

**ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО****Влияние лазерного излучения на гамма-активность водных растворов соли  $^{152}\text{Eu}$** **Е.В.Бармина, А.В.Симакин, В.И.Стегайлов, С.И.Тютюнников,  
Г.А.Шафеев, И.А.Щербаков**

*Экспериментально исследовано влияние лазерного облучения водных растворов соли изотопа  $^{152}\text{Eu}$  в присутствии наночастиц никеля на гамма-активность изотопа. Наночастицы никеля генерировались с помощью лазерной абляции мишени в воде и добавлялись в раствор радионуклида перед облучением. Для облучения растворов использовались два типа Nd:YAG-лазеров с длительностью импульсов излучения 10 нс и различной частотой их следования. Обнаружено, что активность  $^{152}\text{Eu}$  в результате повторных облучений растворов сериями импульсов уменьшается при каждом цикле облучения. Проведено сравнение полученных результатов с данными о влиянии излучения лазера с длиной волны 8 мкм на активность того же изотопа. Обсуждаются возможные механизмы влияния электромагнитного излучения на гамма-активность  $^{152}\text{Eu}$ .*

**Ключевые слова:** гамма-активность изотопов, лазерное излучение, растворы наночастиц.

**1. Введение**

В целом ряде работ сообщалось о наблюдении воздействий относительно малых лазерных интенсивностей ( $10^{10} - 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>) на концентрацию радионуклидов, определяемую по числу отсчетов гамма-квантов, сопровождающих бета-распад [1–9]. В этих работах активность нуклидов определялась до и после лазерного облучения растворов, что не исключало возможности методических ошибок, связанных с геометрией измерений и потерями раствора на стенках кюветы. Эти недостатки были впоследствии устранены с помощью регистрации гамма-активности растворов нуклидов до, во время и после лазерного облучения при неизменной геометрии. Изменения активности наблюдались в присутствии в жидкости наночастиц, либо образующихся в ходе лазерной абляции металлической мишени в растворе, либо добавленных в раствор.

При наличии в жидкости наночастиц активно протекает процесс диссоциации молекул воды под действием лазерного пробоя в коллоидных растворах наночастиц и при лазерной абляции мишеней в воде [10]. В результате диссоциации образуются стабильные продукты: молекулярные водород и кислород, а также пероксид водорода. Было установлено, что выход продуктов зависит от концентрации и типа материала наночастиц. Так, макси-

мальная скорость образования пероксида водорода наблюдается при использовании наночастиц ферромагнитных материалов (никель, кобальт и др.) [11–13]. Поскольку при взаимодействии лазерного излучения с растворами радионуклидов, как и при диссоциации жидкости, возникает плазма пробоя, можно предположить, что и свойства плазмы, например число пробоев за лазерный импульс, будут подобными. В обоих случаях именно лазерный пробой раствора определяет изменение активности радионуклидов и выход продуктов разложения жидкости. Ранее влияние электромагнитного излучения на изотоп  $^{152}\text{Eu}$  уже исследовалось при воздействии на его соль микроволновым излучением с длиной волны 8 мкм, при этом в образец нуклида подмешивались металлические опилки [14]. В настоящей работе исследован эффект лазерного облучения водных растворов соли  $^{152}\text{Eu}$  с добавлением наночастиц никеля с оптимальной с точки зрения влияния на его активность концентрацией. Выявление сходства или различия микроволнового и лазерного воздействий на радиоактивность  $^{152}\text{Eu}$  может позволить сделать некоторые выводы о механизме этого необычного явления – влияния электромагнитного излучения на концентрацию радионуклидов.

**2. Экспериментальная техника**

Наночастицы никеля приготавливались с использованием техники лазерной абляции в жидкости [15]. Источником излучения служил волоконный иттербиевый лазер с частотой следования импульсов 200 кГц и длительностью импульсов 100 нс. Лазерный пучок сканировался по поверхности никелевой мишени, погруженной в воду чистоты Milli-Q. Коллоидный раствор, оставшийся в кювете после окончания абляции, анализировался с помощью дисковой измерительной центрифуги и просвечивающего электронного микроскопа. Большая часть частиц имеет размеры порядка 10 нм (рис.1). На фотографии видно, что кроме наночастиц имеется также диффузное гало, окружающее их. Предположительно, оно состоит из гид-

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

**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

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

Поступила в редакцию 27 февраля 2019 г., после доработки – 10 мая 2019 г.

