис. 2. Временной ход активности образца в отсчетах в секунду раствора ^{137}Cs на линии 662 кэВ. Темные квадраты — без лазерного облучения; светлые кружки — при лазерном облучении

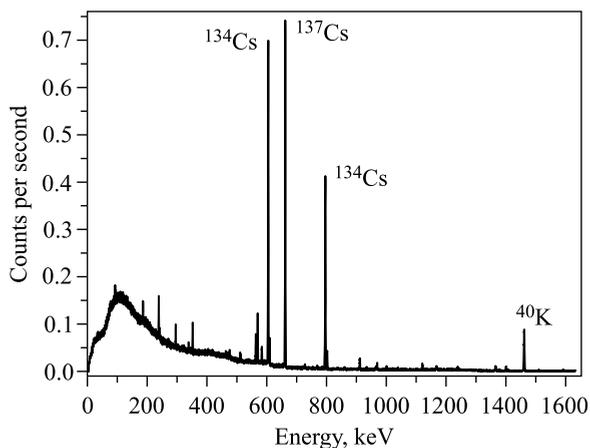


Рис. 3. Полный спектр смеси двух изотопов цезия

зультатом, полученным в данной работе, является отсутствие превышения уровня гамма-излучения над начальным уровнем активности во всем временном интервале, т. е. уменьшение концентрации радиоактивного цезия не сопровождается избыточным излучением гамма-квантов с энергией 662 кэВ. Это позволяет сделать вывод о том, что основной канал распада никак не затрагивается, а стимулирование бета-распада осуществляется по новому механизму.

В последующих сериях экспериментов образец ^{134}Cs использовался как реперный, а образец ^{137}Cs подвергался лазерному облучению. Использование реперного образца позволяет судить о стабильности работы гамма-детектора. Спектры обоих изотопов приведены на рис. 3.

Наиболее сильной линией ^{134}Cs является пик при 605 кэВ. Однако для регистрации реперного сигнала в ряде экспериментов использовались другие линии этого изотопа, более удаленные от флуктуирующего низкоэнергетического фона. Результаты по измерениям активности раствора ^{137}Cs в присутствии репера ^{134}Cs приведены на рис. 4. Видно, что активность облучаемого лазерным излучением раствора ^{137}Cs снижается до нового стационарного уровня, тогда как активность реперного образца ^{134}Cs при энергии гамма-квантов 605 кэВ остается неизменной.

Аналогичный результат получается при использовании другой линии реперного раствора ^{134}Cs в результате повторных лазерных облучений одного и того же раствора ^{137}Cs . В этой серии экспериментов в качестве репера использовалась активность ^{134}Cs на линии 795 кэВ. Активность раствора ^{137}Cs , подвергаемого лазерному облучению, снижается после первых двух лазерных экспозиций, но остается в пределах ошибки после третьего облучения (рис. 5). К этому времени с раствором происходят существенные изменения: изменяется функция распределения наночастиц по размерам, и они начинают осаждаться на стенки кюветы. При этом интенсивность свечения плазмы оптического пробоя жидкости заметно снижается.

Результаты по измерению активности раствора смеси двух изотопов цезия при его лазерном облучении приведены на рис. 6. Видно, что характер спада активности двух изотопов несколько различен.

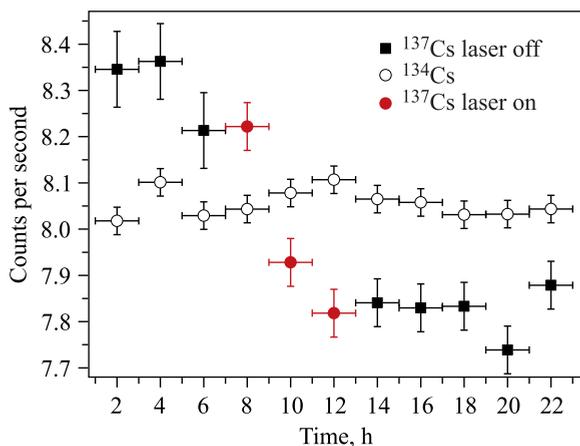


Рис. 4. Изменение активности изотопа ^{137}Cs в присутствии реперного образца ^{134}Cs . Темные квадраты — активность ^{137}Cs без лазерного облучения; темные кружки — активность ^{137}Cs во время лазерного облучения; светлые кружки — активность реперного раствора ^{134}Cs

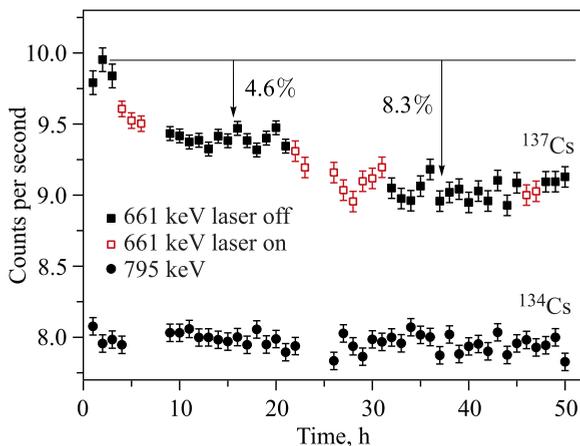


Рис. 5. Изменение активности раствора ^{137}Cs при последовательных лазерных облучениях в присутствии реперного образца ^{134}Cs . Светлые и темные квадраты — активность ^{137}Cs ; темные кружки — активность реперного раствора ^{134}Cs . Стрелками указаны изменения активности образцов (в процентах) по отношению к исходному уровню

По аналогии с тушением люминесценции мы назвали этот механизм тушением радиоактивности. Можно предположить, что он связан с увеличением вероятности прямого перехода в основное состояние ^{137}Ba без излучения гамма-кванта с энергией 662 кэВ. Такая ситуация становится возможной в случае ионизации атома цезия с последующим его бета-распадом в связанное состояние, при котором бета-электрон занимает вакантную позицию в электронной оболочке атома.

