

Лазерно-индуцированный распад цезия-137

Е.В.Бармина, А.В.Симакин, Г.А.Шафеев

Представлены результаты экспериментов по лазерно-индуцированному β -распаду радионуклида цезия-137. Показано, что воздействие излучения лазера на парах меди (длины волн 510.6 и 578.2 нм, длительность импульса 15 нс) в течение 2 ч на мишень из золота в водном растворе соли цезия-137 приводит к снижению его активности, измеряемой по γ -излучению дочернего ядра ^{137m}Ba , на 70%. Обсуждаются возможности потенциального применения лазерно-индуцированного распада радионуклида цезия-137 как способа утилизации радиоактивных отходов.

Ключевые слова: лазер на парах меди, наночастицы золота, лазерная абляция, β -распад, радионуклиды.

Недавно было показано, что лазерное облучение наночастиц металлов в водных растворах солей урана приводит к существенному отклонению активности радионуклидов этого семейства от равновесных значений [1, 2]. Изменение активности радионуклидов происходит в процессе лазерного облучения металлических мишеней в водных растворах солей урана. При этом наблюдается ускорение спонтанных α - и β -распадов нуклидов, входящих в семейство урана-238. Этот эффект был исследован в широком диапазоне длин волн лазерного излучения и длительностей импульсов [3, 4]. Лазерная абляция мишеней в водных растворах солей нуклидов сопровождается образованием в растворе наночастиц материала мишени и, по-видимому, является необходимым условием изменения активности нуклидов. Этот вывод можно сделать из наблюдения роста активности ряда нуклидов (тория-234) в течение длительного времени после лазерного облучения – до 100 дней [5].

Механизм лазерно-индуцированного ускорения спонтанных распадов по-прежнему остается невыясненным. Новые экспериментальные результаты по лазерно-индуцированным распадам других нуклидов представляют несомненный интерес, поскольку расширяют представления о закономерностях протекания подобных процессов. В настоящей работе приводятся экспериментальные результаты по лазерно-индуцированному ускоренному распаду цезия-137. В отличие от нуклидов семейства урана-238, у него существует единственный канал распада – β -распад в барий-137m с периодом полураспада 30 лет. В свою очередь барий-137m через 2.5 мин распадается в барий-137 с испусканием γ -кванта. Поэтому интенсивность потока γ -квантов образца позволяет количественно определять содержание цезия-137 в нем и судить о скорости лазерно-индуцированного распада. Об ускоренном рас-

паде цезия-137 уже сообщалось в предыдущих работах, но там он присутствовал в виде примеси к соли тория-232 [6]. Поэтому представляется целесообразным исследовать влияние лазерного облучения на раствор, содержащий только цезий-137.

В работе использовался лазер на парах меди с длительностью импульсов 15 нс, генерирующий на длинах волн 510.6 и 578.2 нм с частотой следования 15 кГц. При средней мощности излучения 4.6 Вт оцененная пиковая плотность мощности на мишени составляла 10^9 Вт/см². Мишенью служила золотая (99.9%) пластинка. Водный раствор объемом 2 мл, содержащий соль цезия-137, помещался в охлаждаемую проточной водой кювету. В раствор на специальном держателе погружалась мишень, на которую лазерное излучение фокусировалось снизу сквозь прозрачное для него окно. Типичное время облучения составляло ~1 ч, после чего раствор с образовавшимися наночастицами отбирался из кюветы и отправлялся на анализ γ -активности, которая до и после лазерного облучения измерялась полупроводниковым гамма-спектрометром Ortec-65195-P с погрешностью $\pm 5\%$. Активность радионуклидов определялась как площадь под пиками γ -спектров нуклидов. Активность исходного образца соответствовала содержанию цезия-137 в пробе около 20 пг.

Лазерное облучение мишени в растворе сопровождается образованием наночастиц. Золотые частицы имеют удлиненную форму со средним поперечным размером около 30 нм. Как и в случае лазерного облучения золотой мишени в растворе с β -активным тритием [7], золотые наночастицы в растворе цезия-137 начинают объединяться в наноцепочки, что сопровождается изменением спектра поглощения коллоидного раствора. Плазмонный резонанс наночастиц золота смещается из зеленой (520–530 нм) в красную (600–650 нм) область спектра, и укрупненные наночастицы быстро оседают на дно кюветы. Смещение плазмонного резонанса золотых наночастиц в красную сторону обусловлено появлением продольного плазмонного резонанса, типичного для удлиненных наночастиц [8]. Раствор при этом приобретает синий цвет. Вид образовавшихся удлиненных наночастиц золота приведен на рис.1. Наблюдается множество частиц с большим отношением длины к диаметру.

Е.В.Бармина, А.В.Симакин, Г.А.Шафеев. Научный центр волновых исследований Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: barminaev@gmail.com, wrс@kapella.gpi.ru, shafееv@kapella.gpi.ru

Поступила в редакцию 26 июня 2014 г.

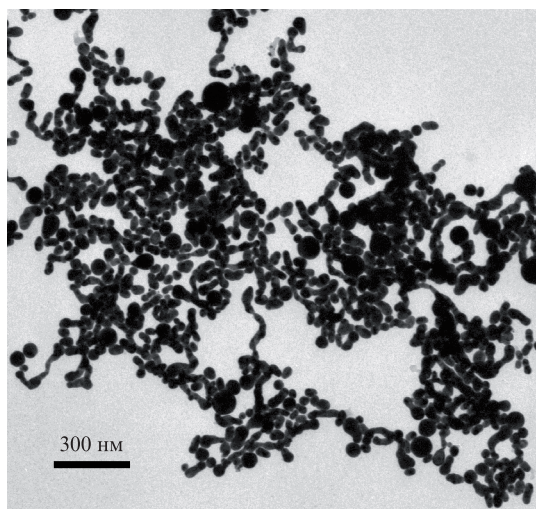


Рис.1. Вид наночастиц золота, полученных абляцией золотой мишени в водном растворе соли цезия-137 и зарегистрированных с помощью просвечивающего электронного микроскопа.