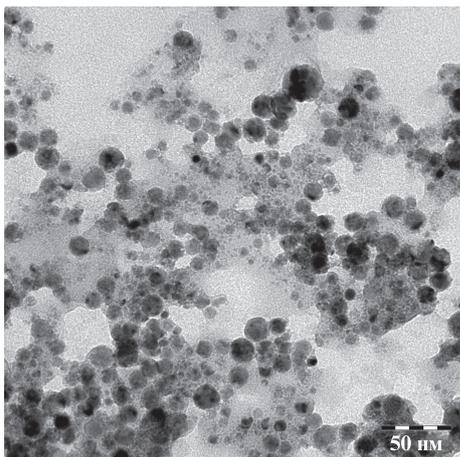


Рис.1. Фотография наночастиц никеля, образованных при лазерной абляции никелевой мишени в воде, полученная в просвечивающем электронном микроскопе.

роксида никеля, образовавшегося в результате химической реакции никеля с водой при повышенной температуре в процессе лазерной абляции мишени. Данные, полученные центрифугированием, позволяют также найти массу наночастиц в объеме исследуемой пробы. Коллоидный раствор наночастиц никеля за несколько минут до добавления в водный раствор  $^{152}\text{EuCl}_3$  помещался в ультразвуковую ванну для разрушения агрегатов наночастиц. Такие агрегаты легко образуются, поскольку наночастицы никеля являются магнитными.

Для облучения растворов соли европия с добавлением наночастиц никеля использовались два типа лазеров:

1. Nd:YAG-лазер с длиной волны излучения 1064 нм, длительностью импульса 10 нс, частотой следования импульсов 10 кГц и энергией импульса 1.6 мДж.

2. Nd:YAG-лазер с длиной волны излучения 1064 нм, длительностью импульса 10 нс, частотой следования импульсов 10 Гц и энергией импульса 700 мДж.

При воздействии на растворы хлорида  $^{152}\text{Eu}$  в присутствии наночастиц лазерный пучок с частотой следования импульсов 10 кГц двигался по круговой траектории со скоростью 1300 мм/с с помощью системы подвижных зеркал с электроприводом. Перетяжка лазерного пучка находилась внутри кюветы с раствором на расстоянии 2–3 мм от поверхности входного окна (над ней) и при движении по кругу образовывала плазменное кольцо, видимое невооруженным глазом. Лазерное излучение фокусировалось снизу вверх линзами или объективом с фокусным расстоянием 20–95 мм в зависимости от типа используемого лазера. В случае лазера с частотой следования импульсов 10 Гц сканирование пучка не осуществлялось.

Кювета охлаждалась проточной водой, поэтому нагрев всего объема раствора во время лазерной экспозиции не превышал нескольких градусов. Кювета фиксировалась на расстоянии нескольких миллиметров от чувствительной части детектора гамма-излучения, но без механического контакта с ней. Детектор на основе сверхчистого германия (Canberra) с охлаждением жидким азотом имел относительную эффективность регистрации 30%. Геометрия измерений активности оставалась постоянной до, во время и после лазерного воздействия. Числа отсчетов сохранялись в памяти компьютера один раз в секунду, время накопления сигнала выбиралось таким, чтобы ошибка измерений не превышала 0.5%.

### 3. Результаты и их обсуждение

Микрофотографии плазменного кольца, возникающего при сканировании лазерного пучка по раствору, показывают, что плазменные треки, оставляемые отдельными лазерными импульсами, не являются непрерывными (рис.2). Наночастицы, добавляемые в раствор, являются центрами лазерного пробоя и плазмообразования. Число пробоев в каждом треке флуктуирует, что можно объяснить пробоем жидкости на агрегатах наночастиц. Каждое плазменное образование является тем микрореактором, в котором происходит диссоциация воды и ее разложение на  $\text{H}_2$ ,  $\text{O}_2$  и  $\text{H}_2\text{O}_2$  под действием электронов плазмы пробоя. Такая же дискретная структура плазмы пробоя наблюдается и при облучении другим лазерным источником с энергией импульса 700 мДж.

Если внутри области плазмообразования оказались аква-ионы  $^{152}\text{Eu}$ , то лазерное излучение воздействует и на них, изменяя активность образца. Ниже приводятся результаты такого воздействия.

