

## ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО

## Влияние лазерного излучения на водные растворы бета-активных радионуклидов

Е.В.Бармина, А.В.Симакин, В.И.Стегайлов, С.И.Тютюнников, Г.А.Шафеев, И.А.Щербаков

Приводятся экспериментальные результаты по влиянию импульсного лазерного облучения водных растворов трех бета-активных нуклидов –  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Th}$  и  $^{137}\text{Cs}$  на их концентрацию в водных растворах. Необходимым элементом используемой методики является присутствие в растворе наночастиц, образующихся при взаимодействии лазерного излучения с мишенью, помещенной в кювету. Концентрация радиоактивного вещества измерялась до, во время и после лазерного облучения по величине площади под спектральной линией гамма-излучения, соответствующей спонтанному гамма-распаду. В случае  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Th}$  и  $^{137}\text{Cs}$  энергии гамма-квантов составляют 92, 186 и 661 кэВ соответственно. Обнаружено, что при лазерном воздействии содержание всех исследованных бета-активных нуклидов уменьшается без избыточного гамма-излучения в диапазоне энергий, в котором происходит их спонтанный распад. Это возможно в случае протекания распада по другому каналу, активированному взаимодействием лазерного излучения с водным раствором нуклидов в присутствии наночастиц.

**Ключевые слова:** лазерное излучение, бета-активные радионуклиды, гамма-излучение, наночастицы.

Влияние лазерного излучения относительно малой интенсивности ( $10^{10}$ – $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>) на концентрацию ряда нуклидов рассматривалось в последние несколько лет в ряде экспериментальных работ. При такой интенсивности собственные электрические и магнитные поля лазерного излучения на несколько порядков меньше внутриатомных. Последние становятся сравнимыми с лазерными полями при интенсивностях порядка  $10^{18}$ – $10^{20}$  Вт/см<sup>2</sup>. При таких интенсивностях возможно приобретение электронами лазерно-индуцированной плазмы энергии вплоть до 1 ГэВ вследствие кильватерного ускорения [1–3]. Энергии  $\sim 1$  ГэВ сопоставимы уже с уровнями энергии ядра и фактически приводят к трансмутации ядер в экспериментах, выполняемых на ускорителях [4].

В настоящей работе рассматривается влияние лазерного облучения на концентрацию трех нуклидов – цезия-137, тория-234 и тория-231, которые распадаются по  $\beta^-$ -каналу. Период полураспада  $^{137}\text{Cs}$  составляет 30 лет. Он испускает электрон и переходит в  $^{137}\text{Ba}$ . Последний образуется в возбужденном состоянии и испускает гамма-квант с энергией 661 кэВ. Кроме того, существует канал прямого бета-распада  $^{137}\text{Cs}$  в основное состояние  $^{137}\text{Ba}$ , но вклад такого распада составляет лишь несколько процентов [5] (рис.1).

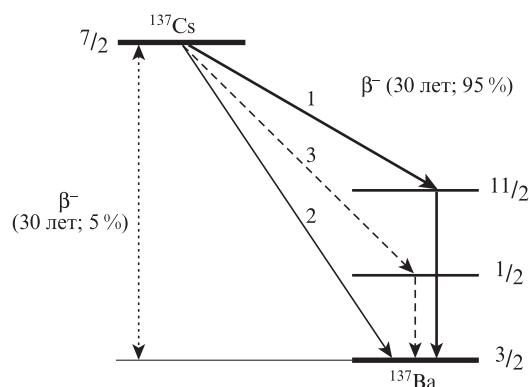


Рис.1. Схема распада цезия-137.

В отличие от предыдущих работ на эту тему [6, 7], кроме расширения числа исследуемых объектов, получены данные об изменении концентрации нуклидов в течение нескольких циклов лазерного облучения растворов.