Вероятность бета-распада в связанное состояние может очень сильно зависеть от степени ионизации бета-активных атомов. Например, в экспериментальной работе [3] было

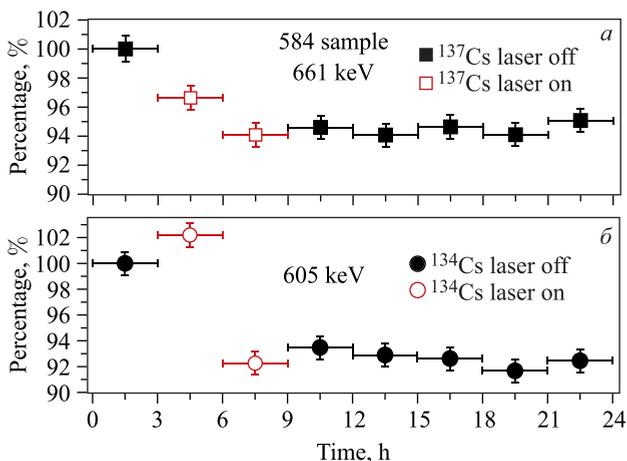


Рис. 6. Временной ход активности смеси двух изотопов цезия: ^{137}Cs на линии 661 кэВ (а) и ^{134}Cs на линии 605 кэВ (б)

получено, что период полураспада полностью ионизированного атома рения ^{187}Re оказался в 10^9 раз меньшим по сравнению с периодом полураспада нейтрального атома ^{187}Re .

Условия нашего эксперимента позволяют предположить, что во время лазерного воздействия происходит частичная ионизация атомов ^{137}Cs , которая также может привести к существенному уменьшению его периода полураспада и, как следствие, к падению концентрации радиоактивного цезия в облучаемом растворе.

В пользу такого предположения говорит то обстоятельство, что электромагнитное поле лазера локально усиливается вблизи взвешенных в жидкости металлических наночастиц [4]. Численное моделирование, проведенное в работе [5], показывает, что коэффициент усиления амплитуды электромагнитного поля вблизи металлической наночастицы составляет 10^2 и более. Электроны, эмитируемые с поверхности наночастиц, набирают в этом поле энергию, достаточную для ионизации окружающих атомов и последующего плазмообразования. Если концентрация наночастиц в перетяжке лазерного импульса достаточно велика, то отдельные плазменные области могут перекрываться, образуя единый плазменный канал, в котором происходит поглощение до 90% энергии лазерного импульса, что и наблюдается в нашем эксперименте. Простые оценки показывают, что температура электронов в плазменном канале может достигать значения порядка 10 эВ. Например, диссоциация воды электронным ударом происходит при энергии электронов, превышающей 20 эВ [2]. Попадая в область перетяжки лазерного импульса, атомы цезия могут быть частично (двух- или трехкратно) ионизированы электронами плазмы. Нельзя исключить также ионизацию средних и нижних электронных оболочек атома цезия электронами, приобретающими необходимую для этого кинетическую энергию в результате совместного действия различных механизмов усиления электромагнитного поля вблизи наночастиц и коллективных эффектов ускорения электронов в плазменном канале. Вопрос о том, насколько существенно период полураспада атома ^{137}Cs может зависеть от его степени ионизации, предполагается изучить в последующих работах.

В заключение отметим, что аналог эффекта тушения радиоактивности наблюдался в недавней работе [6], в которой сообщалось об изменении активности ^{152}Eu под действием

мощного микроволнового излучения. При этом, однако, наблюдается иной ход активности этого изотопа. Сразу после облучения она резко снижается, а после окончания облучения выходит на новый уровень, превышающий исходную активность.

Работа частично финансировалась президентским грантом поддержки ведущих научных школ (НШ-4484.2014.2), Российским фондом фундаментальных исследований, гранты 15-02-04510_а, 15-32-20926_мол_а_вед, 16-02-01054_а, грантом Президента РФ МК-4194.2015.2 и грантом Президиума РАН I.25П.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Barmina E. V., Simakin A. V., Shafeev G. A.* Laser-Induced Caesium-137 Decay // *Quantum Electronics*. 2014. V. 44, No. 8. P. 791–792.
2. *Barmina E. V., Simakin A. V., Shafeev G. A.* Hydrogen Emission under Laser Exposure of Colloidal Solutions of Nanoparticles. arXiv:1602.08333.
3. *Bosch F. et al.* Observation of Bound-State Beta Minus Decay of Fully Ionized ^{187}Re : $^{187}\text{Re}-^{187}\text{Os}$ Cosmochronometry // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 77, No. 26. P. 5190–5193.
4. *Barmina E. V. et al.* Nanostructures Generation on Nickel under Its Laser Ablation in Liquids and Their Activity in Surface Enhanced Raman Scattering // *Quantum Electronics*. 2010. V. 40. P. 346–348.
5. *Encai Hao, Schatz G. C.* Electromagnetic Fields around Silver Nanoparticles and Dimers // *J. Chem. Phys.* 2004. V. 120, No. 1. P. 357–366.
6. *Gonz Z. et al.* Influence of High-Power Pulse RF Irradiation on Several Types of Beta-Decay // *Proc. of the 9th Intern. Workshop “Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications”*, Nizhny Novgorod, July 24–30, 2014.

Получено 1 марта 2017 г.