Представляет интерес выяснить, когда происходит изменение активности проб – непосредственно во время лазерного облучения или спустя некоторое время после него, как в случае солей урана [5]. Для ответа на этот вопрос первое измерение активности было проведено через 1.5 ч после лазерного облучения. Результаты измерений приведены на рис.2. Видно, что активность цезия-137 падает сразу после облучения почти в четыре раза и остается на том же уровне в течение 100 ч. Это означает, что количество цезия-137 в пробе во столько же раз уменьшилось вследствие лазерного облучения. Повторные измерения на разных сериях образцов, сделанные через 10–20 дней после облучения, показывают, что активность проб больше не изменяется.

Образование удлинённых наночастиц золота в присутствии β -активного цезия-137 обусловлено, по-видимому, дополнительным зарядом наночастиц электронами,

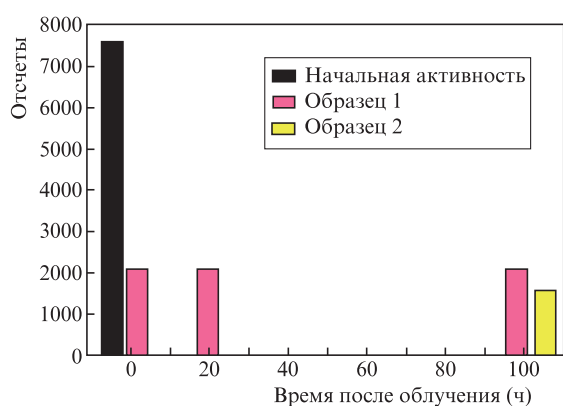


Рис.2. Начальная активность образцов на линии 661 кэВ и ее изменение после лазерного облучения (отсчеты в течение 30 мин). Образцы облучались в одинаковых условиях и имели одну и ту же начальную активность. Время лазерного облучения обоих образцов составляло 1.7 ч.

испускаемыми этим нуклидом. При случайном слипании двух сферических наночастиц этот заряд перераспределяется вдоль линии слипания, и следующий лазерный импульс сплавляет их. Дальнейшее увеличение длины цепочки происходит вследствие взаимодействия такого заряженного диполя с одиночными сферическими наночастицами. В некотором смысле такой процесс является обратным процессу лазерной фрагментации наночастиц золота под действием излучения лазера на парах меди [9].

Влияние электронной оболочки атома на вероятность β -распада его ядра хорошо известно. Так, например, ядра ^{163}Dy , ^{193}Ir , ^{205}Tl , абсолютно стабильные в нейтральном атоме, становятся β -активными при полной ионизации атома [10], а полная ионизация ^{187}Re увеличивает вероятность β -распада в 10^9 раз [11]. В рассматриваемом случае изменение электронной оболочки цезия может происходить вследствие его сплавления с материалом наночастиц золота, образующихся при лазерной абляции мишени или при адсорбции ионов цезия на поверхности наночастиц. В обоих случаях возмущение электронной оболочки цезия может происходить за счет плазмонных колебаний электронов в наночастицах.

Таким образом, впервые экспериментально продемонстрирована возможность ускорения распада радиоактивного цезия-137 при облучении золотых мишеней в водном растворе его соли лазером на парах меди. Уменьшение содержания цезия-137 в облученных пробах происходит сразу после лазерного облучения либо во время него. Полученные результаты расширяют список радионуклидов (^{232}Th , ^{238}U , ^3H), ускоренный распад которых можно инициировать с помощью лазерного излучения. Новые данные представляют практический интерес, т.к. цезий-137 является одним из наиболее опасных радионуклидов вследствие его быстрого распространения в воде и почве. Возможность его дезактивации при относительно низкой интенсивности лазерного излучения представляет собой новое решение проблемы утилизации радиоактивных отходов.

Работа частично поддержана Научной школой академика Ф.В.Бункина (грант № НШ 4484.2014.2).

1. Simakin A.V., Shafeev G.A. *Appl. Phys. A*, **101** (1), 199 (2010).
2. Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **41** (7), 614 (2011).
3. Бармина Е.В., Сухов И.А., Лепехин Н.М., Присеко Ю.С., Филиппов В.Г., Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **43** (6), 591 (2013).
4. Shafeev G.A., in: *Uranium: Characteristics, Occurrence and Human Exposure*. Ed. by A.Ya. Vasiliev, M.Sidorov (New York: Novapubl. Inc., 2012, pp 117–153).
5. Kirichenko N.A., Simakin A.V., Shafeev G.A. *Phys. Wave Phenomena*, **22** (2), 81 (2014).
6. Simakin A.V., Shafeev G.A. *Phys. Wave Phenomena*, **16** (4), 268 (2008).
7. Barmina E.V., Kuzmin P.G., Timashev S.F., Shafeev G.A. <http://arxiv.org/abs/1306.0830>.
8. Kazakevich P.V., Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeev G.A. *Appl. Surf. Sci.*, **252**, 4373 (2006).
9. Кириченко Н.А., Сухов И.А., Шафеев Г.А., Щербина М.Е. *Квантовая электроника*, **42** (2), 175 (2012).
10. Jung M., Bosch F., Beckert K., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2164 (1992).
11. Bosch F., Faestermann T., Friese J., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 5190 (1996).