Водные растворы нуклидов помещались в стеклянную кювету с охлаждающей водяной рубашкой. Лазерное излучение вводилось вертикально снизу вверх сквозь стеклянное окно. В работе с  $^{137}\text{Cs}$  использовался импульсный титан-сапфировый лазер с энергией в импульсе 2.7 мДж, длиной волны излучения 775 нм и частотой следования импульсов 1 кГц. Длительность лазерного импульса составляла 2.5–3 пс. Лазерное излучение фокусировалось с помощью линзы ( $F = 50$  мм) в объем рабочей жидкости (водный раствор хлорида цезия-137 объемом 2 мл). В качестве мишени, при взаимодействии лазерного излучения с которой происходят абляция и генерация наночастиц, использовался сплав NdFeB. В ряде экспериментов рядом с детектором располагался образец, не подвергавшийся лазерному облучению. Это делалось с целью проверки стабильности работы гамма-детектора в течение больших отрезков времени. Концентрация нуклидов опре-

Е.В.Бармина, А.В.Симакин, И.А.Щербаков. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

В.И.Стегайлов, С.И.Тютюнников. Объединенный институт ядерных исследований, Россия, Московская обл., 141980 Дубна, ул. Жолио-Кюри, 6

Г.А.Шафеев. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: shafeev@kapella.gpi.ru

Поступила в редакцию 5 апреля 2017 г.

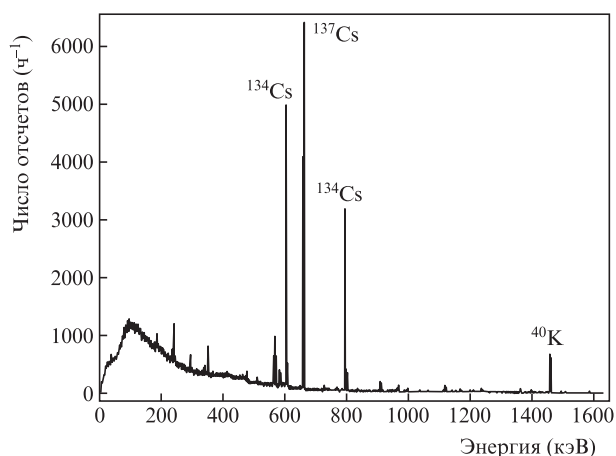


Рис.2. Типичный гамма-спектр смеси двух изотопов цезия.

делялась программным способом как площадь под спектральной линией гамма-спектра. Время накопления отсчетов выбиралось таким, чтобы погрешность определения площади под спектральной линией была не хуже 0.5%.

Типичный гамма-спектр водного раствора соли  $^{137}\text{Cs}$  приведен на рис.2. Этот нуклид имеет одну линию с энергией 661 кэВ. В качестве реперного нуклида, не подвергнувшегося облучению, использовался водный раствор  $^{134}\text{Cs}$ .

Этому нуклиду принадлежат несколько гамма-пиков, один из них приходится на 605 кэВ. Он удален от пика  $^{137}\text{Cs}$  на 661 кэВ и не искажает площадь кривой под этим пиком. На спектре также видна широкая полоса в области малых энергий. Это гамма-излучение фона, в основном космическое излучение. Амплитуда этого фона флуктуирует день ото дня, но он также удален от пика на 661 кэВ и не вносит ошибки в измерения активности  $^{137}\text{Cs}$ . Также различим фоновый пик калия-40.

На рис.3 показана эволюция концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в растворе при его облучении микросекундным излучением титан-сапфирового лазера, измеренная указанным выше способом. Полые кружки соответствуют моментам лазерного воздействия на раствор. В общей сложности измерения активности проводились в течение 14 суток. Можно видеть, что не все циклы облучения сопровож-

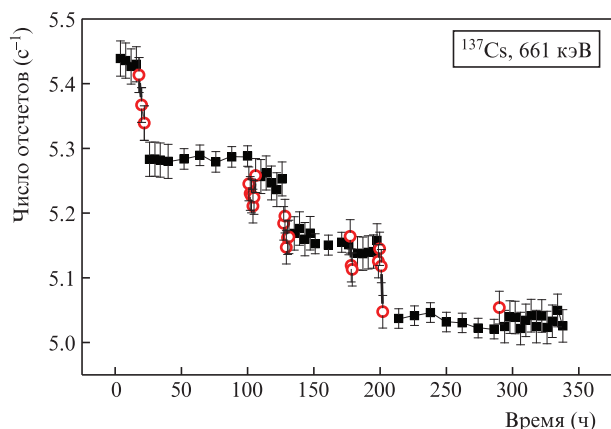


Рис.3. Эволюция активности раствора  $^{137}\text{Cs}$  на линии 661 кэВ при периодически возобновляемом лазерном облучении с длительностью импульсов 3 пс. Сплошные квадраты соответствуют интервалам времени, в течение которых лазерное облучение отсутствует, полые кружки – моментам облучения.

