

## ВЛИЯНИЕ ХИМИЧЕСКОГО СОСТОЯНИЯ НА ВРЕМЯ ЖИЗНИ РАДИОАКТИВНОГО АТОМА

Попытки повлиять на время жизни радиоактивных веществ предпринимались в течение более 30 лет после открытия радиоактивности. Исследовалось влияние температуры, давления, концентрации, возраста, внешних полей, химического состояния и внешней среды на скорость распада. Однако ни в одном из этих случаев не удалось достоверно констатировать изменение периода полураспада.

Несколько лет назад<sup>1,2</sup> было указано, что изменение химического состояния атома может привести к заметному изменению вероятности ядерного перехода в том случае, когда необходимым условием такого перехода служит наличие атомных электронов. К таким ядерным переходам относятся захват орбитального электрона и ядерный изомерный переход, сопровождаемый испусканием электрона внутренней конверсии.

Рассмотрим сначала случай захвата электрона. Постоянная распада  $\lambda$  в этом случае пропорциональна, как известно из теории  $\beta$ -распада, плотности электронного облака в месте, занимаемом ядром, т. е.  $|\psi(0)|^2$ . Таким образом, изменение состояния атомных электронов должно привести в принципе к изменению постоянной распада. Если бы, например, удалось полностью лишить атом всех его электронов, то такой атом, очевидно, не смог бы распадаться путём захвата орбитального электрона. Практически осуществить такой случай невозможно. Однако в лёгких атомах, у которых внешние, валентные электроны имеют заметную плотность  $|\psi(0)|^2$  в ядре, изменение химического состояния может привести к заметному изменению  $|\psi(0)|^2$ , и следовательно, к изменению постоянной распада.

Для проверки этой возможности использовался лёгкий изотоп  $\text{Be}^7$ , период полураспада которого равен 52,9 дня. Каждый случай захвата электрона сопровождается испусканием  $\gamma$ -кванта с энергией 455 кэв.

Теоретический расчёт показывает<sup>3</sup>, что постоянная распада нейтрального атома  $\text{Be}^7$  должна на 2,6% превышать постоянную распада дважды ионизованного атома. Экспериментировать с Be в ионизованном состоянии в течение сколько-нибудь продолжительного времени практически очень трудно и поэтому на опыте исследовалось изменение  $\lambda$ , возникающее при изменении химического состояния  $\text{Be}^7$ .

Во всех описываемых ниже опытах использовался дифференциальный метод измерения разности периодов распада. Сравнимые два образца помещались в двух одинаковых ионизационных камерах, включённых друг другу навстречу. По изменению разностного тока во времени определяется относительное изменение постоянной распада  $\Delta\lambda/\lambda$ . Для подобных измерений особое значение имеет полное отсутствие других радиоактивных изотопов в образцах, так как малейшие примеси таковых легко могут исказить результаты измерения.

В одном из первых опытов<sup>4</sup> сравнивались постоянные распада металлического Be и BeO. Приведённые измерения дали результат  $\lambda(\text{Be}) - \lambda(\text{BeO}) = (1,5 \pm 0,9) \cdot 10^{-4} \lambda(\text{Be})$ , т. е. очень небольшой эффект, который к тому же превышает стандартную ошибку всего в 1,7 раза. Поэтому теми же авторами были проведены новые измерения<sup>5</sup> с другой парой соединений, а именно, с BeO и BeF<sub>2</sub>. В этом случае был получен чёткий результат:  $\lambda(\text{BeO}) - \lambda(\text{BeF}_2) = (0,687 \pm 0,026) \cdot 10^{-3} \lambda(\text{BeO})$ . Комбинируя результаты обоих опытов, получаем  $\lambda(\text{Be}) - \lambda(\text{BeF}_2) = (0,837 \pm 0,09) \cdot 10^{-3} \lambda(\text{Be})$ , т. е. эффект

$\Delta\lambda/\lambda$  порядка 0,1%. Непосредственное измерение  $\frac{\lambda(\text{Be}) - \lambda(\text{BeF}_2)}{\lambda(\text{Be})}$  дало значительно больший эффект<sup>6</sup>, а именно,  $\Delta\lambda/\lambda = 1\%$ .

