

Санкт-Петербургский Государственный
Университет
Институт химии

Еремин В.В.

**Вероятность радиоактивного распада –
величина не постоянная**

Учебное пособие

Санкт – Петербург
2022 г.

УДК: 539.1.06:539.16.01:539.163.1

Автор учебного пособия:
ст. преподаватель кафедры радиохимии, к.х.н. Еремин В.В.

Научный редактор:
и.о. зав. кафедрой радиохимии, д.х.н. профессор Смирнов И.В.

Редактор:
Ширяева Ю.В.

Настоящее учебное пособие посвящено теоретическим основам, разработанным для объяснения эффектов, в которых проявляется вариативность величины λ – «постоянной» радиоактивного распада. Достаточно подробно рассматриваются различные экспериментальные методы регистрации артефактов подобного рода.

Данный материал предназначен, прежде всего, магистрантам-радиохимикам, изучающим дисциплину «Радиохимия 2», а также может быть интересен как аспирантам, выполняющим диссертационную работу на кафедре радиохимии, так и магистрантам и аспирантам других кафедр Института химии.

Учебное пособие утверждено на заседании учебно-методической комиссии
Института химии СПбГУ по УГСН 04.00.00 Химия
от 23.12.2022 г. № 05/2.1/04-03-15-Выписка-12

Введение

Календарную дату открытия явления радиоактивности – 24 февраля 1896 года – принято считать днем рождения радиохимии. Сообщение А.Беккереля об обнаружении проникающего излучения, испускаемого солями урана, безусловно, является отправной точкой в развитии субатомной физики. Этот важный раздел физики, заключающийся, прежде всего, в изучении структур и взаимодействий субатомных частиц, однако, не замыкается в столь относительно узких рамках. Его концепции и методы находят самое широкое применение в смежных отраслях знания (в химии, в частности).

С каждым годом углубляются и расширяются наши представления о том, сколь тесно взаимовлияние процессов, происходящих в электронной оболочке, вблизи и в недрах атомного ядра. Помимо сильных (адронных) взаимодействий для нуклонов, составляющих атомное ядро, характерно наличие менее интенсивных процессов – электромагнитного и еще более слабого взаимодействия, проявляющегося в различных видах бета-распада.

Электрослабые взаимодействия, в отличие от адронных, играют в ядерной структуре роль подчиненную, но от них зависит степень стабильности атомного ядра. Поэтому они имеют определяющее влияние на многие виды ядерных превращений, в том числе на те, в которых непосредственно затрагивается электронная оболочка. Следует ожидать, что изменения в последней, обусловленные химическими причинами, могут влиять на вероятность ядерного превращения. В этом случае появляется возможность создания экспериментальных методов, использующих ядерные процессы для исследования химического строения вещества.

К числу явлений, в которых экспериментально наблюдается влияние химической структуры на ядерные процессы, относят, прежде всего, ядерный гамма-резонанс (эффект Мёссбауэра), разумеется, не единственный пример подобного рода. Представляется очевидным использование для исследования взаимодействия ядра и электронной оболочки процессов электронного захвата (ЭЗ) и конвертированного изомерного перехода (КИП), поскольку они оба затрагивают орбитальные электроны.

Первые экспериментальные доказательства существования «химических изменений» вероятности радиоактивного распада (λ) для случаев ЭЗ или КИП были получены на рубеже 40-х – 50-х гг. прошлого столетия. С тех пор уровень исследований в этой области заметно вырос, несмотря на значительные трудности при подготовке и проведении экспериментов.

Существенно то, что химическая информация, извлекаемая из мессбауэровских спектров, спектров электронов внутренней конверсии периферийных подболочек и результатов измерения величин $\Delta\lambda/\lambda$, имеет общий источник – изменение полной электронной плотности в области ядра – $\Delta|\Psi(0)|^2$. Это дает возможность объединить эти эксперименты в одну группу, сопоставлять и взаимно дополнять полученные результаты.

В последние годы исследования воздействия физических и химических процессов на λ связаны, прежде всего, с поисками вариантов практического применения таких эффектов. Например, на основе явления коллективного ядерного сверхизлучения (КЯС) долгоживущими ядерными изомерами делаются попытки создать так называемый гамма-лазер.

Немного истории

Считается, что дискуссия по проблеме взаимовлияния атомного ядра и электронной оболочки, выразившаяся в попытках экспериментально обнаружить или теоретически обосновать гипотетическую зависимость вероятности радиоактивного распада (λ) от ряда внеядерных факторов, прошла в своем развитии условно три этапа.

Первый этап, начало которого практически совпало со временем открытия явления радиоактивности и обоснования законов радиоактивного распада, связан с априорным представлением о неизблемости λ и экспериментальными попытками доказать это положение с возможно лучшей точностью. Ранние работы – опыты, объектами исследования в которых являлись отдельные представители естественных радиоактивных рядов, например, члены семейства урана-238 (см. библиографию в обзорах [4,5,7]). На скорость радиоактивного распада пытались влиять посредством сильного нагревания или охлаждения образцов, приложения к ним высокого давления. Источники радиоактивного излучения перемещались из одной географической точки в другую, помещались в ультрацентрифугу или внутрь бомбы, начиненной бездымным порохом. Среди пионеров исследований такого рода можно упомянуть А. Беккереля, М. и П. Кюри, Э. Резерфорда, А. Комптона. В конечном счете, пришли к выводу о фундаментальном постоянстве λ у различных представителей естественных радиоактивных семейств.

Возрождение интереса к проблеме связано, прежде всего, с открытием в середине 30-х годов супругами И. и Ф. Жолио-Кюри явления искусственной радиоактивности и созданием Э. Ферми теории бета-распада. В 1937 году Л. Альварец доказал существование процесса ЭЗ, непосредственно затрагивающего электронную оболочку, альтернативного позитронному распаду способа превращения ядра. В немалой степени этим достижениям способствовало и бурное развитие в эту эпоху экспериментальной базы ядерной физики – совершенствование, например, ускорительной техники и методов регистрации ядерных излучений.

В 1947 году молодой физик-теоретик Раймонд Додель, ассистент Ирен Жолио-Кюри и, независимо от него, Эмилио Сегре, соратник Энрико Ферми и будущий Нобелевский лауреат, сформулировали в виде коротких тезисов идею о возможности влиять на скорость ЭЗ ядром и КИП в ядре. Указав на зависимость вероятности этих процессов спонтанного распада от электронной плотности в области ядра, они высказали предположение о существовании **измеримых** эффектов такого рода и возможности использования относительных величин $\Delta\lambda/\lambda$ – «химических изменений» вероятности ЭЗ и КИП для анализа электронной структуры атомов.

Впервые эффект влияния химического состояния радиоактивных атомов на λ был экспериментально обнаружен для процесса ЭЗ ядром бериллия-7. За более чем полвека, прошедших с этого момента, было опубликовано свыше двух десятков работ, содержащих теоретические расчеты и экспериментальные величины $\Delta\lambda/\lambda$ для этого ядра. Наибольшее из измеренных значений было получено для пары радиоактивных образцов ${}^7\text{Be}$ – ${}^7\text{BeO}$ и составило $1,85 \cdot 10^{-3}$ отн.ед. Большинство опытов проводилось с использованием модификации дифференциального метода Резерфорда, применяемого с успехом и при проведении сравнительных измерений процессов радиоактивного распада других ядер (см. библиографию в обзорах [1-3]).

В работе К. Бейнбриджа, датированной 1951 годом, сообщалось о регистрации «химических изменений» вероятности высококонвертированного E3-перехода в ядре технеция-99m. Максимальная наблюдаемая амплитуда эффекта составила $3 \cdot 10^{-3}$ отн.ед [4].

Для данного этапа вообще характерно стремление исследователей к поиску максимально возможных значений $\Delta\lambda/\lambda$. Примером может служить острая дискуссия, развернувшаяся вокруг рекордно высоких (до $3,6 \cdot 10^{-2}$ отн.ед.) амплитуд эффектов для высококонвертированного M2-перехода в ядре ниобия-90, полученных практически одновременно в разных лабораториях.

Значительно больший интерес представляет информация, опубликованная на рубеже 60-70 гг., в которой сообщалось о результатах весьма сложных экспериментов по измерению изменений коэффициентов внутренней конверсии (КВК) с периферийных электронных подоболочек радиоактивных атомов, находящихся в различных химических состояниях. Регистрировались эффекты $\Delta\lambda/\lambda$ для КИП в «мёссбауэровских» ядрах железа-57, олова-119, теллура-125. Одновременно самое широкое распространение в химических исследованиях получила ядерная гамма-резонансная спектроскопия (ЯГРС) – эффект Мёссбауэра. Выяснилось, что информация, извлекаемая в опытах по «методу $\Delta\lambda/\lambda$ », адекватна, в принципе, сведениям по химическим сдвигам в спектрах ЯГР.

Благодаря этому интерес к изучению влияния электронного состояния радиоактивных атомов на λ значительно возрос. К настоящему моменту опубликовано большое количество работ, в которых результаты измерений эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ для случаев ЭЗ и КИП используются для расчетов величин $\Delta|\Psi(0)|^2$ и, например, для калибровки шкалы мёссбауэровских химических сдвигов.

Химические изменения вероятности электронного захвата

Спонтанное превращение атомного ядра с зарядовым числом Z в ядро $Z-1$ может осуществляться двумя способами: испусканием позитрона или захватом орбитального электрона. Второй процесс – единственный вид β -распада, напрямую затрагивающий электронную оболочку радиоактивного атома. Вывод соотношений, пригодных для расчета возможных изменений $\Delta\lambda/\lambda$ в случае ЭЗ, базируется на основных постулатах физики микромира и, в частности, на использовании основных положений теории β -распада.

В качестве исходного положения при таком анализе обычно рассматривают «золотое правило Ферми» – выражение для вероятности (W_{fi}) перехода системы (в единицу времени) из исходного состояния i в конечное – f :

$$W_{fi} = (2\pi/\hbar)|H_{fi}|^2 \cdot g(E_{fi}), \quad (1)$$

где: $g(E_{fi})$ – статистический множитель, выражающий плотность f -состояний с определенным уровнем энергии;

$|H_{fi}|^2$ – матричный элемент перехода, записываемый обычно через волновые функции начального и конечного состояний системы. Последние, в свою очередь, определяются через произведения волновых функций субатомных частиц, участвующих в ядерном превращении – то есть атомного ядра и лептонов.

Дальнейшее рассмотрение сводится к расшифровке отдельных факторов, входящих в выражение (1). Анализ проводился отдельно для переходов различных типов, в том

числе для случая ЭЗ ($W_{\text{н}} \equiv \lambda_{\text{эз}}$). Самое существенное и красивое упрощение было достигнуто при рассмотрении разрешенных переходов, когда четность сохраняется, а спин изменяется на величину $\Delta I = 0, 1$. При этом преобладает ЭЗ из подболочек, заселенных s- и $p_{1/2}$ -электронами.

В конечном счете, в работе [5] было получено следующее простое выражение, связывающее полученные экспериментальные величины $\Delta\lambda_{\text{эз}}/\lambda_{\text{эз}}$ с изменениями в электронных оболочках радиоактивных атомов:

$$(\Delta\lambda_{\text{эз}}/\lambda_{\text{эз}}) = [\sum_x E_{\text{vx}}^2 B_x \Delta |\psi_x(0)|^2] / \sum_x E_{\text{vx}}^2 B_x |\psi_x(0)|^2 \quad (2)$$

где: E_{vx} – энергия нейтрино, испускаемого при захвате электрона с x-подболочки; B_x – коэффициенты, учитывающие эффекты обмена и перекрытия в процессе ЭЗ; $|\psi_x(0)|^2$ – вклад в электронную плотность в области ядра x-подболочки.

В работе [3] предложили похожую формулу, удобную для расчетов и отличающуюся от (2) только тем, что авторы обосновано, как они полагали, пренебрегли поправками на обмен и перекрытие, приняв B_x равными 1 и сократив их.

Для неуникальных переходов первого запрещения, отличающихся от разрешенных изменением четности, возможен ЭЗ из других подболочек. Однако и здесь основной вклад в образование $|\psi_x(0)|^2$ вносят s- и $p_{1/2}$ -электроны. Поэтому и в этом случае можно использовать выражение (2) для расчетов возможных величин $\Delta\lambda_{\text{эз}}/\lambda_{\text{эз}}$.

Таким образом можно констатировать, что проведенный теоретический анализ подтверждает гипотезу Доделя и Сегре о том, какова природа «химических изменений» вероятности ЭЗ и о возможности их экспериментального измерения. Самый прямой путь – воздействие на электронную плотность в области ядра. В свою очередь, открывается возможность по экспериментально измеренным амплитудам эффектов $\Delta\lambda_{\text{эз}}/\lambda_{\text{эз}}$ определять значения $\Delta |\Psi(0)|^2$ – изменений полной электронной плотности в области ядра радиоактивного атома, вызванных различием в структуре его электронной оболочки.

Было опубликовано немало работ, посвященных достижению именно этой цели. Так Хофманн-Райнеке и др. обнаружили эффект влияния химического состояния атомов рутения на вероятность ЭЗ ядром рутения-97. По разностям в скоростях счета различных пар источников радиоактивного излучения были получены соответствующие значения $\Delta |\Psi(0)|^2$ [6]. Последние в сочетании с соответствующими значениями мёссбауэровских изомерных сдвигов для соединений рутения, содержащих рутений-99 и рутений-101, использовались для решения сугубо ядерно-физической задачи. Таким образом, была получена важная дополнительная информация о разностях в средних значениях квадратов зарядовых радиусов ядер этих радионуклидов в возбужденном и основном состояниях.

Кюндиг и Мюллер, в свою очередь, применили аналогичный подход при калибровке шкал изомерных сдвигов для мёссбауэровских изотопов йода: йода-127 и йода-129 [7]. При этом изучалось влияние химического состояния на вероятность ЭЗ ядром йода-125. Также для регистрации эффекта использовалась модификация дифференциального метода Резерфорда.