даются одинаковым уменьшением концентрации цезия. Предположительно, это может быть обусловлено необратимыми изменениями коллоидного раствора в результате лазерного воздействия. Действительно, за многочасовое облучение происходит лазерная фрагментация наночастиц [8–10]. Это приводит к уменьшению их размеров и увеличению концентрации. Изменяются также условия распространения лазерного пучка в жидкости и параметры плазмы лазерного пробоя.

Принципиально важным результатом является отсутствие избыточного гамма-излучения с энергией 661 кэВ в процессе лазерного воздействия, сопровождающегося уменьшением концентрации нуклида. Это указывает на то, что ускорение распада происходит за счет другого канала, отличного от обычного канала спонтанного распада  $^{137}\text{Cs}$  с периодом полураспада 30 лет.

Подобные эксперименты проводились и с другим лазерным источником – Nd:YAG-лазером с длительностью импульсов 10 нс по полувысоте и частотой следования импульсов 10 кГц. Энергия в импульсе составляла 2 мДж. Лазерное излучение фокусировалось в кювету с раствором солей нуклидов  $^{234}\text{Th}$  и  $^{231}\text{Th}$  с помощью объектива F-Theta (фокусное расстояние 9 см) и системы гальванометрических зеркал, управляемых компьютером. В результате сфокусированное лазерное излучение образовывало в жидкости замкнутый контур, видимый невооруженным глазом вследствие лазерного пробоя жидкости и образования плазмы пробоя по контуру сканирования. Скорость сканирования составляла обычно 1 м/с, что способствовало перемешиванию раствора. Типичный вид плазменного кольца показан на рис.4.

Кювета располагалась в непосредственной близости от боковой поверхности детектора, но механически не контактировала с ним. Для контроля работы детектора на его торцевую поверхность устанавливался образец другого нуклида, не подвергнувшегося лазерному облучению, линии гамма-излучения которого отстроены по энергии гамма-квантов облучаемого нуклида.

Объектом исследований являлись два бета-активных нуклида –  $^{234}\text{Th}$  и  $^{231}\text{Th}$ . Торий-234 имеет период полураспада 28 дней с испусканием гамма-кванта с энергией 92 кэВ. Он образуется в возбужденном состоянии в результате альфа-распада урана-238. Уран природного изотопного состава содержит небольшое количество урана-235 (0.7%). При альфа-распаде последнего образуется торий-231. Этот нуклид также бета-активен и испускает гамма-квант с энергией 186 кэВ. Период полураспада тория-231 составляет 25.5 ч. Оба изотопа тория находятся в одном и том же водном растворе. Эволюция их концентрации со временем лазерного облучения качественно на-

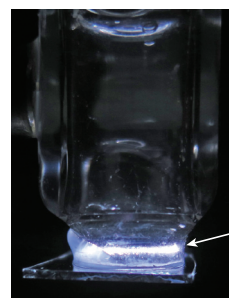


Рис.4. Вид плазменного кольца (указан стрелкой), образованного в результате оптического пробоя водного раствора лазерным пучком, сканирующим по окружности. Диаметр кольца 8 мм.

