

## Наблюдение стимулированного гамма-излучения в MgO : $^{123m}\text{Te}$

© В.Ф. Мастеров, С.И. Бондаревский, В.В. Еремин, Ф.С. Насрединов, П.П. Серегин

Санкт-Петербургский государственный технический университет,  
195251 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 6 марта 1998 г.)

Наблюдалось возрастание скорости радиоактивного распада примесных атомов  $^{123m}\text{Te}$  в MgO при понижении температуры от 295 до 80 К. Предполагается, что этот эффект связан с процессами стимулированного гамма-излучения (СГИ) долгоживущего изомера  $^{123m}\text{Te}$ , вероятность которых должна возрастать с понижением температуры за счет возрастания фактора Мессбауэра для гамма-квантов с энергией 88 keV. Предлагается феноменологическое описание влияния СГИ на скорость радиоактивного распада и вводится параметр, характеризующий интенсивность СГИ: при приближении этого параметра к единице должен возникнуть режим выстрела однопроходного лазера. Показано, что этот критический режим для MgO :  $^{123m}\text{Te}$  в использованной геометрии эксперимента может быть реализован при увеличении удельной активности на два порядка.

Исследование стимулированного гамма-излучения (СГИ) ядер атомов является одной из перспективных проблем физики твердого тела, поскольку на этом явлении возможно создание гамма-лазера на долгоживущих изомерах ядер. Несмотря на теоретические оценки, ставящие под сомнение реализацию такого лазера [1], не прекращаются попытки наблюдения СГИ (см., например, обзор таких работ [2]). Однако существующие результаты ядерных экспериментов трудно воспроизводимы и потому подвергаются сомнению.

Одним из наиболее очевидных результатов СГИ должно быть увеличение скорости распада изомера. Традиционный метод измерения скорости распада заключается в изучении зависимости нормированного отношения  $R$  скоростей счета двух источников одинакового радиоизотопного состава от времени. Эта зависимость имеет вид

$$R(t) = R/R_0 = \exp(\Delta\lambda t), \quad (1)$$

где  $R = C_1/C_2$ ,  $C_1(t) = k\lambda_1 N_{01} \exp(-\lambda_1 t)$  и  $C_2(t) = k\lambda_2 N_{02} \exp(-\lambda_2 t)$  — скорости счета источников 1 и 2,  $k$  — эффективность регистрации излучения детектором,  $N_{01}$  и  $N_{02}$  — число радиоактивных ядер в источниках 1 и 2 в начальный момент времени,  $R_0$  — отношение скоростей счета в начальный момент времени,  $\Delta\lambda = \lambda_2 - \lambda_1$ ,  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  — постоянные распада ядра в источниках 1 и 2,  $\lambda = \ln 2/T_{1/2} = 1/\tau_0$ ,  $T_{1/2}$  — период полураспада,  $\tau_0$  — время жизни ядра.

В настоящей работе этот метод использовался для обнаружения СГИ долгоживущего изомера  $^{123m}\text{Te}$  ( $T_{1/2} = 119.7$  дней,  $\tau_0 = 1.47 \cdot 10^7$  с,  $\lambda = 6.81 \cdot 10^{-8}$  с $^{-1}$ ). Схема распада  $^{123m}\text{Te}$  показана на рис. 1. Скорость распада  $^{123m}\text{Te}$  определяется интенсивностью изомерного перехода с энергией 88 keV, в котором наряду со спонтанной компонентой должна существовать и стимулированная. Если последняя имеет измеримую величину, то скорость распада должна зависеть от температуры из-за температурной зависимости фактора Мессбауэра, входящего в сечение стимулированного излучения.