Большее распространение в исследованиях эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ – особенно в поисках эффектов влияния химической структуры на вероятность ядерного превращения – получили различные варианты так называемого «квазидифференциального» метода измерения активностей радиоактивных образцов. Сущность этого способа регистрации достаточно подробно изложена в статье швейцарских физиков «Änderung der

Zerfallskonstante von Zr-89 in BaTiO₃» [8]. Следует, правда, заметить, что в данной работе, как это уже видно из заголовка, сделана попытка использовать измеренные величины $\Delta\lambda_{\text{ЭЗ}}/\lambda_{\text{ЭЗ}}$ в изучении физических свойств титаната бария. Одновременно той же группой ученых с аналогичной целью применялся BaTiO₃, допированный Sr-85 [9].

Возвращаясь к обсуждению заявленной нами теме, следует обратить внимание на публикацию Макарюнаса и др., в которой авторы сообщают о наблюдении «химических изменений» $\Delta\lambda_{\text{ЭЗ}}/\lambda_{\text{ЭЗ}}$ на олове-113. Измерение амплитуд эффектов проводилось параллельно для нескольких пар источников, представляющих собой различные химические соединения олова, допированные оловом-113. Общая продолжительность эксперимента составила около 700 дней. Наибольшую величину эффекта получили для пары источников SnTe - SnO₂: $+(4,9\pm 0,5)\cdot 10^{-4}$ отн.ед. Затем по измеренным величинам $\Delta\lambda_{\text{ЭЗ}}/\lambda_{\text{ЭЗ}}$ были рассчитаны соответствующие значения изменений полной электронной плотности в области ядра олова – $\Delta|\Psi(0)|^2$. Расчеты проводились с учетом и без учета поправок на обмен и перекрывание – $V_{\text{х}}$. При этом было показано, что полученные значения довольно чувствительны к введению поправок такого рода [10].

Помимо вышеперечисленных случаев, эффект влияния химического окружения радиоактивных атомов на вероятность ЭЗ надежно – так признает научное сообщество – установлен для железа-52, меди-64, германия-71(см. библиографию в обзорах [1-3]). Особо следует отметить эксперименты с соединениями хрома-51, марганца-54, олова-113, олова-117m, теллура-123m и церия-139, проведенные в стенах кафедры радиохимии СПбГУ, но выполненные по принципиально иной схеме – с помощью «метода $\Delta I/I$ », – о чем речь у нас еще впереди.

Химические изменения вероятности внутренней конверсии гамма-излучения

Ядро атома, находящееся в возбужденном состоянии, может переходить в состояние с меньшей энергией несколькими способами, одним из которых является излучение гамма-кванта, сопровождаемое во многих случаях явлением внутренней конверсии (ВК). Сущность последнего процесса состоит в передаче ядром энергии возбуждения одному из электронов оболочки, который в результате покидает пределы атома. Достаточно подробно возможность влияния электронной структуры радиоактивных атомов на вероятность КИП – «химические эффекты $\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}$ » – рассматриваются в обзорных работах Эмери [2], Макарюнаса [5] и Досталия и др. [3].

В кратком изложении обобщенный анализ выглядит так. Полная вероятность электромагнитного перехода ядра перехода системы (в единицу времени) из исходного состояния i в конечное – f определяется как сумма парциальных величин:

$$\lambda(i \rightarrow f) = \lambda_{\gamma} + \lambda_{\text{ВК}}, \quad (3)$$

где: λ_{γ} – вероятность испускания гамма-кванта; $\lambda_{\text{ВК}}$ – вероятность процесса внутренней конверсии.

В работе [3] полная вероятность электромагнитного перехода складывается иначе – из вероятностей испускания гамма-кванта «голым» ядром и двух поправок к ней:

$$\lambda(i \rightarrow f) = \lambda^{(1)} + \lambda^{(2)} + \lambda^{(3)}. \quad (4)$$

Слагаемые $\lambda^{(1)}$ и $\lambda^{(2)}$ соответствуют парциальным величинам, стоящим в правой части выражения (3):

$$(\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\gamma}) = (\lambda^{(2)}/\lambda^{(1)}) \equiv \alpha, \quad (5)$$

где α – коэффициент ВК (КВК) для конкретного перехода $i \rightarrow f$ в ядре, определяемый как отношение числа конвертированных электронов, вылетающих за пределы атома в единицу времени, к числу гамма-квантов, испущенных ядром атома в единицу времени. Так как может иметь место ВК электронов любой подоболочки "х", если нет энергетического ограничения, то полный КВК есть сумма парциальных величин на всех подоболочках, на которых конверсия разрешена:

$$\alpha = \sum_x \alpha_x(i \rightarrow f). \quad (6)$$

Величина $\lambda^{(3)}$ в выражении (4) – вероятность испускания гамма-кванта через так называемый «электронный мостик» является, по сути дела, незначительной поправкой к $\lambda_{\text{вк}}$. В подавляющем большинстве случаев $\lambda^{(3)}$ меньше $\lambda^{(2)}$ на несколько порядков. Лишь в случае низкоэнергетичных и, одновременно, высококонвертированных переходов, как, например, в случае ЕЗ-перехода в ядре урана-235, эти вероятности сравнимы по величине.

Тогда, считая, с полным основанием, вероятность испускания гамма-кванта «голым» ядром является независимой от химической структуры величиной, принимая во внимание (5) и (6), получаем выражение для относительного изменения вероятности электромагнитного перехода в ядре, аналогичное приведенному Макарюнасом в [11]:

$$(\Delta\lambda/\lambda) \equiv (\Delta\lambda_{\text{вк}}/\lambda_{\text{вк}}) = (\Delta\alpha/1+\alpha) = (1/1+\alpha) \sum_x \alpha_x (\Delta\alpha_x/\alpha_x). \quad (7)$$

Как логично следует из дальнейших теоретических рассуждений, основной вклад в формирование КВК, в том числе для внешних подоболочек, вносит область электронной структуры атома, непосредственно прилегающая к ядру. Тем не менее, достоверно установлено, что КВК на высоких электронных подоболочках существенным образом зависят от числа электронов в этой области, другими словами, от величин $|\psi_x(0)|^2$.

Таким образом, измерение КВК на периферийных подоболочках, ответственных, как правило, за образование химической связи, может существенно помочь в определении химического состояния радиоактивных атомов. Следует, однако, учесть то обстоятельство, что величины $\lambda_{\text{вк}}$ зависят в большой степени от мультипольности электромагнитного перехода. Это должно найти свое отражение в дальнейших наших рассуждениях и расчетах.

Теоретические расчеты Банд и др. [12,13] показывают, что КВК на подоболочках с одним и тем же дираковским квантовым числом и разными главными квантовыми числами ($n=1,2,\dots$) для перехода с мультипольностью σL с хорошей точностью пропорциональны квадратам модулей электронных волновых функций в области ядра:

$$[\alpha_1(\sigma L)/\alpha_2(\sigma L)] = [|\psi_1(0)|^2/|\psi_2(0)|^2] \quad (8)$$

В обзорной работе Эмери [5] приводятся сведения об экспериментальных проверках данного соотношения. Например, из расчетов КВК на различных подоболочках олова в случае М1-перехода в ядре олова-119m, проведенных Андерсон и др. [14] и данных по $|\psi_x(0)|^2$ были получены следующие соотношения (для низкоэнергетичных переходов):

$$(\alpha_K/\alpha_{O1}) = 2,2 \cdot 10^3 \text{ и } (|\psi_K(0)|^2/|\psi_{O1}(0)|^2) = 2,2 \cdot 10^3.$$

Таким образом, для конкретного М1-перехода показано, что отношение КВК для s-электронов, по крайней мере, к плотностям электронов в области ядра, величина практически постоянная. Подобный анализ был проведен позже для М1-переходов в ядрах железа-57 и платины-193. Вообще в случае М1-переходов $\alpha_x = \text{Const} \cdot |\psi_x(0)|^2$ практически для всех подоболочек, вовлеченных в процесс внутренней конверсии.

Это достаточно точное приближение, позволяющее связать химические изменения на внешних подоболочках атома, приводящие к изменениям электронной плотности в

области ядра, с изменениями КВК на этих подболочках. Так для олова расчеты [14] показывают, что при удалении одного $5p_{1/2}$ -электрона, КВК на O_1 -подболочке увеличивается на $(12 \pm 14)\%$, в зависимости от мультипольности перехода. А рассчитанное значение $\Delta|\Psi(0)|^2$ для $5s$ -электронов составляет при этом $12,7\%$. Подчеркнем то обстоятельство, что подобное рассмотрение, приводящее к согласованию с большой точностью обоих изменений, правомерно только в том случае, если расчеты как КВК, так и $|\Psi(0)|^2$ выполнены одним методом.

Учитывая соотношения (7) и (8) и вышеизложенные рассуждения, получим выражение для относительного изменения вероятности ВК, аналогичное приведенному в работе [11]:

$$(\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}) = (1/1+\alpha)\sum_x \alpha_x (\Delta|\psi_x(0)|^2/|\psi_x(0)|^2). \quad (9)$$

В случае М1-переходов, когда ВК происходит преимущественно с участием s - и $p_{1/2}$ - электронов, которые вносят наибольший вклад в образование электронной плотности в области ядра [15], соотношение (9) можно упростить:

$$(\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}) = (\alpha/1+\alpha)[\Delta|\Psi(0)|^2/\sum_x |\psi_x(0)|^2], \quad (10)$$

то есть, относительное изменение вероятности М1-перехода в ядре пропорционально изменению полной электронной плотности в области ядра.

В качестве примера использования измеренных значений химических эффектов $\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}$ следует упомянуть работу [16], в которой рассматривается взаимосвязь между величиной эффекта такого рода и δ – величиной мёссбауэровского изомерного сдвига. Для расчетов предлагается следующее соотношение:

$$(\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}) = \delta(\alpha/1+\alpha)[C_M(\Delta R/R)\sum_x |\psi_x(0)|^2]^{-1}. \quad (11)$$

Здесь $=4\pi e^2 Z R^2 c / 5E_\gamma$ – постоянная для данного ядра, где Z и R – зарядовое число и зарядовый радиус ядра; E_γ – энергия М1-перехода, c и e – фундаментальные константы.

Учитывая важность калибровки шкалы мёссбауэровских изомерных сдвигов, Рюкзеггер и Кюндиг [17,18] провели экспериментальное определение $\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}$ для перехода с уровня $3/2^+$ в ядре железа-57 (среднее время жизни – 143 нс). Для этой цели впервые была успешно применена техника задержанных совпадений, применяемая в измерениях времен жизни возбужденных состояний ядер в диапазоне от 10^{-11} до 10^{-4} с. Затем с помощью выражения (12) было получено значение $\Delta R/R$ для этого случая:

$$\Delta R/R = 5\alpha\delta[(\alpha+1)4\pi Ze^2 R^2 \Delta\lambda|\Psi(0)|^2]^{-1}. \quad (12)$$

$$\text{А именно: } \Delta R/R = -(3,1 \pm 0,6) \cdot 10^{-4}.$$

Позднее Рогвиллер и Кюндиг [19], используя тот же метод, провели экспериментальное исследование влияния химического состояния атомов олова на время жизни изомерного $3/2^+$ -уровня в ядре олова-119. С помощью выражения, аналогичного соотношению (12), авторы получили для данного М1-перехода следующее значение относительного изменения зарядового радиуса ядра олова-119:

$$\Delta R/R = +(1,69 \pm 0,22) \cdot 10^{-4}.$$

Для М4-переходов влияние на их вероятность химического состояния радиоактивных атомов носит более сложный характер. Авторы работы [20] теоретически обосновали возможность, используя результаты экспериментов по измерению значений $\Delta\lambda_{\text{ВК}}/\lambda_{\text{ВК}}$ для М4-переходов, получать сведения об изменении полной электронной плотности в области ядра и, соответственно, о структуре внешних электронных подболочек радиоактивных атомов. Были проведены расчеты КВК для нескольких

известных изомерных переходов, в том числе в ядре олова-119. КВК были вычислены с учетом эффекта экранирования и конечных размеров ядра. Процесс внутренней конверсии затрагивает в этом случае существенным образом и $p_{3/2}$ - электроны, практически не участвующие в образовании полной электронной плотности в области ядра. Было показано, что в случае М4-перехода в ядре олова-119 отношение $\alpha/|\psi(0)|^2$ приблизительно постоянно для всех электронных подболочек с разным главным и одинаковым дираковским квантовыми числами. Для больших КВК было получено:

$$\Delta\lambda_{\text{вк}}/\lambda_{\text{вк}}=(1/\alpha)\sum_x[\Delta|\psi_x(0)|^2/|\psi_x(0)|^2], \quad (13)$$

Что напоминает выражение (9), но не переходит в (10) из-за упомянутого выше различия в соотношениях КВК для М1- и М4-переходов.

Так для представителей высших групп «типичных» элементов, к которым относятся олово и теллур, авторы работы [20] приводят пример определения с достаточно хорошей точностью ($\pm 10\%$) величины $\Delta|\Psi(0)|^2$. В этом случае удобно сравнить изменения скоростей счета импульсов во времени двух радиоактивных источников, приготовленных в виде окислов олова: $^{119\text{m}}\text{SnO}$ и $^{119\text{m}}\text{SnO}_2$ (или изучать соединения 4-х и 6-и валентного теллура, допированные ядерными изомерами Те, например, долгоживущими теллуrom-123m₂ или теллуrom-125m₂). В обоих случаях структуры внешних электронных подболочек мало отличаются от предельных, записываемых обычно $5s^25p^0$ и $5s^05p^0$ соответственно, как для случая свободных ионов [15,20]. Таким образом, из рассмотрения исключается О_{III}-подболочка, КВК на которой для М4-переходов примерно равен КВК на О_I-подболочке, но электроны которой практически не участвуют в создании полной электронной плотности в области ядра. В этом случае авторы работы [20] получили следующее выражение для расчетов:

$$\Delta|\Psi(0)|^2 \approx |\psi_{5s}(0)|^2 \Delta\lambda_{\text{вк}}/\lambda_{\text{вк}} (\alpha/\alpha_{5s}). \quad (14)$$

Вычисленное с помощью соотношения (14) «теоретическое» значение $\Delta\lambda/\lambda$ для окислов олова-119m составило $7 \cdot 10^{-4}$.