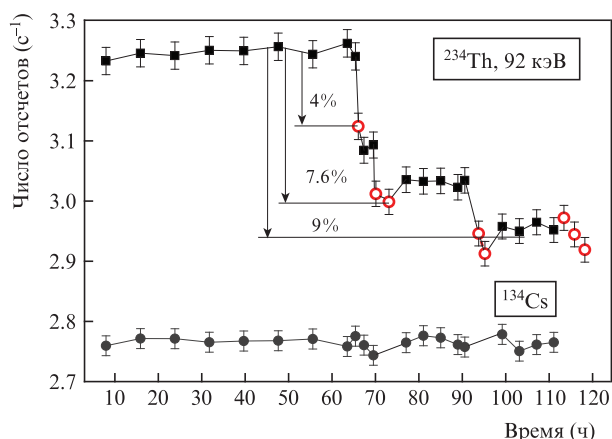


Рис.5. Зависимость активности  $^{234}\text{Th}$  на линии 92 кэВ от времени при повторных облучениях водного раствора уранил-хлорида излучением неодимового лазера. Полые кружки соответствуют моментам облучения, сплошные квадраты – отсутствию облучения. Нижняя зависимость (сплошные кружки) – активность реперного нуклида  $^{134}\text{Cs}$ , не подвергавшегося лазерному облучению.

поминает эволюцию концентрации цезия-137 (рис.5 и 6). В ряде случаев повторные облучения уже не приводят к изменению активности в пределах точности измерений. При этом можно видеть, что число отсчетов от реперного образца цезия-134, не подвергавшегося лазерному облучению, остается практически постоянным в пределах ошибки, что свидетельствует о стабильности работы детектора за все время измерений.

Так же изменяется в процессе последовательных лазерных облучений и активность нуклида  $^{231}\text{Th}$  на линии 186 кэВ. Как уже отмечалось выше, этот пик соответствует излучению дочернего ядра урана-235 – тория-231. Изменения числа отсчетов на линии 186 кэВ показано на рис.6. Как и в случаях лазерного воздействия на другие бета-активные нуклиды, рассмотренные в настоящей работе, последовательные лазерные облучения раствора не приводят к монотонному снижению концентрации  $^{231}\text{Th}$  на спектральной линии 186 кэВ.

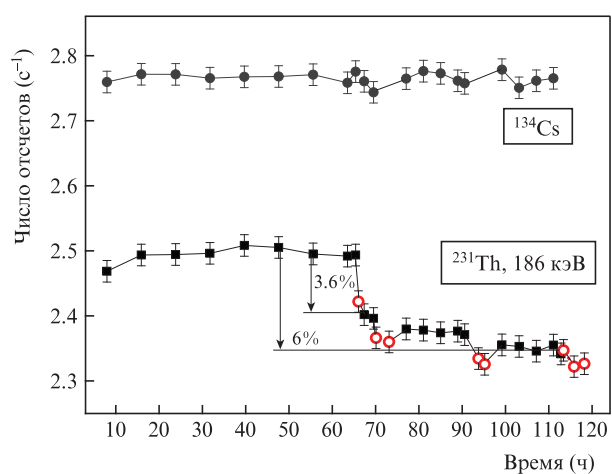


Рис.6. Зависимость активности  $^{231}\text{Th}$  на линии 186 кэВ от времени при повторных облучениях водного раствора уранил-хлорида излучением неодимового лазера. Полые кружки соответствуют моментам облучения, сплошные квадраты – отсутствию облучения. Верхняя зависимость (сплошные кружки) – активность реперного нуклида  $^{134}\text{Cs}$ , не подвергавшегося лазерному облучению.

То обстоятельство, что в работе [7] увеличение скорости распада  $^{231}\text{Th}$  при лазерном воздействии не было обнаружено, обусловлено малым периодом полураспада (25.5 ч), сравнимым с промежутком времени между лазерным воздействием и измерением радиоактивности.

Вероятность бета-распада как в связанном, так и в свободном состоянии электрона сильно зависит от электронной структуры, окружающей распадающееся ядро. Например, в работе [11] экспериментально показано, что полная ионизация ядра  $^{187}\text{Re}$  многократно увеличивает скорость его бета-распада в  $^{187}\text{Os}$ . Условия нашего эксперимента позволяют предположить, что во время лазерного воздействия происходит частичная ионизация гидратированных ионов нуклидов, которая тоже может привести к существенному уменьшению их периода полураспада. Электромагнитное поле лазера локально усиливается вблизи металлических наночастиц и наноструктур в жидкости [12]. Численное моделирование, проведенное в работе [13], показывает, что коэффициент усиления амплитуды электромагнитного поля вблизи металлической наночастицы составляет  $10^2$  и более. Электроны, эмитируемые с поверхности наночастиц, набирают в этом поле энергию, достаточную для ионизации окружающих атомов и последующего плазмообразования. Если концентрация наночастиц в перетяжке лазерного импульса достаточно велика, то отдельные плазменные области могут перекрываться, образуя единый плазменный канал, в котором происходит поглощение до 90% энергии лазерного импульса. Попадая в область перетяжки лазерного импульса, атомы цезия могут быть частично (двух- или трехкратно) ионизованы электронами плазмы. Нельзя исключить также ионизацию средних и нижних электронных оболочек атома цезия электронами, приобретающими необходимую для этого кинетическую энергию в результате совместного действия различных механизмов усиления электромагнитного поля вблизи наночастиц и коллективных эффектов ускорения электронов в плазменном канале.