Радиоактивный изотоп  $^{123m}\text{Te}$  получался на циклотроне по реакции  $^{123m}\text{Sb}(p, n)^{123m}\text{Te}$ . Источники

MgO :  $^{123m}\text{Te}$  готовились путем спекания безносительно-го препарата  $^{123m}\text{Te}$  с MgO при 900°C в течение 2h на воздухе. Выбор матрицы MgO был обусловлен тем, что, согласно данным мессбауэровской спектроскопии на  $^{125}\text{Te}$  [3], источники Mg :  $^{123m}\text{Te}$  имеют нерасщепленную линию излучения и высокое значение фактора Мессбауэра. Были приготовлены два источника MgO :  $^{123m}\text{Te}$ , один из них в дальнейшем хранился при комнатной температуре, а второй — в жидком азоте и извлекался из него только на время измерений. Измерения скорости счета проводились с периодичностью 20–30 дней в течение 7 месяцев. Источник излучения был запрессован в узкую ампулу из кварцевого стекла. Активность радионуклида в нем составляла 6 MBk, размеры активной части: длина 8 mm, диаметр 0.6 mm. Регистрировались гамма-кванты, падающие с торца источника нормально к окну детектора.

Измерение скоростей счета радиоактивных источников проводилось при комнатной температуре по гамма-излучению 159 keV, следующему в каскаде после перехода 88 keV в изомере  $^{123m}\text{Te}$ . Для регистрации гамма-квантов использовался полупроводниковый детектор типа ДГР. В амплитудном спектре вырезался

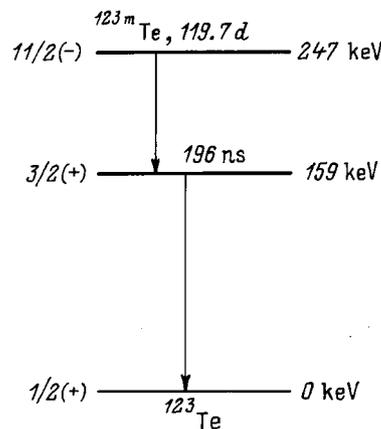


Рис. 1. Схема распада изотопа  $^{123m}\text{Te}$ .

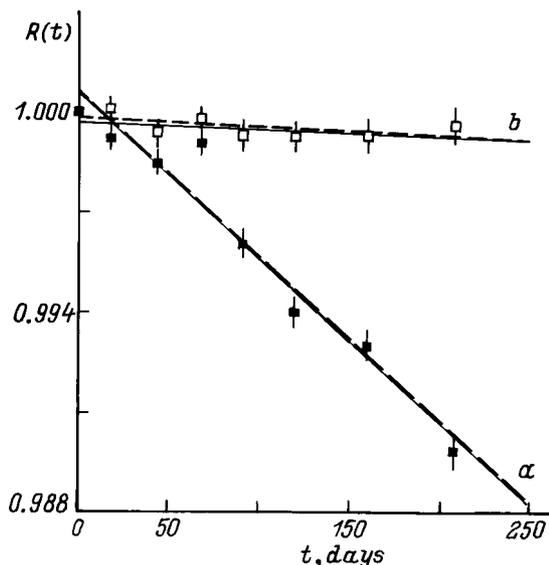


Рис. 2. Зависимости  $R(t)$  для источников  $\text{MgO} : ^{123m}\text{Te}$  (80 К)– $\text{MgO} : ^{123m}\text{Te}$  (295 К) (а),  $\text{H}_2^{123m}\text{TeO}_4$ – $\text{H}_2^{123m}\text{TeO}_3$  (б).

фотопик 159 keV, причем уровни дискриминации выбирались такими, чтобы влияние дрейфа аппаратуры на скорость счета было минимальным. Для контроля за стабильностью установки измерение скорости счета от двух образцов проводилось попеременно через 3000 с.

На рис. 2, а приведена зависимость  $R(t)$  для пары источников  $\text{MgO} : ^{123m}\text{Te}$ . Экспериментальные точки ложатся на прямую, которая представляет собой начальный участок экспоненты (1). Наклон прямой дает значение  $\Delta\lambda/\lambda = 8.6(2) \cdot 10^{-3}$ , а его знак указывает на увеличение скорости распада  $^{123m}\text{Te}$  в источнике, хранившемся в жидком азоте, по сравнению с источником, хранившимся при комнатной температуре.