Период полураспада  $^{152}\text{Eu}$  составляет 13.537 лет. Из этого состояния изотоп европия с  $\sim 70\%$ -ной вероятностью в результате  $\beta^-$ -распада превращается в долгоживущий изотоп  $^{152}\text{Gd}$  (344 кэВ,  $\alpha$ -активный) и с  $\sim 30\%$ -ной вероятностью в результате  $\beta^+$ -распада – в долгоживущий изотоп  $^{152}\text{Sm}$  (121 кэВ,  $\alpha$ -активный). Необходимо отметить, что оба канала распада имеют общий уровень энергии ядра  $^{152}\text{Eu}$ . Активность образца измерялась на линии с энергией 121 кэВ при распаде  $^{152}\text{Eu}$  в  $^{152}\text{Sm}$  и на линии с энергией 344 кэВ при распаде  $^{152}\text{Eu}$  в  $^{152}\text{Gd}$ .

На рис.3 показана эволюция гамма-активности  $^{152}\text{Eu}$  в растворе с добавлением наночастиц никеля при его облучении наносекундным лазерным излучением. Общее время лазерного облучения составило 40 ч. Это соответствует  $1.44 \times 10^6$  лазерных импульсов при частоте их следования 10 Гц. Видно, что во время воздействия лазерного излучения на раствор происходит снижение скорости отсчетов гамма-квантов из облучаемого образца. До облучения эта величина равна  $A_0 = 11.6 \text{ с}^{-1}$ , после облучения –  $A_f = 10.3 \text{ с}^{-1}$  для линий с энергией 121 кэВ. Следует отметить, что после окончания всех циклов лазерного облучения раствора активность  $A_f$  остается постоянной и не возвращается к значениям, наблюдавшимся до лазерного



Рис.2. Негативная микрофотография лазерно-индуцируемой плазмы, полученная при облучении раствора  $^{152}\text{Eu}$  с наночастицами никеля дугом лазерных импульсов. Вертикальные стрелки указывают на плазменные треки, созданные отдельными лазерными импульсами в перетяжке лазерного пучка. Использовался Nd:YAG-лазер с длительностью импульсов 10 нс, частотой их следования 10 кГц и энергией импульса 1.6 мДж. Скорость сканирования лазерного пучка 1.25 м/с.

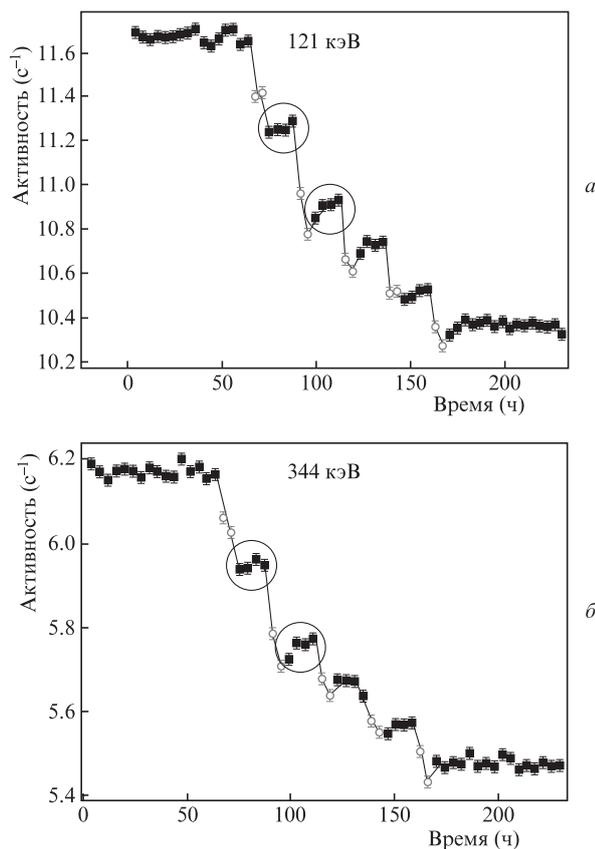


Рис.3. Эволюция гамма-активности раствора  $^{152}\text{Eu}$  на линиях с энергиями 121 (а) и 344 кэВ (б) при периодически возобновляемом лазерном облучении с длительностью импульсов 10 нс. Черные квадраты соответствуют моментам времени, когда лазерное облучение отсутствует, а светлые кружки – моментам облучения. Использовался Nd:YAG-лазер с энергией импульса 700 мДж и частотой следования импульсов 10 Гц. Концентрация наночастиц никеля 10 мкг/мл. Окружностями выделены интервалы времени частичного восстановления активности образцов в отсутствие лазерного излучения.