Следовательно, результаты экспериментального определения величин «химических» изменений $\Delta\lambda_{\text{вк}}/\lambda_{\text{вк}}$ для высококонвертированных ядерных переходов, как и в случае электронного захвата, позволяют получить информацию о возникающих при этом изменениях полной электронной плотности в области ядра. Последние могут быть использованы в расчетах как изменений зарядового радиуса ядра при мёссбауэровских переходах, так и в исследованиях структуры внешних электронных подболочек радиоактивных атомов.

Считается, что эффект влияния химического состояния радиоактивных атомов на вероятность процесса внутренней конверсии надежно экспериментально установлен на железе-57m, ниобии-90m, технеции-99m, индии-115m, олове-119m, теллуре-125m, уране-235m [21]. Сюда же можно отнести и результат экспериментов на теллуре-123m, выполненных на кафедре радиохимии СПбГУ с помощью метода « $\Delta I/I$ ».

Химические изменения вероятности внутренней α -, β^- - и β^+ -распадов

Процессы α -, β^- - и β^+ -распадов в дальнейшем, в контексте проблемы $\Delta\lambda/\lambda$ нами не рассматриваются. Однако следует упомянуть вкратце о некоторых полученных здесь результатах.

Робинсон и Перлман [22] теоретически обсудили вопрос о возможности внеядерного воздействия на скорость α -распада. Логично связать такую возможность с влиянием электронной оболочки радиоактивного атома на проницаемость кулоновского барьера вблизи атомного ядра, то есть на вероятность «туннельного» эффекта для α -частицы, находящейся в потенциальной яме ядра. Не входя в дальнейшие подробности, приведем формулу приближенного расчета, полученную в этой работе:

$$\Delta\lambda_{\alpha}/\lambda_{\alpha} \approx 4000(Z-2)^3 E^{-7/2} \delta\rho_e, \quad (15)$$

где E – энергия α -частицы, $\delta\rho_e$ – изменение электронной плотности в области потенциального барьера – величина, близкая изменению полной электронной плотности в области ядра.

Удаление одного $6s$ -электрона с внешней подоболочки атома самария, например, должно привести, согласно (15), к изменению вероятности α -распада самария-147 на величину около $1,9 \cdot 10^{-8} \lambda$. Экспериментальные попытки обнаружить столь малые эффекты до сих пор не предпринимались.

Рассмотрение эффектов влияния химического состояния радиоактивных атомов на вероятность β^- - и β^+ - распадов ($\Delta\lambda_{\beta}/\lambda_{\beta}$) проводилось [3,23] в соответствии с основными положениями теории β - процессов. Влияние на β - спектры поля атомных электронов определяли как эффект экранирования. Электронная оболочка обуславливает появление экранирующего потенциала (V_s), на величину которого понижается эффективный кулоновский потенциал вблизи ядра таким образом, что энергия излучаемых β^- частиц увеличивается, а энергия β^+ - частиц уменьшается на эту величину. Далее вводятся в рассмотрение экранированные (f_s) и неэкранированные (f) интегральные функции Ферми, пропорциональные вероятности β^{\pm} - процесса.

В случае двух различных химических состояний радиоактивных атомов получили:

$$(\Delta\lambda_{\beta}/\lambda_{\beta}) = [(\lambda_{II} - \lambda_I)/\lambda_I] = [(f_{sI} - f_{sII})/f_{sI}] = (\Delta V_s/V_s) [(f_{sI} - f)/f], \quad (16)$$

где экранирующий потенциал рассчитывается в эВ из соотношения $V_s \approx 39,45Z^{4/3}$ [23]. Максимальные «химические» изменения V_s имеют порядок 10 эВ, а второй множитель в правой части выражения (16) много меньше 1 [3]. Проведенный в работе [23] анализ зависимости амплитуды возможного эффекта $\Delta\lambda_{\beta}/\lambda_{\beta}$ от зарядового числа ядра и максимальной энергии β^- -спектра показал, что с ростом энергии амплитуда резко уменьшается. Кроме того, измеримых значений $\Delta\lambda_{\beta}/\lambda_{\beta}$ следует ожидать только для самых легких ядер, например, трития [24]. В большинстве случаев ожидаемая величина эффекта меньше 10^{-4} .

До сих пор многочисленные попытки обнаружить влияние химического состояния радиоактивных атомов на β^{\pm} - распад не привели к надежным положительным результатам.

Методы экспериментального определения значений $\Delta\lambda/\lambda$

После появления на свет первых публикаций Доделя и Сегре внимание исследователей было обращено в первую очередь на ядра с малым зарядовым числом в случае электронного захвата (бериллий-7) и радионуклиды, претерпевающие высококонвертированный изомерный переход (технеций-99m). Для экспериментального определения значений $\Delta\lambda/\lambda$ на этих ядрах использовали так называемый «дифференциальный ионизационный метод Резерфорда», модификации которого представлены в работах [7,25-27]. Детектирующее устройство состоит, как правило, из

двух одинаковых ионизационных камер. Первая камера (с положительным высоким напряжением) измеряет ионизационный ток от первого радиоактивного источника:

$$I_+(t) = I_+(0) \exp(-\lambda t).$$

Ток в другой камере (с отрицательным высоким напряжением) вызывается ионизацией газового объема излучением второго источника: $I_-(t) = I_-(0) \exp[-(\lambda + \Delta\lambda)t]$.

С хорошим приближением можно считать $\Delta\lambda t \ll 1$, то есть $I_-(t) \approx I_-(0) [\exp(-\lambda t)](1 - \lambda t)$.

Тогда разность токов в обеих камерах, или дифференциальный ток, равен:

$$\Delta I(t) = I_+(t) - I_-(t) = [\exp(-\lambda t)] [\Delta I(0) + I_-(0) \Delta\lambda t].$$

Определяется зависимость функции $\Delta I(t) \exp(\lambda t) = \Delta I(0) + I_-(0) \Delta\lambda t$ от времени.

Данный метод весьма чувствителен и надежен. По мнению первопроходцев его следует применять для проведения исследований на радионуклидах с периодом полураспада в диапазоне от нескольких минут до ста дней. С помощью дифференциального ионизационного метода были изучены эффекты $\Delta\lambda/\lambda$ на ядрах железа-52 [25,26], йода-123 [27] и йода-125 [7]. Тем не менее, возможности этого метода существенно ограничены из-за малой эффективности регистрации относительно жестких гамма-квантов, а также тогда, когда схема распада радионуклида достаточно сложная.

Развитием дифференциального ионизационного метода следует считать так называемый «квазидифференциальный» метод экспериментального определения величин $\Delta\lambda/\lambda$, предложенный Хубером и др. [8]. Сущность этого метода состоит в установлении зависимости от времени отношения (Q) активностей двух сравниваемых радиоактивных образцов. В качестве детектора ядерного излучения чаще всего используется сцинтилляционный счетчик, обладающий следующими преимуществами: 1) высокой эффективностью регистрации гамма-излучения, 2) возможностью получать энергетический спектр излучения и работать на фотопике, соответствующем определенному радиационному переходу в ядре.

Отношение активностей двух сравниваемых источников определяется посредством **поочередного** измерения скоростей счета импульсов от их гамма-излучения (экспозиция отдельного измерения равна Δt). Как правило, требуется еще учесть некоторое время (δt), необходимое для смены образцов. Для источников 1 и 2 с одинаковой постоянной радиоактивного распада (λ) имеем:

$$Q(t) = [\lambda n_{01} \Delta t \cdot \exp(-\lambda t) / \lambda n_{02} \Delta t \cdot \exp[-\lambda(t + \Delta t + \delta t)]] = (n_{01} / n_{02}) \exp[\lambda(\Delta t + \delta t)],$$

где n_{01} и n_{02} - числа радиоактивных атомов в источниках.

Очевидно, что в этом случае отношение Q не зависит от времени. Если $\lambda_1 = \lambda_2 - \Delta\lambda$, тогда, с учетом того, что $\Delta\lambda t \ll 1$, получаем [8]:

$$Q'(t) = (1 + \Delta\lambda t) [1 - (\Delta\lambda/\lambda_2)] Q. \quad (17)$$

Два фактора, стоящие в скобках в правой части выражения (17), позволяют определять величину $\Delta\lambda$ независимо друг от друга. Первый из сомножителей делает функцию $Q'(t)$ зависящей от времени: действительно, если $\Delta\lambda$ задано до начала измерений, то в ходе эксперимента отношение $Q'(t)$ будет расти и через отрезок времени, равный среднему времени жизни конкретного радионуклида (τ), изменение отношения составит искомую величину: $[Q'(t) - Q(0)] = Q(\Delta\lambda/\lambda_2) \approx \Delta\lambda/\lambda_{\text{средн.}}$. Последнее приближение возможно, если активности обоих сравниваемых образцов с хорошей точностью (до 1%) подобраны одинаковыми до начала измерений. Такая разновидность квазидифференциального метода получила название «метод наклона» [8].

Если $\Delta\lambda=0$ до начала измерений, то первый фактор в выражении (17) равен 1. Тогда «мгновенное» изменение постоянной распада одного образца (в момент времени t_s), обусловленное какими-либо внеядерными причинами, например, физико-химическим воздействием на окружение радиоактивного атома, приведет к изменению исходного отношения активностей Q . В момент t_s величина «скачка» составит: $(\Delta\lambda/\lambda)Q(t_s) \approx \Delta\lambda/\lambda$ (для примерно равных активностей сравниваемых источников). Это так называемый «метод скачка» [8], широко используемый в твердотельном аспекте проблемы $\Delta\lambda/\lambda$.

Например, нагреванием радиоактивного образца титаната бария, допированного либо цирконием-89 [8], либо стронцием-85 [9], вызывался сегнетоэлектрический переход. При этом наблюдали «скачкообразное» изменение отношения скоростей счета импульсов от образца и репера. В работе [28] сообщается о наблюдении с помощью этой методики эффекта $\Delta\lambda_{\text{вк}}/\lambda_{\text{вк}}$ при наложении внешнего электрического поля на образец-диэлектрик, содержащий технеций-99m.

Несмотря на ряд преимуществ, связанных с существенной экономией времени при проведении эксперимента и возможностью заметно расширить круг изучаемых ядер за счет долгоживущих радионуклидов, широкого распространения «метод скачка» не получил. Более перспективный по мнению большинства исследователей «метод наклона» можно успешно использовать при проведении экспериментов с радионуклидами, имеющими периоды полураспадов в диапазоне от нескольких минут до 100 дней. В конечном счете он сводится к наблюдению в течение времени τ за снижением активности двух сравниваемых источников (1,2), то есть, по сути, к прямому измерению значений λ_1 и λ_2 .

Разновидностью такого подхода следует признать метод, основанный на использовании техники «задержанных совпадений» для измерения времен жизни возбужденных состояний атомных ядер в наносекундной области. Об экспериментах такого рода было упомянуто выше [17-19].

При изучении эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ для изомерного возбужденного состояния ядра (с τ порядка от нескольких минут до нескольких часов) при наличии генетически связанного с этим уровнем долгоживущего состояния «материнского» ядра можно воспользоваться методом «нарушенного радиоактивного равновесия [29-31]. В этом случае следят за изменением во времени активности «дочернего» радионуклида сразу после того, как было индуцировано изменение его постоянной распада λ_D . Тогда, согласно расчетам, приведенным Олиным [31], имеем:

$$A(t) = (\lambda_D + \Delta\lambda_D)n_D = \alpha \cdot \exp(-\lambda_M t) + \beta \cdot \exp(-\lambda_D t).$$

Коэффициенты $\alpha = \lambda_{MnM}[1 + (\lambda_M/\lambda_D)]$ и $\beta = (\Delta\lambda_D/\lambda_D)\lambda_{MnM}(1 - \Delta\lambda_D t)$, где индексы «M» и «D» относятся к материнскому и дочернему радионуклидам, соответственно. В таком случае относительное изменение вероятности радиоактивного распада дочернего радионуклида рассчитывается из простого соотношения:

$$(\Delta\lambda_D/\lambda_D) = \beta/\alpha.$$

Результат, полученный в работе [29] для случая изомерного M2-перехода в ядре ниобия-90, остается до сих пор рекордным для значений $\Delta\lambda/\lambda$, обусловленных изменением химического состояния радиоактивных атомов: около $4 \cdot 10^{-2}$ (!).

Заметим, однако, что данная цифра не была подтверждена авторами работы [30], в которой использовался метод прямых измерений периодов полураспада ниобия-90m для

двух образцов: металлического ниобия и раствора ниобия в смеси азотной и плавиковой кислот.

Интерес представляет работа Драгунаса А. и Макарюнаса К.В. [32], в которой определение величины $\Delta\lambda/\lambda$ проводилось посредством прецизионного измерения периодов полураспада олова-113 у двух образцов. Источники были приготовлены на основе двух соединений, в которых олово находится в химически устойчивых состояниях (+II и +IV): сульфида олова - ^{113}SnS и двуокиси - $^{113}\text{SnO}_2$. Было обнаружено выходящее за пределы статистической погрешности различие величин периодов полураспада радионуклида в этих соединениях: $T_{1/2}(^{113}\text{SnS}) = 115,070 \pm 0,014$ и $T_{1/2}(^{113}\text{SnS}) = 115,117 \pm 0,015$ суток.

Для достижения необходимой точности следили за изменением активностей сравниваемых пар источников в течение 1150 суток !

Резюмируя все вышесказанное в этой части настоящего пособия, следует отметить, что уровень теоретического рассмотрения проблемы « $\Delta\lambda/\lambda$ » по-прежнему превышает уровень её экспериментального исследования. Поэтому до сих пор актуальной остается задача создания новых способов регистрации эффектов внеядерного воздействия на вероятность радиоактивного распада, являющихся следствием взаимовлияния процессов, происходящих в атомном ядре и окружающей его электронной оболочке. В этом аспекте интересна, прежде всего, задача усовершенствования метода изучения «химических» изменений $\Delta\lambda/\lambda$.

Метод « $\Delta I/I$ » - новый способ экспериментального исследования «химических» изменений $\Delta\lambda/\lambda$

Как следует из текста предыдущего раздела, измерительная часть подавляющего большинства экспериментов, посвященных изучению влияния структуры электронной оболочки радиоактивного атома на скорость его ядерного превращения, основывается на определении малой величины $\Delta\lambda$, проявляющейся по мере накопления статистического материала. При этом осуществляется регистрация вторичного по отношению к ядерному превращению процесса, как правило, гамма-излучения. Например, определение с достаточной степенью точности значения $\Delta\lambda/\lambda$ при использовании вышеупомянутой разновидности «квазидифференциального метода» – метода «наклона» – требует проведения измерений скоростей счета гамма-квантов на протяжении длительного времени, сопоставимого со средним временем жизни радионуклида.