Интересно было сравнить обнаруженную нами температурную зависимость  $\lambda$   $^{123m}\text{Te}$  в  $\text{MgO}$  с ее зависимостью от валентного состояния атомов теллура. Распад  $^{123m}\text{Te}$  осуществляется путем конвертированного изомерного перехода, и интенсивность конверсионного канала, т. е. такого способа распада, при котором энергия изомерного перехода передается одному из электронов атома, зависит от электронной плотности на распадающемся ядре  $|\Psi(0)|^2$ . По этой причине вариации постоянной распада, как правило, связывают с вариациями электронной плотности, приближенно считая  $\Delta\lambda/\lambda = \Delta|\Psi(0)|^2/|\Psi(0)|^2$  [4]. Наиболее заметные изменения  $|\Psi(0)|^2$  наблюдаются при изменениях валентного состояния материнского атома, а самые сильные — при изменении числа  $s$ -электронов.

На рис. 2, б приведена зависимость  $R(t)$  для пары источников  $^{123m}\text{Te}$  в  $\text{H}_2\text{TeO}_4$  и  $\text{H}_2\text{TeO}_3$ . В этом эксперименте в отличие от описанных выше источники имели разный химический состав, но хранились между измерениями вместе при комнатной температуре. Представленные данные показывают, что переход от  $\text{H}_2\text{TeO}_4$  к

$\text{H}_2\text{TeO}_3$  сопровождается возрастанием скорости распада  $^{123m}\text{Te}$ , а  $\Delta\lambda/\lambda = 3.5(5) \cdot 10^{-4}$ . Этот факт согласуется с изменением валентного состояния теллура с  $\text{Te}^{6+}$  (электронная конфигурация  $4d^{10}$ ) до  $\text{Te}^{4+}$  ( $4d^{10}5s^2$ ). При этом увеличивается  $|\Psi(0)|^2$  и как результат возрастает скорость распада  $^{123m}\text{Te}$ .

Существенно, что значение  $\Delta\lambda/\lambda$ , полученное при изменении температуры источника  $\text{MgO} : ^{123m}\text{Te}$ , в 25 раз превышает  $\Delta\lambda/\lambda$ , обусловленное двумя  $5s$ -электронами теллура. По этой причине мы интерпретировали температурную зависимость  $\lambda$  в  $\text{MgO} : ^{123m}\text{Te}$  как результат температурной зависимости СГИ, которая в свою очередь связана с температурной зависимостью фактора Мессбауэра для перехода 88 keV.

В пользу такой интерпретации свидетельствует и тот факт, что измерения зависимости  $R(t)$  для пары источников  $^{123m}\text{Te}$  в форме элементарного теллура (один из источников хранился при комнатной температуре, а второй — в жидком азоте) дали значения  $|\Delta\lambda/\lambda| < 5 \cdot 10^{-5}$ . Согласно данным мессбауэровской спектроскопии  $^{125}\text{Te}$ , источник в форме элементарного теллура имеет малое значение фактора Мессбауэра как при 295, так и при 80 К [3], и поэтому для этого источника не должна наблюдаться температурная зависимость  $\lambda$ .

Обычно обсуждение возможности СГИ основывается на оценках эффективного сечения элементарного акта этого процесса. Однако в настоящее время по этому вопросу не существует общей точки зрения [1,2]. Поэтому мы попытаемся дать феноменологическое описание влияния СГИ на скорость распада долгоживущего изомера и связать полученные соотношения с результатами наших экспериментов.

Скорость убывания концентрации  $N$  радиоактивных ядер в источнике приближенно можно описать дифференциальным уравнением

$$dN/dt = -\lambda N + bN dN/dt, \quad (2)$$

где  $b$  — коэффициент пропорциональности, зависящий от свойств ядра, энергии гамма-кванта, размеров и формы источника, свойств вещества матрицы и т. д. Первый член в правой части соответствует спонтанному распаду, а второй — опустошению долгоживущего изомерного состояния под действием СГИ. Скорость второго процесса пропорциональна концентрации радиоактивных ядер  $N$  и потоку гамма-квантов, стимулирующих переход, а этот поток в свою очередь пропорционален скорости убывания концентрации  $dN/dt$ . Простые преобразования дают соотношение

$$dN/dt = -\lambda N(1 - bN). \quad (3)$$

Решение этого уравнения имеет вид

$$N \exp(-bN) = N_0 \exp(-bN_0) \exp(-\lambda t), \quad (4)$$

где  $N_0$  — начальная концентрация радиоактивных ядер.