воздействия. Относительное изменение активности  $(A_0 - A_f)/A_0$  на линии с энергией 121 кэВ составляет  $11.2\% \pm 0.2\%$ , а на линии с энергией 344 кэВ –  $11.3\% \pm 0.2\%$ , т.е. практически одинаково для обеих линий.

Аналогичная динамика снижения активности  $^{152}\text{Eu}$  наблюдается и при воздействии импульсов наносекундного диапазона на раствор при частоте следования импульсов 10 кГц и энергии импульса 1.6 мДж (рис.4). Общее время лазерного облучения составило 57 ч. Это соответствует  $2.05 \times 10^9$  лазерных импульсов при частоте их следования 10 кГц. Относительное изменение активности  $(A_0 - A_f)/A_0$  за все время облучения было равно  $10.1\% \pm 0.2\%$  на линии с энергией 121 кэВ и  $8.9\% \pm 0.2\%$  на линии с энергией 344 кэВ.

Из рис.3 и 4 видно, что лазерное облучение водного раствора  $^{152}\text{Eu}$  при добавлении наночастиц никеля приводит к изменению его активности. Хорошо просматривается существенное различие скоростей изменения активности – при лазерном облучении она значительно больше, чем без него. Конечно, это не означает изменения периода полураспада изотопа, поскольку избыточное гамма-излучение на линиях с энергиями 121 и 344 кэВ отсутствует, а означает лишь уменьшение содержания (концентрации) изотопа под действием лазерного облучения. Характерное

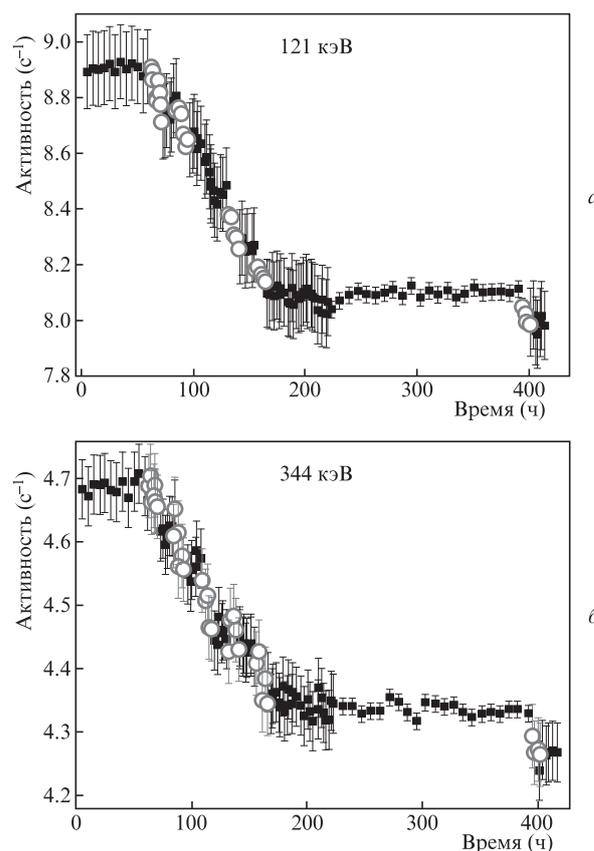


Рис.4. То же, что и на рис.3, но при использовании Nd:YAG-лазера с энергией импульса 1.6 мДж и частотой следования импульсов 10 кГц.

время уменьшения содержания в два раза, оцененное из угла наклона кривой активности, составляет 30 дней.

Интересно отметить, что изменение активности  $^{152}\text{Eu}$  наблюдалось также при воздействии сфокусированного микроволнового излучения на его образец в виде сухого порошка, хотя имеется ряд качественных отличий. Сразу после микроволнового воздействия активность образца уменьшалась, а затем возвращалась к исходной и какое-то время (несколько суток) была больше нее [14]. Возврат активности к исходному значению происходил еще через несколько суток. При лазерном воздействии на раствор этого нуклида активность возрастает после окончания лазерного облучения до исходного значения не полностью, а частично. Снижение активности  $(A_0 - A_f)/A_0$  после лазерного воздействия на порядок больше, чем при микроволновом воздействии, и уже не изменяется после окончания лазерного облучения в течение последующих наблюдений [15].