При этом необходимо соблюдение ряда следующих условий:

- 1) обеспечение постоянства геометрической конфигурации источник - детектор;
- 2) сохранение в течение всего эксперимента геометрических размеров и плотности источников излучения;
- 3) минимизация влияния на скорость счета гамма-квантов дрейфа электронной аппаратуры;
- 4) учет «мертвого» времени детектора и спектрометрического тракта;
- 5) учет поправки, исключаяющей влияние на конечный результат сопутствующих радиоактивных примесей в образцах.

В экспериментах, проводимых по методу «скачка» [8,9,28], на первый план выступает сохранение строгой геометрии опыта. Так для учета влияния на скорость счета

гамма-квантов возможных изменений геометрических размеров источников параллельно с проведением основных измерений осуществлялись дополнительные эксперименты. Однако из-за исключительной трудности в обеспечении тождественных условий проведения эксперимента метод «скачка» применялся лишь в ограниченном количестве работ, посвященных исследованию твердотельных эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ и не использовался при изучении влияния химического состояния радиоактивных атомов на вероятность ЭЗ и КИП.

Природа возможных нарушений геометрии опыта в разных вариантах «квазидифференциального» метода различна. При проведении длительных измерений возможны различного рода механические деформации и даже разрушение исходного радиоактивного препарата, либо изменение его химического состояния, например, из-за возможных радиационно-химических повреждений. При использовании метода «скачка» эксперимент продолжается сравнительно недолго, но проводится операция, вызывающая изменение физико-химического состояния радиоактивных атомов, например, с помощью нагревания, или наложения внешнего электромагнитного поля. Необходимо знать, каким образом эти процессы сказываются на величине эффекта $\Delta\lambda/\lambda$. Так анализ результатов, полученных в работе [8] для случая сегнетоэлектрического перехода в титанате бария, допированного цирконием-95 с использованием обоих вариантов «квазидифференциального» метода, показал хорошее их согласие при условии введения поправки на тепловое расширение источника.

Все вышесказанное было учтено авторами серии работ (см. библиографию в [34]), проведенных сотрудниками кафедры радиохимии СПбГУ с использованием нового методического приема изучения «химических изменений λ », названного ими методом « $\Delta I/I$ ».

Данный метод сводится к исследованию зависимости интенсивности (I) гамма-излучения, следующего в каскаде за ядерным превращением (например, ЭЗ или КИП), от электронной структуры распадающихся атомов. Средством к достижению этой цели является методика прецизионных измерений малых ($10^{-4} - 10^{-3}$) относительных изменений скорости счета (по выделенному фотопику) **одного и того же** источника, радиоактивные атомы которого участвуют в каком-либо физико-химическом процессе, приводящем к изменению их электронного состояния.

Для интенсивности гамма-излучения возбужденных уровней атомных ядер можно записать:

$$I = N_g \lambda_g f_i p_{ij} h\nu_{ij}, \quad (18)$$

где: N_g – число материнских атомных ядер, претерпевающих превращение (например, ЭЗ, КИП, или β -распад); λ_g – постоянная распада; f_i – вероятность перехода дочернего ядра в i -состояние; p_{ij} – вероятность перехода из i -состояния в j -ое; $h\nu_{ij}$ – энергия фотона, испущенного в результате перехода $i \rightarrow j$. Выражения (18) для интенсивностей двух сравниваемых источников одного изотопного состава будут различаться числом ядер материнского радионуклида в них – $N_{g(1)}$ и $N_{g(2)}$.

Допустим, что измеряется интенсивность выделенной гамма-линии для одного и того же источника ($N_{g(1)}=N_{g(2)}$), в котором протекают какие-либо физико-химические процессы, изменяющие $\Delta|\Psi(0)|^2$. Тогда $N_{g(1)}=N_{g(2)}=N_g$, а $h\nu_{ij(1)}$ с большой точностью равна $h\nu_{ij(2)}$. В этом случае индексы 1 и 2 будут относиться к начальному и конечному

состояниям окисления материнских радиоактивных атомов и соответствующим значениям интенсивности гамма-излучения дочерних атомов:

$$(I_1 / I_2) = [\lambda_{g(1)} f_{i(1)} p_{ij(1)} / \lambda_{g(2)} f_{i(2)} p_{ij(2)}]. \quad (19)$$

Таким образом, в общем случае, изменение интенсивности гамма-линии при изменении $|\Psi(0)|^2$ зависит от параметров как материнского, так и дочернего ядерных состояний. Для многих радионуклидов характерна простая схема ядерного превращения с одним каналом разрядки (например, путем ЭЗ) материнского ядра ($f_{i(1)}=f_{i(2)}=1$), а гамма-переход $i \rightarrow j$ низкоконвертирован и его интенсивность не зависит от состояния электронной оболочки радиоактивных дочерних атомов $p_{ij}=\text{const}$. Тогда общее выражение (19) существенно упрощается:

$$(I_1/I_2) = [\lambda_{g(1)}/\lambda_{g(2)}],$$

т.е. для таких схем распада (хрома-51, марганца-54, олова-113 и церия-139 и др.) измеряемое значение $\Delta I/I$ отражает изменение постоянной распада ядер материнских атомов в результате изменения их электронного состояния. В этом случае интерпретация экспериментальных результатов, полученных методом « $\Delta I/I$ », может проводиться в рамках теоретических представлений, привлекаемых для рассмотрения эффектов $\Delta\lambda/\lambda$.

Так, например, для случая ЭЗ в олове-113 по измеренному значению $\Delta I/I$ может быть проведен расчет величины $\Delta|\Psi(0)|^2$ с использованием приближенного выражения (без учета поправки на изменение энергии нейтрино), предложенного Макарюнасом в работе [5]:

$$\Delta|\Psi(0)|^2 = (\Delta I/I) [\sum_x (Q - \varepsilon_x)^2 B_x |\psi_x(0)|^2 / Q^2 B_{5s}], \quad (20)$$

где: Q – энергия ЭЗ; ε_x – энергия связи электронов подоболочки «x» в дочернем атоме; B_x – поправка на обмен и перекрывание Бакала (индекс «x» пробегает по всем электронным подоболочкам, с которых происходит ЭЗ).

Для случая конвертированного изомерного перехода типа М4 (например, в ядре теллура-123) может быть использовано приближенное выражение, подобное формуле (14):

$$\Delta|\Psi(0)|^2 = (\Delta I/I) |\psi_{5s}(0)|^2 (\alpha/\alpha_{5s}), \quad (21)$$

где: α – полный коэффициент внутренней конверсии; α_{5s} – коэффициент внутренней конверсии для O_1 -электронной подоболочки.

Основные требования по выполнению экспериментов методом « $\Delta I/I$ » заключаются в неизменности геометрии опыта и коэффициента регистрации детектирующего устройства на всем протяжении измерительного цикла. Выполнение этих требований достигается принятием ряда мер. Например, регистрацию гамма-излучения проводят с использованием сцинтилляционных или полупроводниковых детекторов «колодезного» типа. При этом осуществляется попеременное (обычно через 200-400 с) измерение скоростей счета исследуемого образца и репера, которые приготовлены из одного и того же исходного препарата. Отношение интенсивностей излучения образца и репера подбирается равным 1 (с точностью не хуже 0.1%), чем устранялась необходимость введения поправки на «мертвое» время аппаратуры. Кроме того, для обеспечения устойчивой работы спектрометрического тракта (см. рис.1) детектор должен постоянно находиться под нагрузкой. Это достигается тем, что в период смены излучателей над детектором помещается так называемый «загрузочный» источник того же спектрального состава, активность которого составляет примерно четверть от активности образца.

Также проводят специальные dilatометрические исследования для модельных систем, с целью установить влияние на регистрацию гамма-квантов возможного изменения формы и размеров источника при протекании в его объеме инициируемого экспериментатором физико-химического процесса. Так, при использовании раствора радиоактивного вещества в результате протекания ред-окс процесса возможно изменение плотности или объема образца. Опыты показали, что dilatометрические эффекты могут привести к увеличению или уменьшению скорости счета импульсов всего на 0,003-0,004%, то есть во много раз меньше статистических ошибок в измерении гамма-активностей образцов.

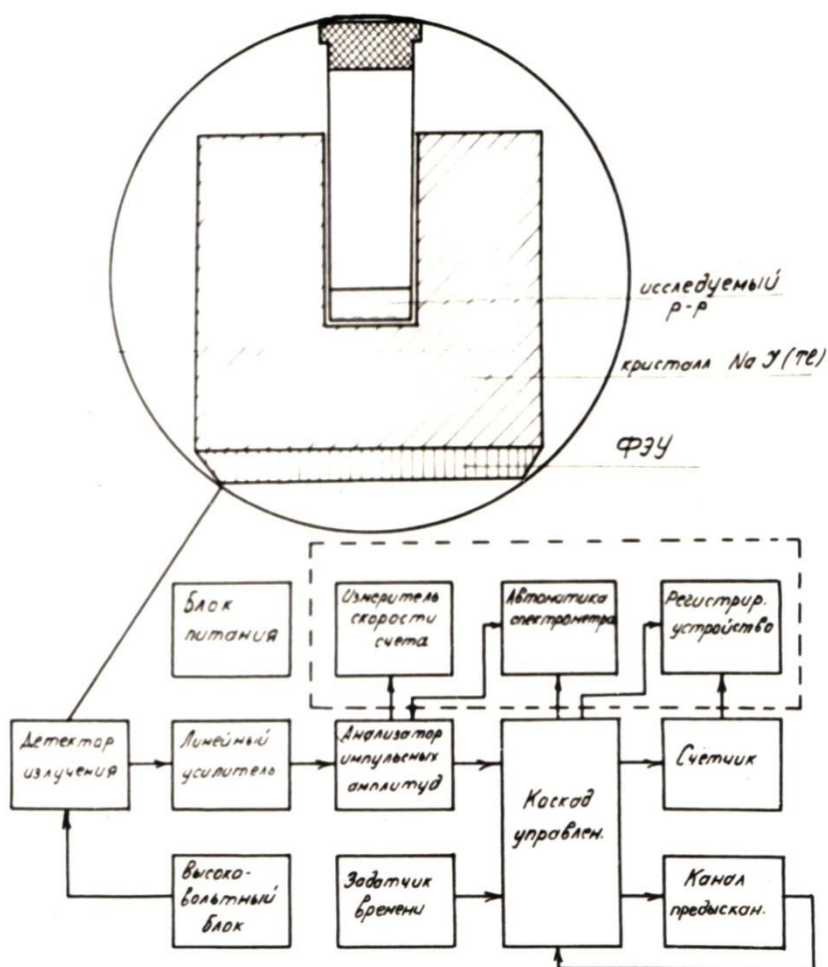


Рис.1. Блок-схема используемой в экспериментах гамма-спектрометрической аппаратуры

Одновременно было установлено, что незначительные добавки в образцы химических реагентов, как и компенсирующие добавки в реперы нейтральных в химическом отношении солей, не приводят к изменениям счетности гамма-квантов в пределах точности опыта.

Высокая (порядка 0,01-0,02%) точность определения амплитуд эффектов $\Delta I/I$ основывается на использовании достаточно быстродействующей гамма-спектрометрической аппаратуры, обеспечивающей скорость счета до $5 \cdot 10^4$ импульсов/с. Это позволяет получить в течение 8-10 часов работы на выбранном фотопике

интегральный счет в $(2-4) \cdot 10^8$ импульсов как для образца, так и для репера. Критерием устойчивости работы аппаратуры и постоянства геометрии опыта служит соответствие результатов измерений распределению Пуассона.

Более подробно теоретические соображения и описание типичных экспериментов, проведенных по методу « $\Delta I/I$ », изложены в [34]. Здесь же отметим, что возможны два варианта регистрации $\Delta I/I$ -эффектов в зависимости от времени жизни i -го уровня ядра дочернего атома (τ):

1) «статический» вариант. Если это время мало (как, например, в случае хрома-51, марганца-54 и т.п.), то материнские и дочерние атомы постоянно находятся в состоянии векового радиоактивного равновесия, и скорость счета изучаемого фотопика мгновенно отражает электронное состояние материнских атомов. В этом случае тщательное измерение активностей образца и репера производится только для исходного и конечного химических состояний радиоактивных атомов в образце, в объеме которого в промежутке между этими измерениями производится ред-окс процесс;

2) «кинетический» вариант. Если τ велико (как у германия-68, олова-113 и т.п.), то проведением какого-либо физико-химического процесса в источнике излучения можно резко (одномоментно, по сравнению с этим временем) нарушить вековое радиоактивное равновесие, а затем наблюдать за его восстановлением. Этот вариант богаче по своим возможностям и позволяет выполнить уникальные эксперименты, недоступные никаким другим методам. Так изучаемый радиоактивный образец можно подвергнуть воздействию давления, температуры, ионизации, изменения агрегатного состояния и др. в течение времени, необходимого для установления нового состояния радиоактивного равновесия. После чего можно прекратить воздействие и перейти к регистрации интенсивности гамма-излучения.

Таблица. Измеренные значения сдвига электронной плотности в области ядра при изменении состояния окисления радионуклида

Радионуклид	Состояние окисления		$(\Delta I/I) \cdot 10^4$, отн. ед.	$\Delta \Psi(0) ^2$, а.е.
	исходное	конечное		
^{51}Cr	VI	III	$-(7.0 \pm 1.5)$	$-(6.0 \pm 1.5)$
^{54}Mn	II	VII	$+(9.0 \pm 1.5)$	$+(9.0 \pm 1.5)$
^{54}Mn	VII	II	$-(9.5 \pm 1.5)$	$-(9.5 \pm 1.5)$
^{113}Sn	II	IV	$-(8.0 \pm 1.5)$	$-(95 \pm 20)$
$^{117\text{m}}\text{Sn}$	II	IV	$-(7.5 \pm 1.2)$	$-(90 \pm 20)$
$^{123\text{m}}\text{Te}$	IV	VI	$-(3.6 \pm 1.0)$	$-(42 \pm 10)$
$^{123\text{m}}\text{Te}$	VI	IV	$+(4.5 \pm 1.2)$	$+(45 \pm 10)$

В выполненных авторами работах по изучению «химических эффектов» $\Delta I/I$ были успешно апробированы оба варианта. Например, при исследовании жидкофазных окислительно-восстановительных процессов с участием радионуклидов, были получены

результаты, представленные в табл. Для нахождения величин $\Delta|\Psi(0)|^2$ использовались выражения (20) и (21).