При малых значениях параметра  $bN$  зависимость концентрации от времени мало отличается от ее зависимости в случае спонтанного распада  $N = N_0 \exp(-\lambda t)$ , и решение можно искать в виде  $N = N_0 \exp[-(\lambda + \Delta\lambda)t]$ . В этом случае для  $\Delta\lambda/\lambda$  получается соотношение

$$\Delta\lambda/\lambda = bN_0. \quad (5)$$

Таким образом, данные по температурной зависимости скорости распада источника  $\text{MgO}:^{123\text{m}}\text{Te}$  позволяют определить параметр  $bN_0$ , характеризующий интенсивность СГИ перехода 88 keV. Этот параметр имеет непосредственное отношение к эмпирической оценке возможностей получения лазерного излучения. Согласно (3), скорость распада стремится к бесконечности при приближении параметра  $bN$  к единице. Этот критический режим соответствует режиму выстрела однопроходного лазера.

Полученное нами значение  $\Delta\lambda/\lambda = bN_0 = 8.6 \cdot 10^{-3}$  указывает на то, что критический режим может быть получен для  $\text{MgO}:^{123\text{m}}\text{Te}$  путем увеличения удельной активности на два порядка при сохранении геометрии источника. Такое увеличение удельной активности представляется технически возможным, хотя и очень дорогостоящим. Другим путем приближения к критическому режиму является повышение параметра  $b$ . Его точное определение требует отдельного рассмотрения, однако ясно, что этот параметр, имеющий размерность объема, является произведением некоего эффективного сечения, характеризующего свойства ядра, на характерную длину, равную меньшей из двух величин — размеру образца или длине пробега гамма-кванта в веществе источника. В нашем случае они составляли примерно 1 и 3 см, так что увеличение размеров источника не может обеспечить получения критического режима.

Наконец, следует отметить, что полученные здесь оценки носят сугубо качественный характер, так как опираются на приближенное уравнение (2). Можно указать по крайней мере на два явления, не учтенные в этом уравнении: во-первых, неоднородность поля гамма-излучения в источнике, т.е. зависимость параметра  $b$  от координат; во-вторых, нелинейные явления при приближении к критическому режиму.

Тем не менее интерпретация наших экспериментальных данных как результата СГИ в режимах, далеких от критического, представляется вполне обоснованной. Принятые в настоящее время теоретические оценки малости сечения СГИ [1] основаны на представлении о гигантском неоднородном уширении линии излучения. Те же оценки запрещали наблюдение эффекта Мессбауэра на долгоживущем уровне в  $^{109}\text{Ag}$ . Недавнее наблюдение этого явления двумя группами [5,6] ставит под сомнение универсальный характер этих оценок.

## Список литературы

- [1] В.И. Гольдманский, Р.Н. Кузьмин, В.А. Намиот. В кн.: Мессбауэровская спектроскопия. Мир, М. (1983). С. 65.
- [2] A.A. Zadernovsky. *Laser Phys.* **5**, 362 (1995).
- [3] W. Bresser, M. Zhang, L. Koudelka, J. Wells, P. Boolchand, G.J. Ehrhart, P. Miller. *Phys. Rev.* **B47**, 11 663 (1993).
- [4] A.G. Maddock. *Radiochim. Acta* **70–71**, 323 (1995).
- [5] S. Rezaie-Serej, G.R. Hoy, R.D. Taylor. *Laser Phys.* **5**, 240 (1995).
- [6] В.Г. Алпатов, А.В. Давыдов, Г.Р. Карташев, М.М. Коротков, В.Е. Радько, А.А. Садовский, В.М. Самойлов. *Измер. техника.* **38**, 52 (1995).