Дочерние продукты распада  $^{152}\text{Eu}$ , изотопы  $^{152}\text{Gd}$  и  $^{152}\text{Sm}$ , также представляют собой редкоземельные элементы, спектры поглощения ионов которых в воде хорошо известны. Соотношение интенсивностей пиков этих ионов (пики поглощения на длинах волн 273 и 401 нм соответственно) до и после лазерного облучения могло бы позволить сделать вывод о равновесии двух каналов распада  $^{152}\text{Eu}$ . Подтвердить появление дочерних продуктов по спектрам их поглощения пока не удалось из-за их малой ожидаемой концентрации (порядка единиц пикограммов на миллилитр раствора). С приемлемым отношением сигнал/шум регистрировалось лишь поглощение самого иона Eu на длине волны 395 нм.

С другой стороны, сопоставление относительных изменений активностей  $(A_0 - A_f)/A_0$  для двух линий показывает, что облучение растворов  $^{152}\text{Eu}$  лазерным излучением с большей энергией импульса (700 мДж) приводит к почти одинаковому изменению относительных активностей для обеих линий гамма-спектра, ассоциируемых с  $^{152}\text{Gd}$  и  $^{152}\text{Sm}$ . При облучении излучением с энергией импульсов 1.6 мДж, напротив, относительное изменение активности больше для линии с энергией 121 кэВ (распад в  $^{152}\text{Sm}$ ), чем для линии с энергией 344 кэВ (распад в  $^{152}\text{Gd}$ ). Тем самым можно сделать вывод, что при таком лазерном воздействии происходит смещение равновесия каналов распада  $^{152}\text{Eu}$  в сторону позитронного  $\beta^+$ -распада.

Представляется весьма вероятным, что наблюдаемые изменения активности  $^{152}\text{Eu}$  как при лазерном, так и при микроволновом воздействии можно отнести к накопленному изомерным состояниям ядер  $^{152}\text{Eu}$  при электромагнитном воздействии [14, 16]. Предположительно, причиной возмущений ядра является мощное электрическое поле лазерного (микроволнового) пучка, усиленное за счет плазмонного резонанса на агрегатах наночастиц. Действительно, усиление электрического поля на агрегатах металлических наночастиц значительно превышает усиление на единичных наночастицах, и при этом поле может увеличиться в  $10^3 - 10^4$  раз [17, 18]. Под агрегатами наночастиц понимаются частицы, находящиеся друг от друга на расстоянии, много меньшем их радиуса. Наибольшая величина электрического поля достигается в зазоре между частицами. В условиях настоящей работы такие агрегаты могут возникать случайным образом вследствие флуктуации плотности наночастиц. Тогда при интенсивности лазерного излучения  $\sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> вблизи агрегатов эффективная интенсивность может составлять уже  $10^{18}$  Вт/см<sup>2</sup>. Электрическое поле при такой интенсивности сопоставимо с внутриатомными полями и может оказывать заметное воздействие на электронную оболочку вокруг ядер. В свою очередь, перестройка электронной оболочки может влиять на ядро и изменять его состояние. При указанной интенсивности возможно ускорение электронов и ионов в лазерной плазме до высоких энергий, превышающих пороги ряда ядерных реакций [19].

Другим возможным механизмом наблюдаемого процесса может являться переход ядра  $^{152}\text{Eu}$  на изомерный уровень, который отстоит от известного уровня энергии на несколько килоэлектронвольт. Такого рода расщепление наблюдается у тяжелых ядер, и переход между близкими по энергии уровнями может происходить под действием лазерной плазмы. Это было продемонстрировано на примере метастабильного ядра  $^{186\text{m}}\text{Re}$  при воздействии лазерного излучения установки «Искра-5» [20]. Наличие тонкого расщепления уровней энергии ядра трудно установить в пучковых экспериментах, и многие изомерные уровни тяжелых ядер, к которым относится и  $^{152}\text{Eu}$ , остаются неизвестными.

#### 4. Заключение

Экспериментально показано, что процессы изменения ионного состава растворов радионуклидов и уменьшение их радиоактивности при лазерном воздействии идут параллельно, сопровождая друг друга. Результаты работы позволяют сравнить эффективности различных лазерных источников при изменении концентрации радионуклидов. При использовании рассмотренных лазерных источни-

ков было получено сопоставимое изменение активности образцов  $^{152}\text{Eu}$  – примерно на 10%. При энергии импульса 1.6 мДж для этого потребовалось большее (на три порядка) число лазерных импульсов, чем при энергии 700 мДж при той же длительности лазерных импульсов ( $\sim 10$  нс). С другой стороны, концентрация  $^{152}\text{Eu}$  мала, поэтому мала и вероятность попадания его ионов в изолированные плазменные сгустки, возникающие случайным образом. Следовательно, для увеличения эффективности снижения активности нуклидов при лазерном воздействии необходимо использовать лазеры с большой энергией импульса и высокой частотой следования импульсов.