Представленные в таблице данные адекватно отражают роль 3d-, 5s- и 5p-электронов в образовании $|\Psi(0)|^2$. Проанализируем некоторые из полученных результатов. Для примера рассмотрим некоторые из полученных на нашей кафедре результатов.

«Химические» изменения λ для соединений олова-113

Ядро олова-113 ($T_{1/2}=115$ суток) претерпевает ЭЗ с образованием ядерного изомера индий-113m ($T_{1/2}=99,4$ минут). Переход в основное состояние ядер индия-113 происходит радиационным путем посредством испускания гамма-квантов с энергией 392 кэВ, регистрация которых не представляет каких-либо затруднений.

В качестве исходного радиоактивного препарата, используемого для приготовления образцов, было взято металлическое олово-113, полученное продолжительной нейтронной активацией в реакторе 0,2 г металлического олова-112 (обогащением до 83,7%). Расчетная удельная активность радиоактивного препарата на конец облучения составила около 1 ГБк/г.

Облученное сырье было растворено в соляной кислоте в присутствии платины. С целью получения устойчивого соединения олова-113 со степенью окисления олова +II и очистки препарата от примесной активности сурьмы-125 был получен препарат в виде мелкокристаллического оксалата олова(II). В дальнейшем при проведении экспериментов определенное количество препарата (5-10 мг) растворялось в небольшом количестве (1,5-2 мл) 6н HCl. К приготовленному раствору добавлялось несколько капель раствора хлорида индия (1 мг/мл) – носителя на индий-113m, образующийся в результате ЭЗ ядром олова-113. Присутствие носителя в растворе позволяет исключить сорбцию «невесомых» количеств радиоактивного индия на стекле. Реперными источниками, как правило, служили аликвоты (1,5-2 мл) раствора тетрахлорида олова-113, полученные окислением олова (II) на воздухе.

Описанная методика использовалась при проведении экспериментов, как в «статическом», так и в «кинетическом» варианте.

Во втором случае для окисления олова(II) использовали свежеприготовленный раствор перманганата калия (5 мг/мл) с небольшой добавкой ортофосфорной кислоты. Последняя необходима для стабилизации раствора марганца(VII). При использовании варианта «статика» олово (II) окислялось добавлением в исходный раствор около 2 мг перманганата калия в виде порошка (до слабо-розовой окраски раствора). При этом в реперный раствор олова (IV) вносилось соответствующее количество хлорида марганца. Наблюдение за гамма-активностью источника проводилось с помощью спектрометрического тракта, сцинтилляционный детектор которого был снабжен кристаллом йодистого натрия колодезного типа. Это позволило обеспечить постоянство геометрии опыта, так как изучаемый образец плотно вставлялся в колодец кристалла.

Средневзвешенное значение эффекта $\Delta I/I$, полученное в результате измерений, выполненных по обеим схемам проведения эксперимента, представлены в таблице. Там же указано значение $\Delta|\Psi(0)|^2$, рассчитанное для случая перехода олова-113 из двухвалентного в четырехвалентное состояние.

«Химические» изменения λ для соединений олова-117m

В этом случае можно говорить о возможности наблюдения эффектов влияния химического окружения на процесс ВК в ядре долгоживущего ядерного изомера олово-117m₂ ($T_{1/2}=13,6$ суток). Разрядка промежуточного возбужденного состояния $3/2^+$ этого ядра происходит за счет испускания слабо конвертированного гамма-излучения с энергией 159 кэВ, следующего непосредственно за М4-переходом между изомерными состояниями. Следует обратить внимание на то, что время жизни долгоживущего изомерного состояния попадает во временной интервал, для которого удобно использовать оба основных метода исследования воздействия химического окружения радиоактивных атомов на λ , а именно, методы « $\Delta\lambda/\lambda$ » и « $\Delta I/I$ ».

Исходным сырьем для приготовления радиоактивных препаратов служило обогащенное металлическое олово-116, облученное в реакторе тепловыми нейтронами. Для выполнения работ по схеме $\Delta\lambda/\lambda$ были изготовлены твердые радиоактивные образцы, содержащие олово-117m в различных состояниях окисления: в виде оксалата олова(II) и двуокиси олова. После подгонки отношения счетностей обоих препаратов к 1 (с точностью не хуже 0.1%), они были запрессованы в смеси с окисью магния в герметически закрывающиеся измерительные стеклянные кюветы.

Сравнение гамма-активностей обоих образцов проводилось периодически в течение 20 суток. Расчет величины $\Delta\lambda/\lambda$ проводили с использованием выражения (17):

$$\Delta\lambda/\lambda=2(\lambda_{\text{Sn(II)}}-\lambda_{\text{Sn(IV)}})/(\lambda_{\text{Sn(II)}}+\lambda_{\text{Sn(IV)}})=+(7.5\pm 1.5)\cdot 10^{-4}$$

Опыты, выполняемые методом $\Delta I/I$, осуществлялись по той же схеме, что и в случае олова-113. Величину $\Delta|\Psi(0)|^2$ получили с помощью выражения (21).

Результаты экспериментов по методу $\Delta I/I$ с обоими радиоактивными изотопами олова, представленные в таблице, хорошо согласуются между собой в пределах статистической погрешности.

По сходному сценарию проводился эксперимент по изучению «химических» изменений λ для соединений теллура-123m. Упомянем только, что при проведении эксперимента в этом случае было использовано свойство теллура(VI) медленно (в течение до нескольких часов) восстанавливаться до состояния теллура(IV) в солянокислой среде. Скорость протекания процесса можно регулировать изменением кислотности.

«Химические» изменения λ для соединений церия-139

Измерить величины «химических» эффектов $\Delta I/I$ для случая ЭЗ в ядре церия-139 оказалось значительно сложнее. Уже оценочные расчеты показали, что при переходе церия в растворе из одного устойчивого состояния окисления (III) в другое (IV) следует ожидать эффект $+3.6\cdot 10^{-4}$. Это значение соответствует изменению вероятности ЭЗ, обусловленному изменением $|\Psi(0)|^2$. Однако здесь, в отличие от аналогичных экспериментов с хромом-51, марганцем-54 и оловом-113, нельзя пренебречь «химическим» изменением импульса нейтрино, поскольку разница в массах ядра церия-139 в основном состоянии и ядра лантана-139 в $5/2^+$ -состоянии сравнительно невелика (около 100 кэВ). Вклад этой величины, связанной с увеличением энергии связи 1s-

электронов при переходе $\text{Ce(III)} \rightarrow \text{Ce(IV)}$, в измеряемую величину $\Delta I/I$ по нашим оценкам составляет $-3.0 \cdot 10^{-4}$. В итоге, ожидаемая амплитуда эффекта в этом случае должна была составить величину $\Delta I/I = +0.6 \cdot 10^{-4}$.

Для улучшения статистических показателей использовали особый методический прием, позволяющий наблюдать **двойную** величину эффекта. Без применения репера осуществлялось параллельное проведение ред-окс процессов в двух образцах. После установления исходного отношения гамма-активностей образцов по фотопику 166 кэВ в образце 1 окисляли Ce^{III} введением в 1 мл его сернокислого раствора 1 мг KMnO_4 до появления устойчивой слабо-розовой окраски. Одновременно в образце 2 восстанавливали Ce^{IV} внесением в раствор 2 мг Na_2SO_3 . Для компенсации добавок твердых реагентов в образцы вносили соответствующие количества индифферентных в ред-окс отношении компонент - 2 мг Na_2SO_4 в образец 1 и 1 мг MnSO_4 в образец 2. В качестве реагентов и добавок использовали безводные соли упомянутых веществ. После завершения химических процедур измеряли конечное отношение активностей образцов.

В качестве детектора гамма-излучения использовали сцинтилляционный счетчик на основе кристалла NaI(Tl) размером 76×76 мм с колодцем 40×20 мм, в который помещали стеклянные кюветы с образцами (см. рис. 1). Гамма-спектрометрические измерения дали следующий результат:

$$[I(\text{Ce}^{\text{IV}}) - I(\text{Ce}^{\text{III}})]/\bar{I} = + (1.4 \pm 0.6) \cdot 10^{-4}.$$

Полученное значение чуть выше ожидаемого. Как и предполагалось, «химические» изменения импульсов нейтрино, рассчитанные по литературным данным для свободных атомов и ионов, не согласуются с результатами экспериментов, проведенных на атомах и ионах, находящихся в химически связанном состоянии. Такой результат хорошо отражает экранирующую роль 4f-электронов в образовании $|\Psi(0)|^2$: уход данного электрона на образование химической связи приводит к росту полной электронной плотности в области ядра атома церия-139 и, соответственно, увеличению вероятности ЭЗ этим ядром.

Сравнительный анализ амплитуд «химических» эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ и $\Delta I/I$, полученных для соединений хрома-51

При анализе наблюдаемых эффектов в нашей лаборатории можно с уверенностью говорить об определенном преимуществе «метода $\Delta I/I$ » над методикой, использующей прямые измерения периодов полураспада радионуклидов, находящихся в различном химическом окружении. Речь идет, прежде всего, о временном факторе, а также радиационной и химической устойчивости твердых радиоактивных источников.

Образцы хрома-51 были изучены нами как методом $\Delta I/I$, так и с помощью квазидифференциального метода $\Delta\lambda/\lambda$. Данный радионуклид был выбран предметом исследования по следующим соображениям. Химия хрома – яркого представителя 3d-элементов – достаточно богата, что позволяет получать его соединения в различных устойчивых валентных состояниях, как в твердой, так и в жидкой форме. Это обстоятельство удачно сочетается с ядерно-физическими свойствами изотопа хрома-51, атомы которого претерпевают ЭЗ, а энергия сопровождающего этот процесс гамма-излучения - 320 кэВ, удобна для регистрации сцинтилляционным детектором (см. рис.2).

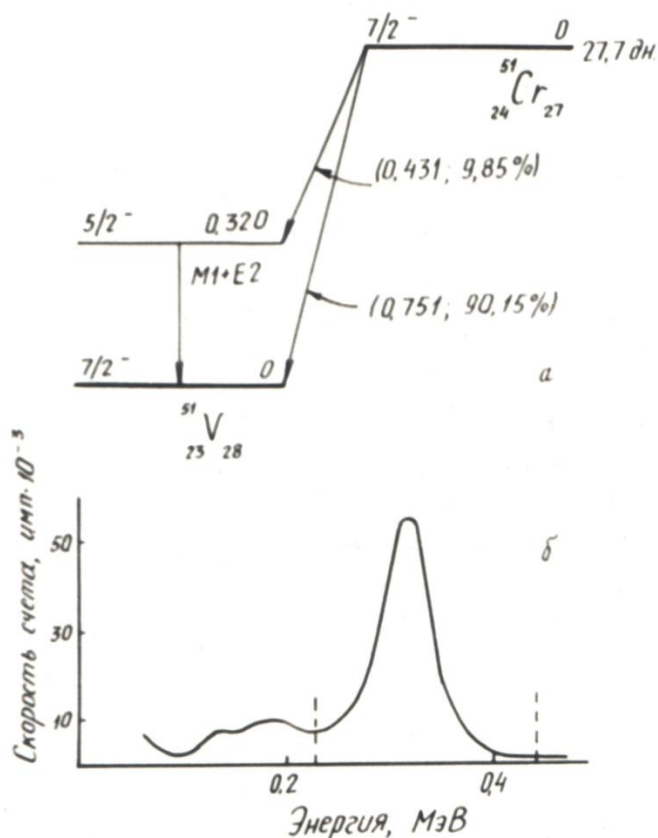


Рис.2. а) схема распада ядра хрома-51; б) амплитудный сцинтилляционный спектр хрома-51, регистрируемый фотопик выделен пунктиром

Период полураспада хрома-51 (27.7 суток) позволяет проводить накопление информации с достаточно большими статистическими наборами импульсов при общей длительности эксперимента в 40-50 суток.

Для приготовления источников в виде растворов хромсодержащих солей был использовано облученное в реакторе сырье в виде порошка бихромата калия. Радиоактивный препарат переводили в водный раствор, который подкисляли азотной кислотой. Аликвоты полученного раствора переносили в стеклянные измерительные кюветы. В одну из таких кювет добавляли раствор гипофосфита натрия в количестве, необходимом для полного восстановления хрома(VI) в другое устойчивое состояние окисления +III. Кюветы герметически закрывались и спустя сутки ставились на гамма-спектрометрические измерения.

Поскольку химическая реакция, протекающая в закрытом объеме, не могла повлиять на радиоизотопный состав нашего раствора, не было никакой необходимости учитывать возможное (но не обязательное) присутствие в нем радиоактивных примесей. Более того, предварительный гамма-спектрометрический анализ облученного реакторного препарата $K_2^{51}Cr_2O_7$, проведенного с помощью полупроводникового детектора (ДГДК-60Б) не показал присутствия в нем посторонних радионуклидов: в гамма-спектре кроме фотопика 320 кэВ, принадлежащего хрому-51, других фотопиков в диапазоне от 50 до 1000 кэВ обнаружено не было. Это позволило осуществить несложную радиохимическую

операцию по приготовлению еще одного твердотельного источника, содержащего хром-51 в трехвалентной форме.

Источник $^{51}\text{Cr}(\text{NO}_3)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ был приготовлен следующим образом. К аликвоте исходного радиоактивного раствора хрома(VI) добавили раствор гипофосфита натрия, а затем полученный раствор хрома(III) предельно осторожно упаривался досуха под инфракрасной лампой. Небольшие количества обеих хромсодержащих солей в смеси с окисью магния были запрессованы в герметичные измерительные кюветы.