Таким образом, эволюция активности трех различных бета-активных изотопов –  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{234}\text{Th}$  и  $^{231}\text{Th}$  при последовательных лазерных облучениях водных растворов их солей протекает сходным образом. Снижение их концентрации при лазерном воздействии не сопровождается избыточным гамма-излучением на линиях, характерных для их спонтанного распада, и протекает по другим каналам. Последовательные лазерные экспозиции растворов нуклидов не приводят к монотонному снижению активности нуклидов, что связано с эволюцией функции распределения наночастиц по размерам и изменением оптических свойств среды.

Работа частично поддержана РФФИ (гранты № 15-02-04510\_a, 16-02-01054\_a), программой Президента РФ для государственной поддержки молодых российских ученых (грант № МК-3606.2017.2) и Президиумом РАН (грант № I.25П).

Авторы выражают благодарность П.А.Чижову, В.В.Букину, С.В.Гарнову и А.А.Чернову за помощь в проведении экспериментов.

1. Андреев А.В., Гордиенко В.М., Дыхне А.М., Савельев А.Б., Ткаля Е.В. *Письма ЖЭТФ*, **66** (5), 312 (1997).

2. Андреев А.В., Волков Р.В., Гордиенко В.М., Дыхне А.М., Михеев П.М., Ткаля Е.В., Чутко О.В., Шашков А.А. *Письма ЖЭТФ*, **69** (5), 343 (1999).
3. Schwoerer H., Gibbon P., Dusterer S., Behrens R., Ziener C., Reich C., Sauerbrey R. *Phys. Rev. Lett.*, **86** (11), 2317 (2001).
4. Belyaev V.S., Matafonov A.P., Vinogradov V.I., Krainov V.P., Lisitsa V.S., Rousetski A.S., Ignatyev G.N., Andrianov V.P. *Phys. Rev. E*, **72**, 026406 (2005).
5. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>
6. Бармина Е.В., Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **44** (8), 791 (2014) [*Quantum Electron.*, **44** (8), 791 (2014)].
7. Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **41** (7), 614 (2011) [*Quantum Electron.*, **41** (7), 614 (2011)].
8. Mafune F., Kohno J., Takeda Y., et al. *J. Phys. Chem. B*, **105** (22), 5114 (2001).
9. Prochazka M., Mojzes P., Stepanek J., Vckova V., Turpin P.-Y. *Anal. Chem.*, **69** (24), 5103 (1997).
10. Кириченко Н.А., Сухов И.А., Шафеев Г.А., Щербина М.Е. *Квантовая электроника*, **42** (2), 175 (2012) [*Quantum Electron.*, **42** (2), 175 (2012)].
11. Bosch F., Faestermann T., Friese J., Heine F., Kienle P., Wefers E., Zeitelhack K., Beckert K., Franzke B., Klepper O., Kozhuharov C., Menzel G., Moshhammer R., Nolden F., Reich H., Schlitt B., Steck M., Stöhlker T., Winkler T., Takahashi K. *Phys. Rev. Lett.*, **77** (26), 5190 (1996).
12. Бармина Е.В., Лау Труонг С., Бозон-Вердураз Ф., Леви Дж., Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **40**, 346 (2010) [*Quantum Electron.*, **40**, 346 (2010)].
13. Hao E., Schatz G.C. *J. Chem. Phys.*, **120** (1), 357 (2004).