Авторы выражают благодарность В.Б.Лощенкову за помощь в проведении оптических измерений и О.В.Уварову за электронную микроскопию наночастиц.

Работа выполнена в рамках госзадания по теме АААА-А18-118021390190-1 и в рамках Программы повышения конкурентоспособности НИЯУ МИФИ (контракт №02.а03.21.005 от 27.08.2013), частично поддержана грантом РФФИ № 18-52-70012\_е\_Азия\_а, а также поддержана Программой Президиума РАН №5 «Фотонные технологии в зондировании неоднородных сред и биообъектов».

1. Simakin A.V., Shafeev G.A. *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, **12** (3), 432 (2010).
2. Simakin A.V., Shafeev G.A. *Appl. Phys. A*, **101**, 199 (2010).
3. Simakin A.V., Shafeev G.A. *Phys. Wave Phenom.*, **19** (1), 30 (2011).
4. Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **41** (7), 614 (2011) [*Quantum Electron.*, **41** (7), 614 (2011)].
5. Simakin A.V., Shafeev G.A. *Phys. Wave Phenom.*, **21** (1), 31 (2013).
6. Shafeev G.A., in *Uranium: Characteristics, Occurrence and Human Exposure* (New York: Novapublishers Inc., 2012, pp 117–153).
7. Бармина Е.В., Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **44** (8), 791 (2014) [*Quantum Electron.*, **44** (8), 791 (2014)].
8. Бармина Е.В., Симакин А.В., Стегайлов В.И., Тютюнников С.И., Шафеев Г.А., Щербаков И.А. *Квантовая электроника*, **47** (7), 627 (2017) [*Quantum Electron.*, **47** (7), 627 (2017)].
9. Andreev S.N., Barmina E.V., Kalinnikov V.G., Simakin A.V., Smirnov A.A., Stegailov V.I., Tyutyunnikov S.I., Shafeev G.A., Scherbakov I.A. *Phys. Part. Nucl. Lett.*, **14** (6), 894 (2017).
10. Kalus M.R., Bärsch N., Streubel R., Gökcce E., Barcikowski S., Gökcce B. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19** (10), 7112 (2017).
11. Barmina E.V., Simakin A.V., Shafeev G.A. *Chem. Phys. Lett.*, **678**, 192 (2017).
12. Сухов И.А., Шафеев Г.А., Бармина Е.В., Симакин А.В., Воронов В.В., Уваров О.В. *Квантовая электроника*, **47** (6), 533 (2017) [*Quantum Electron.*, **47** (6), 533 (2017)].
13. Barmina E.V., Gudkov S.V., Simakin A.V., Shafeev G.A. *J. Laser Micro/Nanoeng.*, **12** (3), 254 (2017).
14. Gonz Z., Kalinnikov V.G., Kaminsky A.K., Sedykh S.N., Smirnov A.A., Stegailov V.I., Sushkov A.V., Tyutyunnikov S.I. *Proc. of the 9th Int. Workshop «Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications»* (N.Novgorod, 2014, pp 84, 85).
15. Kazakevich P.V., Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeev G.A. *Appl. Surf. Sci.*, **252**, 4373 (2006).
16. Andreev S.N., Barmina E.V., Kaminsky A.K., Sedykh S.N., Shafeev G.A., Shcherbakov I.A., Simakin A.V., Stegailov V.I., Tyutyunnikov S.I. *Proc. of the 10th Int. Workshop «Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications»* (N.Novgorod–Moscow, 2017, pp 88, 89).
17. Hao E., Schatz G.C. *J. Chem. Phys.*, **120** (1), 357 (2004).
18. Blanco L.A., García de Abajo F.J. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **89**, 37 (2004).
19. Крайнов В.П. *Ядерная физика*, **74** (10), 1438 (2011).
20. Есьман А.А., Кулаков М.А., Ларин Д.Е., Ткачев Г.В. *Вопросы атомной науки и техники. Сер. Теоретическая и прикладная физика*, вып. 4, 43 (2017).