Скорость распада всех четырех приготовленных источников измерялась в одинаковой геометрии на спектрометре, специально предназначенном для измерения скоростей счета гамма-препаратов, снабженном кристаллом $\text{NaI}(\text{Tl})$ размером 63×63 мм с колодецем глубиной 40 мм. Максимальная пропускная способность прибора составляла до 10^5 имп/с, что позволяло в течение примерно 10 часов измерений накопить до $2 \cdot 10^8$ импульсов для каждого из приготовленных источников. Постоянство геометрии опыта, необходимое при смене образцов, производившейся каждые 2 минуты (экспозиция отдельного измерения), обеспечивалось подбором измерительных кювет, герметически закрывающихся толстостенных стеклянных пробирок, легко и одновременно плотно вставляемых в колодець кристалла сцинтилляционного детектора. Все прочие условия, позволяющие обеспечить неизменность геометрии опыта и устойчивую работу спектрометра, аналогичны правилам, установленным нами для метода $\Delta I/I$, о чем было сказано выше.

Результаты проведенных таким образом исследований представлены на рис.3.

Анализ данной серии опытов позволяет говорить о тождественности результатов, полученных для пар источников, находящихся в жидкой и твердой формах. В обоих случаях для пары $\text{Cr}(\text{III}) - \text{Cr}(\text{VI})$ относительное изменение постоянной радиоактивного распада совпадает как по знаку, так и по абсолютной величине (в пределах точности эксперимента).

Если $\Delta\lambda/\lambda \neq 0$, то соотношение активностей (A) двух сравниваемых источников (а,б) линейным образом зависит от времени (t). Переформатировав выражение (17), получим для нашего случая следующее:

$$A_{a/b}(t) = A_{a/b}(0)(1 - \lambda t \Delta\lambda_{b/a}/\lambda).$$

Для времени $t = 1.43T_{1/2}$, равному среднему времени жизни радионуклида хром-51, из представленных результатов легко определить значение $\Delta\lambda/\lambda$ для отдельных пар источников.

Видно, что для пар источников, совпадающих по валентному состоянию хрома, отношение активностей в течение всего эксперимента остается постоянным в пределах точности опыта, то есть $\Delta\lambda/\lambda = 0$. Значения $\Delta\lambda/\lambda = 2(\lambda_{\text{Cr}(\text{III})} - \lambda_{\text{Cr}(\text{VI})})/(\lambda_{\text{Cr}(\text{III})} + \lambda_{\text{Cr}(\text{VI})})$ для пар разновалентных источников одинаковы как для случая жидких, так и для случая твердых образцов, а именно:

$$\Delta\lambda/\lambda = - (7.5 \pm 2.5) \cdot 10^{-4},$$

где абсолютная погрешность рассчитана с учетом выбранной нами 95%-ной доверительной вероятности, то есть удвоенного значения среднеквадратического отклонения.

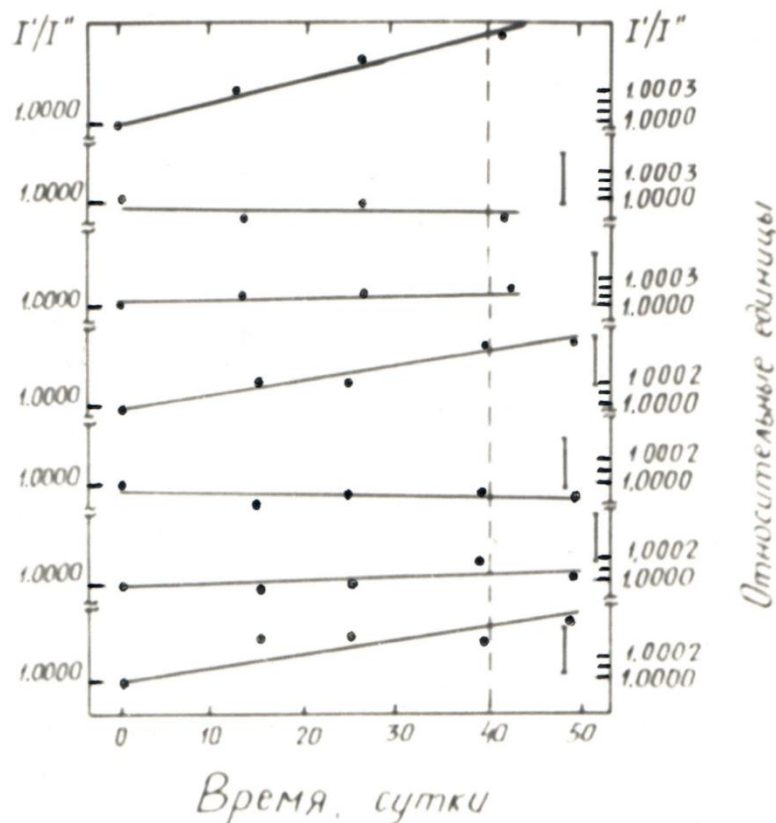


Рис.3. Отношения скоростей счета следующих пар источников излучения хрома-51:

1 – Cr(III)_{р-р}- Cr(VI)_{1,р-р}; 2 – Cr(VI)_{1,р-р}- Cr(VI)_{2,р-р}; 3 – Cr(VI)_{2,тв.}- Cr(VI)_{2,р-р};
 4 – Cr(III)_{2,тв.}- Cr(VI)_{1,тв.}; 5 – Cr(III)_{2,тв.}- Cr(III)_{1,тв.}; 6 – Cr(VI)_{2,тв.}- Cr(VI)_{1,тв.};
 7 – Cr(III)_{1,тв.}- Cr(VI)_{2,тв.}

Полученный таким образом результат совпадает (в пределах точности эксперимента) с данными по измерению эффектов $\Delta I/I$ на образцах соединений радионуклида хрома (см. табл.). В этом случае остался прежним и объект исследования – хром-51 и способ регистрации гамма-излучения 320 кэВ. В химическую часть эксперимента были внесены принципиальные изменения.

Вместо образцов, химическая природа которых должна строго сохраняться в течение продолжительного отрезка времени, сравнимого со средним временем жизни радионуклида, был использован процесс восстановления хрома(VI) в растворе, протекающий быстро – с помощью сульфита натрия. Исходный раствор содержал следующие компоненты: хромат(⁵¹Cr) натрия с концентрацией по соли – 2.5 мг/мл и сульфат алюминия – 25 мг/мл, растворенные в 2.5 н серной кислоте. Сульфат алюминия был добавлен для предотвращения (в процессе восстановления хрома(VI)) возможного образования электрического слоя трехзарядных катионов хрома на границе стекло (стенка измерительной кюветы) - раствор. Роль репера в относительных измерениях интенсивности выполнял источник того же состава, что и рабочий образец – оба готовились из исходного раствора: по 1 мл переносилось в измерительные кюветы.

Сначала набирался достаточный статистический материал для исходного состояния хрома в рабочем образце – ⁵¹Cr(VI). После этого непосредственно в измерительной кювете

проводилось восстановление хрома(VI) сульфитом натрия до трехвалентного состояния окисления (III). Затем производилось сравнение интенсивностей гамма-излучения от рабочего образца и репера до получения достаточного статистического материала (наборы в каждом опыте составляли обычно 120-150 миллионов импульсов, а продолжительность опыта: 4-5 часов).

Для предотвращения возможных искажений результатов из-за изменения плотности раствора или объема рабочего образца, вследствие добавления в него восстановителя (4 мг безводного сульфита натрия), одновременно в реперный образец вносили соответствующее количество «нейтрального», с химической точки зрения, безводного сульфата натрия.

Критерием устойчивости работы радиометрической аппаратуры и постоянства геометрии опыта, как и в случае экспериментального определения эффектов $\Delta\lambda/\lambda$, служит соответствие полученных амплитуд эффектов $\Delta I/I$ распределению Пуассона.

Как среднее для пяти значений $\Delta I/I$ для пары Cr(III) - Cr(VI) было найдено:

$$\Delta I/I = -(7 \pm 2) \cdot 10^{-4},$$

что хорошо согласуется с величиной $\Delta\lambda/\lambda$, полученной нами для этих же химических форм хрома-51. Адекватность полученной обоими методами информации позволяет сделать вывод, что в пределах точности эксперимента изменение интенсивности гамма-излучения определяется в нашем случае только разностью времен жизни радионуклида в изменяющемся химическом окружении. Поэтому получение экспресс-информации такого рода по методу $\Delta I/I$ вполне может заменить трудоемкие и продолжительные эксперименты по прямому измерению эффектов $\Delta\lambda/\lambda$.

Так как при $\lambda_{ЭЗ}$ зависит от изменения электронной плотности в области ядра (2,21), то по результатам экспериментального определения амплитуд эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ и $\Delta I/I$ можно рассчитать значение $\Delta |\Psi(0)|^2$ при переходе от состояния $^{51}\text{Cr(III)}$ к состоянию $^{51}\text{Cr(VI)}$: $\Delta |\Psi(0)|^2 = -(6.0 \pm 1.5) \text{ а.е.}$

Даже в отсутствие точной информации о возможных электронных конфигурациях, которые соответствуют этим состояниям, качественно полученный результат вполне понятен, если учитывать различия в величине общей плотности s-электронов в области ядер атомов хрома, находящихся в различной степени окисления. Удаление 3d-электрона уменьшает экранирующее действие 3d-орбитали на величину $|\psi_{3s}(0)|^2$. Отсюда следует, что плотность $|\psi_{3s}(0)|^2$ на ядрах $^{51}\text{Cr(VI)}$ выше, чем у $^{51}\text{Cr(III)}$, и в соответствии с этим вероятность ЭЗ выше, что и подтверждается экспериментом.

Поскольку в обоих случаях получены высокие значения амплитуд эффектов $\Delta I/I$ и $\Delta\lambda/\lambda$, которые сравнительно легко выявляются экспериментально, можно считать хром-51 перспективным изотопом для решения ряда задач общей радиохимии. Например, для исследования химического состояния «горячих» атомов хрома, претерпевших реакцию радиационного захвата нейтронов $^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$, или изучения их поведения при термическом и радиационном отжиге и т.д.

Аналогичная картина наблюдается и в случае марганца-54. И здесь, и там методы $\Delta I/I$ и $\Delta\lambda/\lambda$ позволяют получать вполне достоверную картину, возникающую при вмешательстве в состояние электронных оболочек этих радионуклидов. Следует заметить, что среди многочисленных изотопов этих переходных элементов, в отличие от железа, нет представителей, имеющих мёссбауровские переходы. В этом, пожалуй, состоит

уникальность рассмотренных нами методов получения информации по величинам $\Delta|\Psi(0)|^2$.

Интересный результат получен авторами работы [33]. Сотрудники одного из токийских университетов провели эксперимент по определению периодов полураспада радионуклида ${}^7\text{Be}$, находящегося в двух связанных состояниях: введенного внутрь клетки фуллерена C_{60} – ${}^7\text{Be}@{}^7\text{C}_{60}$ и в образце металлического бериллия, легированного радионуклидом – $\text{Be}({}^7\text{Be})$. Следует обратить внимание на способ получения «эндондрического» фуллерена – метод имплантации ядер отдачи, образовавшихся в реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$.

Образец $\text{Be}({}^7\text{Be})$ был получен при облучении металлического бериллия тормозным излучением от отклоняющегося электронного пучка по реакции ${}^9\text{Be}(\gamma,2n){}^7\text{Be}$. Измеренный авторами $T_{1/2}$ для образца $\text{Be}({}^7\text{Be})$ – $T_{1/2} = (53,12 \pm 0,05)$ сут., не выходит за рамки интервала значений $T_{1/2}({}^7\text{Be})$ установленного их многочисленными предшественниками, которые вводили ${}^7\text{Be}$ в различные металлические и неметаллические матрицы. Этот интервал довольно узок - значение $T_{1/2}({}^7\text{Be})$ всегда находится в диапазоне от 53,1 до 53,3 суток и определяется причинами, изложенными нами выше. Для расчетов образец $\text{Be}({}^7\text{Be})$ использовался в качестве репера.

Следовало ответить на вопрос: «как изменяется скорость электронного захвата в ${}^7\text{Be}$ внутри клетки C_{60} по сравнению с другими ситуациями?». Как признаются экспериментаторы: «было удивительно наблюдать, что период полураспада, полученный для ${}^7\text{Be}$ в образце ${}^7\text{Be}@{}^7\text{C}_{60}$, $T_{1/2} = 52,68 \pm 0,05$ дней на целых **0,83%** короче, чем для образца металла $\text{Be}({}^7\text{Be})$. То есть определяем процентную разницу как

$$\Delta\lambda/\lambda = [100 \times (\lambda(\text{C}_{60}) - \lambda(\text{металл})) / \lambda(\text{металл})].$$

Эта разница в периодах полураспада достаточно велика: она четко различима визуально». Более того, полученная амплитуда эффекта заметно выше значений $\Delta\lambda/\lambda$, сообщенных ранее для случаев изменения химической структуры радиоактивных атомов или результат механического давления.

С точки зрения авторов имеет место сильное воздействие уникальной окружающей среды на ЭЗ в ${}^7\text{Be}$, «инкапсулированного» в молекулу C_{60} . По-видимому, сразу несколько факторов могут способствовать возникновению этой уникальной среды: множество π электронов C_{60} и особые динамические условия взаимодействия электронов внутри клетки C_{60} , которые включают колебательные и/или вращательные движения. Все это может существенно влиять на величину **полной электронной плотности** на ядре ${}^7\text{Be}$.

Авторы полагают, что обнаружение столь «рекордно» больших величин $\Delta\lambda/\lambda$ будет весьма полезно для стимулирования дальнейших экспериментальных и теоретических исследований воздействия окружающей радиоактивные атомы среды на их радиоактивный распад.

Некоторые другие способы влияния на вероятность радиоактивного распада

Следует отметить, что в последнее время предпринимаются попытки обнаружить иные способы воздействия на вероятность спонтанного радиоактивного распада, принципиально отличные от рассмотренного нами выше. На первый план выдвигается комплексная задача: не только получать новые фундаментальные знания о взаимовлиянии

процессов, происходящих в атомном ядре и его электронной оболочке, но и найти способы их практического использования.

Так, «управлять» скоростью распада γ -радиоактивных ядер возможно в некоторых случаях путем индуцирования его собственного электромагнитного излучения.

Например, об этом упоминается в работе [34] в отдельном разделе. Речь идет об индуцировании электромагнитных переходов гамма-радиоактивных ядер через механизм низкотемпературной коллективной ядерной сверхлюминесценции (КЯС).

В качестве примера сошлемся на работу [35], выполненную на кафедре радиохимии СПбГУ. В ней сообщается, что увеличение гамма-радиоактивности за счет низкотемпературного инициирования КЯС удалось зарегистрировать на препаратах, содержащих долгоживущий ядерный изотоп $^{123m}_2\text{Te}$ с периодом полураспада: $T_{1/2}=119,7$ сут. Образцы представляли собой керамические порошки в виде $\text{Mg}(^{123m}_2\text{Te})\text{O}$, запрессованные в тонкие трубки из кварцевого стекла. Было приготовлено два образца: №1 с активностью в 6 МБк, и №2 – 0,1 МБк.

Один из экспериментов был выполнен для прямого продолжительного измерения постоянной распада в охлажденном источнике. Для этого источник №1 хранили в течение почти 9 месяцев при температуре жидкого азота (78 К). Примерно раз в неделю его извлекали из криостата, отогревали и определяли его активность (на линии 159 кэВ) на одной и той же установке и в одинаковой геометрии. После этого на меньшем, но строго фиксированном расстоянии от детектора, измеряли активность образца №2 (реперного источника), который постоянно хранился при комнатной температуре (300 К). Такая методика позволяла исключить в момент измерения возможное влияние низкой температуры на выход γ -квантов с энергией 159 кэВ, сопровождающих изомерный переход в ядре $^{123m}_2\text{Te}$: $m_2 \rightarrow m_1$ с энергией 88,5 кэВ.

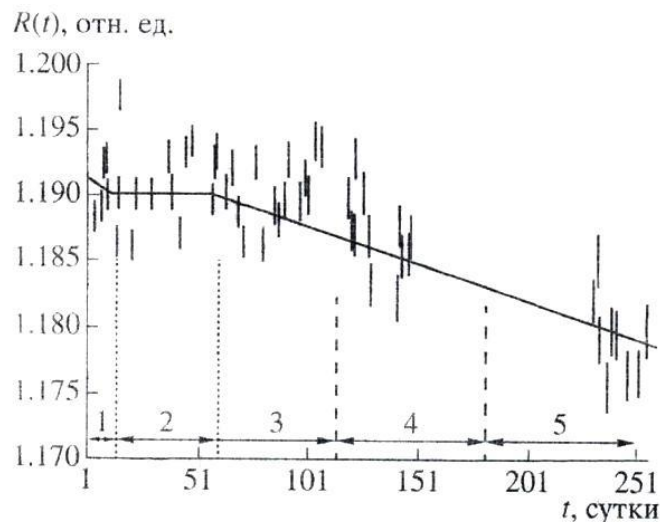


Рис. 4. Отношение $R(t)$ активности керамического образца $\text{Mg}(^{123m}_2\text{Te})\text{O}$ под №1 к активности реперного источника №2, имеющего тот же изотопный состав.

В зоне «2» образец №1 хранился при 300 К, а в остальных зонах – при 78 К.

После очередного измерения активности первый источник возвращали в контейнер с жидким азотом. Результаты низкотемпературного эксперимента представлены на рис. 4.

Эксперимент был прерван на 13-й день, чтобы с достаточной статистикой измерить начальное значение отношения $R(t)$. Также надо было проверить, не вызывает ли 13-суточное хранение источника при 78 К необратимых фазовых или химических переходов, влияющих на постоянную распада. Эксперимент возобновили на 59-е сутки.

Было обнаружено, что охлаждение керамики до 78 К, с последующем хранением источника при температуре жидкого азота, существенно увеличивает выход γ -квантов с энергией 88,5 кэВ. Из измерений авторов следует, что период полураспада ^{123m}Te в реперном образце №2 при 300 К составлял $T_{1/2} = (119,4 \pm 0.2)$ сут., что в пределах погрешности совпадает с известными табличными данными $T_{1/2} = 119,7$ сут. А в низкотемпературном, сверхизлучательном образце №1 скорость γ -распада статистически достоверно возросла, а период полураспада понизился до значения $T_{1/2} = (117,5 \pm 0.2)$ сут.

По расчетам авторов амплитуда эффекта при включении механизма КЯС в случае охлаждения образца до 78 К составила величину:

$$\Delta\lambda/\lambda = (1.8 \pm 0.2) \%$$

Уже на протяжении долгого времени комплексное исследование влияния различных внеядерных факторов на вероятность низкоэнергетичных ядерных изомерных переходов проводятся сотрудниками Радиевого института. Рассмотрим несколько примеров.

Так в работе [36] сообщалось о результатах исследования влияния металлической матрицы на вероятность высококонвертированного изомерного перехода в ядре ^{99m}Tc . Авторы приводят интересную подборку ссылок на работы зарубежных ученых, которым удалось получить значимые величины эффектов $\Delta\lambda/\lambda$ для данного ядерного изомера. В частности, приводится «классический» результат из работы Бейнбриджа et.al [4]:

$$[\lambda(\text{KTcO}_4) - \lambda(\text{Tc}_2\text{S}_7)] / \lambda(\text{KTcO}_4) = (0.27 \pm 0.01) \%$$

В [36] изучали вероятность данного изомерного перехода в ^{99m}Tc , находящегося в металлических матрицах Au и Ag, в сравнении с вероятностью перехода в пертехнетате. Влияние металла матрицы на λ определяли по различию изменения во времени скорости счета γ -квантов с энергией 140 кэВ, сопровождающих изомерный переход в ^{99m}Tc .

Расчеты показали, что вероятность КИП в этих случаях отличается от λ в металлическом технеции не более, чем на 0.1%, то есть практически в пределах стандартного отклонения.

Тем не менее авторы работы [37] по-прежнему считают, что наблюдаемое в эксперименте с ^{99m}Tc изменение вероятности изомерного перехода в различных металлических матрицах представляет большой интерес: остается неясным, какие именно параметры матрицы влияют на величину эффекта. Определяется ли эффект общими диэлектрическими свойствами матрицы, такими как коэффициент поглощения фотонов на частоте изомерного перехода, или, например, важны только параметры матрицы, определяемые электронами проводимости. По их мнению ^{99m}Tc не очень удобен для таких исследований ввиду малой величины эффекта матрицы. Более перспективным объектом для систематического исследования им представляется изомерный переход с энергией 910 эВ в ядре ^{154m}Eu с периодом полураспада 50 нс. После изомерного перехода излучаются γ -кванты с энергией около 100.88 кэВ. Измеряя изменение выходов этих γ -квантов, можно измерить изменение вероятности перехода 910 эВ в ядре ^{154}Eu непосредственно в матрице.

Другое преимущество перехода 910 эВ состоит в том, что энергия этого перехода меньше, чем энергия изомерного перехода в ядрах ^{99m}Tc , и можно было ожидать, что эффект матрицы для перехода 910 эВ окажется больше.

В результате проведения серии экспериментов с различными металлическими и неметаллическими источниками, легированными радионуклидом европия были получены обнадеживающие результаты. Было обнаружено, что выход γ -квантов 100.9 кэВ и вероятность перехода 910 эВ для ^{154m}Eu в металлическом Sm в пределах точности эксперимента такие же, как и для источника, приготовленного в виде хлорида Sm. В то же время выход γ -квантов 100.9 кэВ в сплаве Sm–Sn на 14% **больше**, чем для ^{154m}Eu в источнике SmCl_3 . Это превышение показывает, что вероятность перехода 910 эВ в ядре ^{154m}Eu в сплаве Sm–Sn на 33% меньше, чем для ^{154m}Eu в источнике SmCl_3 .

Кроме того, был проведен пробный эксперимент, в котором заменили сплав Sm–Sn на сплав Sm–Pb. Предварительные результаты этого эксперимента показывают, что для ^{154m}Eu в сплаве Sm–Pb вероятность перехода 910 эВ заметно **меньше**, чем в источнике SmCl_3 .

В последнее время сотрудниками Радиевого института в кооперации с учеными из других организаций заявлена интересная тематика, связанная с поисками индуцированной разрядки изомерных состояний ядер, или **стимулированного девозбуждения ядерных изомеров (СДЯИ)**. Эта проблема, на наш взгляд, тесно увязана с идеей создания γ -лазера.

Так в работе [38] сообщается о результатах исследования такого рода на ядрах изомера ^{186m}Re (см. рис.5). С точки зрения авторов для поиска стимуляции ядерных переходов перспективным является использование лазерной плазмы высокой плотности энергии.

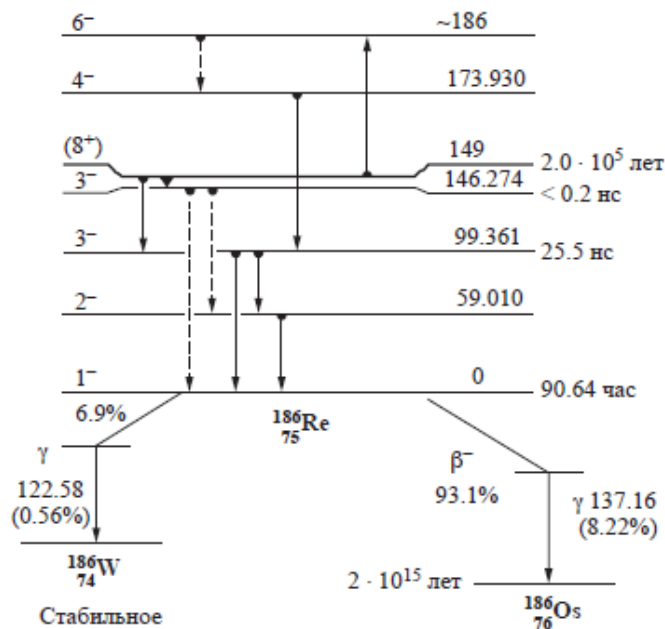


Рис. 5. Схема уровней ядра ^{186}Re и схема распада долгоживущего изомерного состояния. Энергии уровней указаны в кэВ.

Стимуляция ядерных переходов с энергией в десятки кэВ в основном изучалась в плазме, создаваемой световыми импульсами длительностью около 1 пс, с энергией в

десятки Дж, сфокусированной на мишени в пятно поперечником около 100 мкм. В такой плазме энергия фотонов, в максимуме планковского спектра равная нескольким кэВ, сравнима с энергией многих ядерных переходов.

Для изомерных переходов с энергией в несколько кэВ предпочтительнее выглядит использование лазеров, дающих световые импульсы более длительные (порядка 1 нс), но значительно большей энергии – до нескольких кДж в импульсе, за счет чего в лазерной плазме находится значительно большая масса вещества, но температура такой плазмы будет значительно ниже. Изомерный переход в ядре ^{186m}Re , который привлек внимание, прежде всего, из-за небольшой энергией перехода (около 2.7 кэВ), а большого периода полураспада (порядка $2 \cdot 10^5$ лет) изомерного уровня.

Импульсное облучение образцов, содержащих изомер ^{186m}Re , осуществляли на установке «Искра-5» ВНИИЭФ. После лазерного импульса в созданной плазме происходит скачкообразное дополнительное заселение основного состояния ядра ^{186}Re . При этом равновесие между заселенностями изомерного и основного уровнями ядра нарушается, вследствие чего сразу после импульса должно наблюдаться плавное экспоненциальное уменьшение интенсивности γ -линии 137 кэВ с периодом полураспада основного состояния ^{186}Re до своего равновесного значения. Таким образом, в γ -спектрах облученного ^{186m}Re должен иметь место временной спад интенсивности γ -линии 137 кэВ, появляющейся при разрядке возбужденного состояния в ядре ^{186}Os . Однако эксперимент показал, что вначале интенсивность возрастала и только потом экспоненциально убывала к равновесному значению с периодом порядка 112 ± 10 часов (см. рис. 6).

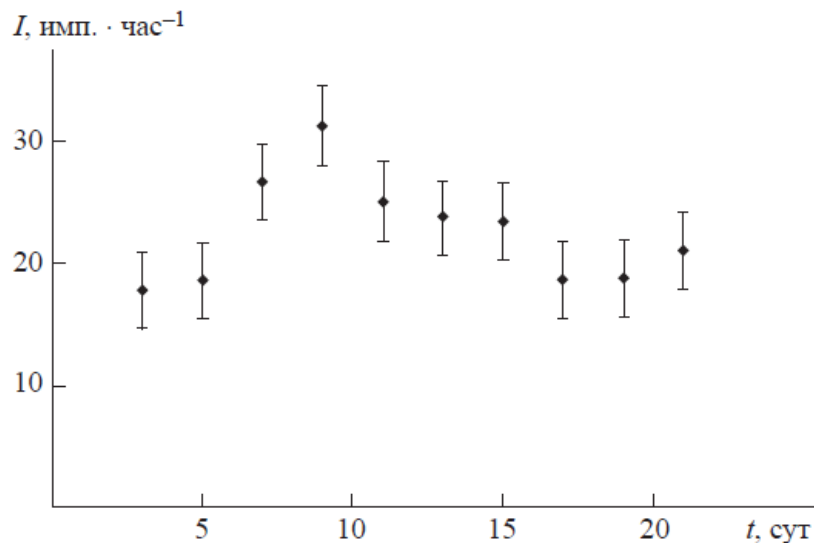


Рис. 6. Зависимость интенсивности линии 137 кэВ (I) в γ -спектрах облученного ^{186m}Re от времени после облучения мишени (t).

Наличие столь ярко выраженного максимума на рис. 6 позволяет предположить, что в ядре ^{186}Re существует некое ранее не известное долгоживущее состояние, которое заселяется при стимулированной разрядке изомера ^{186m}Re . Авторы обозначили это гипотетическое состояние как "изомер X", период полураспада которого должен быть равен нескольким суткам.

По их расчетам, измерения γ -спектров облученных мишеней демонстрируют стимулированную разрядку приблизительно 10^{-7} части изомерных ядер, находящихся в

лазерной плазме. Несмотря на малую величину наблюдавшегося эффекта, который по-прежнему нуждается в независимом подтверждении, результат представляет интерес, поскольку вообще эффектов стимулированной разрядки изомеров было обнаружено мало, и каждый такой случай важен для исследования этого явления.

Не до конца понятен, как считают авторы, механизм протекания СДЯИ в плазме на ядрах ^{186m}Re . Однако достоверно удалось выяснить, что этот механизм стимуляции отличается от **непосредственного воздействия** рентгеновского излучения или электронов на атомы с изомерными ядрами ^{186m}Re .

В результате экспериментов, проведенных в Радиовом институте, при облучении мишени с изомером рения тормозным излучением и электронами не обнаружили никакого нарушения радиоактивного равновесия в системе $^{186m}\text{Re} - ^{186}\text{Re} - ^{186}\text{Os}$, хотя интегральные потоки электронов и фотонов намного превышали те значения, которые они имели в лазерной плазме установки “Искра-5”.

В 2018 году вышла в свет работа В.В. Кольцова [39], посвященная перспективам изучения СДЯИ в импульсной лазерной плазме. Исследование проводилось в рамках идеи создания контролируемого источника энергии. По мнению автора, попытки разрядки изомерных состояний за счет стимуляции так называемых триггерных переходов с помощью внешнего рентгеновского излучения в области резонансной частоты, либо кулоновским возбуждением пока, по отдельности, к успеху не привели. Гораздо эффективнее, на его взгляд, использовать лазерную плазму, где одновременно присутствует и интенсивное рентгеновское излучение, и интенсивные потоки электронов и ионов, а также высокая степень ионизации атомов с изомерными ядрами. При этом для достижения существенных результатов следует, например, заняться поиском новых ядерных изомеров, привлечение которых помогло бы установить механизмы разрядки изомерных состояний.

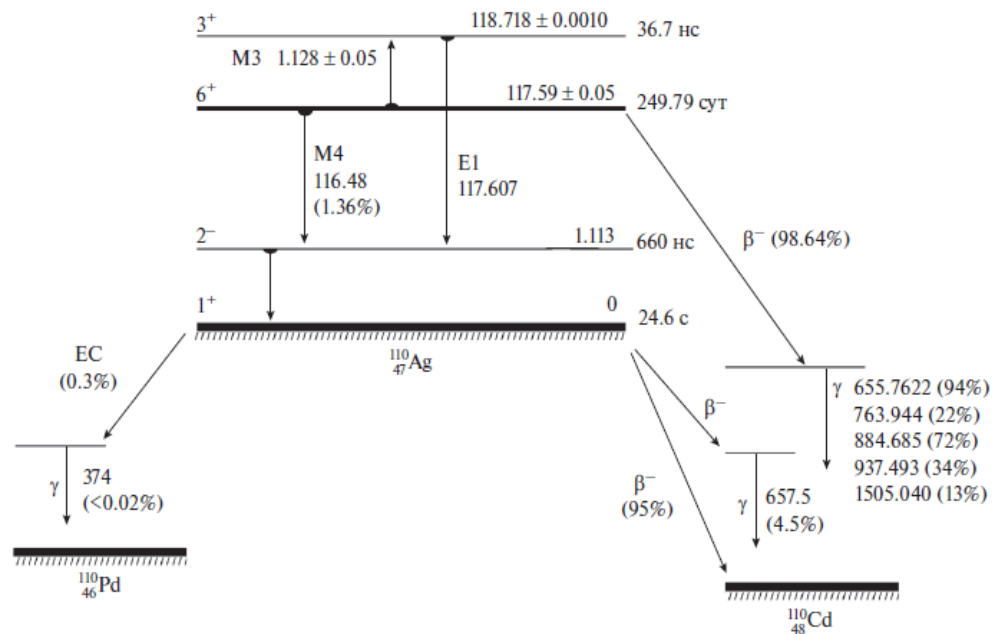


Рис. 7. Схема распада ядра ^{110m}Ag

Кольцов предлагает обратить также внимание на M4-переход в ядре ^{110m}Ag с периодом полураспада около 250 суток и энергией перехода 116.5 кэВ. В работе [39]

приводится подробная схема «детектирования» процесса девозбуждения с использованием двух групп γ -квантов, присутствующих в сложной схеме распада данного изомера, и условно названных автором «мгновенными» и «запаздывающими» (см. рис. 7).

Из схемы видно, что стимуляция в плазме разрядки изомера ^{110m}Ag возможна, например, возбуждением МЗ-перехода ($\Delta E \sim 1.13$ кэВ) с долгоживущего изомерного уровня на триггерный уровень 118.72 кэВ с последующим распадом в основное состояние ядра ^{110}Ag . Автором приводятся расчеты вероятности процесса девозбуждения ядерного изомера серебра с привлечением механизма обратной внутренней конверсии (ОВЭК), который может быть реализован в лазерной плазме при наличии в ней большого количества свободных электронов. Пока оценка вероятности ОВЭК дает ничтожно малую величину $P_{\text{ОВЭК}} \sim 2 \cdot 10^{-21}$, прежде всего, ввиду малости ширины конверсионного МЗ-перехода с триггерного на изомерный уровень, которая составила $\Gamma \sim 4 \cdot 10^{-24}$ эВ.

Однако величина $P_{\text{ОВЭК}}$ все же значительно больше аналогичной расчетной вероятности для девозбуждения в плазме изомера ^{186m}Re , в котором, если ориентироваться на известную схему уровней ядра ^{186}Re , для триггерного перехода $\Delta E \sim 3$ кэВ ширина составит величину $\Gamma \sim 10^{-28}$ эВ еще меньше, что определяется периодом полураспада ($2 \cdot 10^5$ лет) изомера рения. В то же время в эксперименте [38] для разрядки изомера ^{186m}Re в плазме установки «ИСКРА-5» была получена на много порядков бóльшая вероятность $\sim 10^{-7}$. Такое несоответствие позволяет предполагать существование более эффективного механизма ОВЭК, чем рассмотренный в работе [38]. В этом случае следует подумать над усовершенствованием схемы проведения эксперимента на изомере серебра, например, получить мишени с существенно более высокой концентрацией изомера ^{110m}Ag .

В 2021 году была опубликована очередная работа Кольцова [40], в которой обобщается предшествующий опыт в теоретическом и экспериментальном исследовании явления СДЯИ. Анализируя ситуацию вокруг поиска новых изомерных состояний в ядре ^{186}Re , автор замечает, что заселение неизвестного ранее изомерного уровня, возникающего в процессе СДЯИ в плазме на рениевом образце, условно обозначенного как $^{186m_2}\text{Re}$, возможно. Но последний не может быть **триггерным** уровнем, до которого известный изомер $^{186m_1}\text{Re}$ ($2 \cdot 10^5$ лет) возбуждается в плазме, из-за найденного большого периода полураспада гипотетического $^{186m_2}\text{Re}$ [38] порядка 10 суток.

Для объяснения сложившейся ситуации вокруг изомера $^{186m_1}\text{Re}$ необходимо предположить существование еще одного неизвестного в настоящее время уровня в ядре ^{186}Re , который мог бы выполнять роль триггерного уровня. Таким образом, схема уровней ядра ^{186}Re , участвующих в стимулированном девозбуждении изомера $^{186m_1}\text{Re}$, в настоящее время далеко не ясна.

Автор подчеркивает то важное обстоятельство, что **в экспериментах без образования плазмы** стимулированное девозбуждение ^{186m}Re не наблюдалось, что указывает на то, что процесс на $^{186m_1}\text{Re}$ в плазме с помощью лазерных импульсов происходит за счет ОВЭК, а не, например, неупругого рассеяния электронов на изомерных ядрах. Одновременно делается вывод о том, для значительного повышения эффективности СДЯИ необходимы некоторые инновационные методы.

Несмотря на то, что вероятность девозбуждения изомера ^{186m}Re очень мала в случае одиночного электрического разряда, процесс стимуляции разрядки изомера можно сделать многократным, если использовать импульсный электрический разряд в газовой атмосфере гексафторида рения. В качестве альтернативы лазерной плазме представляет

также интерес рассмотреть процесс СДЯИ в плазме **сильноточного электрического разряда (далее СЭР)**.

Проведенный автором анализ показал, что для усиления СДЯИ можно использовать вместо лазерной плазмы плазму СЭР с температурой $\theta_e \sim 1$ кэВ, сравнимой по значению с энергией самого КИП. При этом время жизни электрических разрядов в такой субстанции может быть на два порядка больше, чем у лазерной плазмы.

Для возможности выбора наиболее эффективного режима стимуляции разрядки ядерных изомеров была получена простая формула, связывающая расчетную вероятность СДЯИ с параметрами СЭР. Для усиления СДЯИ также предлагается дополнительно облучать плазму фотонами, частота которых находится в резонансе с триггерным переходом. Предложен также режим многократно повторяющихся сильноточных электрических разрядов в плазме, содержащей изомерные ядра.

Отмечается, что имеющиеся научно-поисковые результаты позволяют уже сейчас приступить к разработке **источника питания на основе изомера ^{186m}Re** . Таким образом, перспективы дальнейших теоретических и экспериментальных исследований в этом направлении с точки зрения автора работы [40] очевидны.

Цитируемая литература

1. Hahn H.-P., Born H.J., Kim J.I. – *Radiochimica Acta*, 1976, v.23, pp.23-37.
2. Emery G.T. – *Annual Review of Nuclear Science*, 1972, v.22, pp.165-202.
3. Dostal K.-P., Nagel M., Pabst D. – *Zeitschrift für Naturforschung*, 1977, B32A, S.345-361.
4. Bainbridge K.T., Goldhaber M., Wilson E. – *Physical Review*, 1951, v.84, Second Series, pp.1260-1261.
5. Макарюнас К.В. – Литовский физический сборник, 1978, т.18, с. 781-800.
6. Hofmann-Reinecke H., Zahn U., Daniel H. – *Physics Letters*, 1973, v.47B, n.6, pp.494-496.
7. Kündig W., Müller P.E. – *Helvetica Physica Acta*, 1979, v.52, pp. 555-567.
8. Gagneux St., Huber P., Leuenberger H. – *Helvetica Physica Acta*, 1970, v.43, f.1, pp.39-58.
9. Nyikos P., Gagneux St., Kobel H.R., - *Helvetica Physica Acta*, 1970, v.43, f.5, p.412.
10. Макарюнас К.В., Макарюнене Э.К., Драгунас А.К. – Литовский физический сборник, 1978, т.18, с.45-55.
11. Методика исследований радиоактивных превращений в химических соединениях. Под ред. Макарюнаса К.В., Вильнюс, 1979, с.7-107.
12. Банд И.М., Слив Л.А., Тржасковская М.Б. – *Письма в ЖЭТФ*, 1970, т.11, вып.6, с.306-308.
13. Vand I.M., Sliv L.A., Trzhaskovskaya M.B. – *Nuclear Physics*, 1970, v.A156, n.1, pp.170-182.
14. Андерсон Э.М., Листенгартен М.А., Ханонкинд М.А. – *Известия АН СССР*, 1970, т.34, №4, с.850-855.

15. Band I.M., Fomichev V.I. – Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1979, v.23, n.4, pp.295-314.
16. Raff U., Alder K., Baur G. – Helvetica Physica Acta, 1972, v.45, p.427.
17. Rügsegger R., Kündig W. – Physics Letters, 1972, v.39B, n.5, pp.620-622.
18. Rügsegger R., Kündig W. – Helvetica Physica Acta, 1973, v.46, f.2, pp.165-179.
19. Roggwiler P., Kündig W. – Physical Review B, 1975, v.11, n.11, pp.4179-4183.
20. Alder K., Raff U., Baur G. – Helvetica Physica Acta, 1972, v.45, f.5, p.771-777.
21. Neve de Mevergnies M., Del Marmol P. – Physics Letters, 1974, v.49B, n.5, pp.428-430.
22. Robinson W., Perlman M.L. – Physics Letters, 1972, v. 40B, n.3, pp.352-354.
23. Alder K., Baur G., Raff U. – Helvetica Physica Acta, 1971, v.44, f.4, pp.514-518.
24. Dostal K.-P., Pabst E.D. – Nuclear Instruments and Methods, 1976, v.135, pp.99-102.
25. Meykens A., Coussement R., Ladriere J., et al. – Physical Review B, 1980, v.21, n.9, pp.3816-3825.
26. Ladriere J., Meykens A., Coussement R., et al. – Journal de Physique, 1979, t.40, c.2, pp.20-22.
27. Ladriere J., Cogneau M., Meykens A. - Journal de Physique, 1980, t.41, c.1, pp.131-132.
28. Leuenberger H., Gagneux St., Huber P., et al. – Helvetica Physica Acta, 1970, v.43, f.5, p.411.
29. Cooper J.A., Hollander J.M., Rasmussen J.O. – Phys. Rev. Letters, 1965, v.15, pp.680-683.
30. Smend F., Borchert I., Langhoff H. – Zeitschrift für Physik, 1971, B248, s.326-332.
31. Olin A. - Physical Review C, 1970, v.21, v.1, pp.1114-1117.
32. Драгунас А., Макарюнас К. – Известия Академии наук, серия физическая, 1996, т.60, №5, с.106-108.
33. T. Ohtsuki, H. Yuki, M. Muto, J. Kasagi, and K. Ohno. – Phys. Rev. Lett. v.93, 112501 (2004).
34. Бондаревский С.И., Еремин В.В., Скоробогатов Г.А. – Радиохимия, 2002, т.44, №7, с.49-56.
35. Скоробогатов Г.А., Еремин В.В., Дзевецкий Б.Э. – Известия РАН, серия физическая, 2004, т.68, №9, с.1296-1300.
36. Кольцов В.В., Маширов Л.Г., Суглобов Д.Н. – Известия Академии наук, серия физическая, 1998, т.62, №5, с.975-980.
37. Кольцов В.В., Римский-Корсаков А.А., Карасев В.В. – Известия РАН, серия физическая, 2016, т.80, №8, с.971-974.
38. Ватулин В.В., Жидков Н.В., Римский-Корсаков А.А., Карасев В.В., Кольцов В.В., et.al. – Известия РАН, серия физическая, 2017, т.81, №10, с.1296-1300.
39. Кольцов В.В. – Известия РАН, серия физическая, 2018, т.82, №10, с.1450-1454.
40. Koltsov, V. V. – Physics of Atomic Nuclei, 2021, v.84, n.10, pp. 1691-1696.



**О сколько нам открытий чудных
Готовят просвещенья дух
И Опыт, [сын] ошибок трудных,
И Гений, [парадоксов] друг,
[И Случай, бог изобретатель]**

(октябрь – ноябрь 1829)