Вэйнбридж и др.<sup>7</sup> сообщают, что ими повторены измерения с Be и BeF<sub>2</sub>; полученный ими результат (0,07%) согласуется лучше с результатом Сегре и сотр.<sup>4</sup> Возможно, что причина столь больших расхождений (0,07% и 1%) кроется в различии способов приготовления образцов и, в частности, образцов металлического бериллия (см. ниже).

Недавно также были получены положительные результаты при проверке возможности влияния химического состояния на период полураспада ядерного изомера, испытывающего внутреннюю конверсию<sup>7</sup>. Если изомерный переход осуществляется в результате внутренней конверсии и испускания  $\gamma$ -лучей, то согласно теории полная постоянная распада, соответствующая данному переходу, равна  $\lambda = \lambda_\gamma + \lambda_e = \lambda_\gamma (1 + \alpha)$ , где  $\lambda_\gamma$  характеризует процесс испускания  $\gamma$ -лучей, т. е. вероятность радиационного перехода, а  $\alpha$  — коэффициент внутренней конверсии (отношение числа конверсионных электронов к числу  $\gamma$ -квантов). Аддитивность постоянных распада означает, что внутренняя конверсия есть некоторый дополнительный, конкурирующий с радиационным переходом путь разрядки ядра<sup>8</sup>. Следует также напомнить, что наличие электронной оболочки очень мало влияет на число излучаемых  $\gamma$ -квантов. Таким образом, электронная оболочка увеличивает полную вероятность перехода возбуждённого ядра, т. е.  $\lambda$ , и, следовательно, изменение конфигурации атомных электронов путём изменения химического состояния атома может привести к изменению значения  $\lambda$ . Поскольку химическое состояние влияет прежде всего на электроны внешних оболочек, то следует ожидать наибольший эффект в том случае, когда именно эти электроны испускаются при внутренней конверсии, т. е. когда энергия изомерного перехода невелика.

Опыты проводились с изомером Tc<sup>99m</sup>, энергия перехода которого равна всего 2 кэв, что достаточно только для испускания M- или N-электронов. Период полураспада, определяемый этим переходом, равен приблизительно 6 часам. Вслед за электроном внутренней конверсии испускается  $\gamma$ -квант с энергией 140 кэв (общая энергия возбуждения ядра 142 кэв). Продукт распада Tc<sup>99</sup> является  $\beta$ -излучателем и имеет период полураспада  $9,4 \cdot 10^5$  лет.

Измерялось различие постоянных распада металлического технеция Tc<sup>99m</sup>, Tc<sub>2</sub>S<sub>7</sub> и KTCO<sub>4</sub>. Для последних двух соединений был получен весьма чёткий результат:

$$\lambda(\text{KTCO}_4) - \lambda(\text{Tc}_2\text{S}_7) = (27 \pm 1) \cdot 10^{-4} \cdot \lambda(\text{Tc}_2\text{S}_7).$$

Сравнение постоянной распада металлического Тс и любого из двух указанных соединений оказалось более трудной задачей, так как результаты существенно зависят от метода приготовления образца чистого металла. Авторы объясняют эти различия взаимной диффузии Тс и металла подложки (Ni или Pt), применяемой при восстановлении технеция; пови-дному, постоянная распада Тс в его собственной кристаллической решётке отличается от постоянной для атомов, находящихся в окружении отлич-ных от него атомов. Спеты показывают, что диффузия снижает  $\lambda$ .

Возможно, что при дальнейшем увеличении точности метода, измере-ние разности постоянных распада изомеров, находящихся в различных химических соединениях, может оказаться полезным средством для иссле-дования электронной структуры этих соединений.

Л. Б.

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. R. Bouchez, P. Daudel, R. Daudel, R. Muxart, J. phys. et rad. 8, 336 (1947).
2. E. Segre, Phys. Rev. 71, 274 (1947).
3. P. Benoist, Comp. Rend. 228, 309 (1949).
4. E. Segre, C. Wiegand, Phys. Rev. 75, 39 (1949); 81, 284 (1951).
5. R. Leininger, E. Segre, C. Wiegand, Phys. Rev. 76, 897 (1949); 81, 280 (1951).
6. R. Bouchez, P. Daudel, R. Muxart, A. Rogozinski, J. phys. et rad. 10, 201 (1949).
7. K. T. Bainbridge, M. Goldhaber, E. Wilson, Phys. Rev, 90, 4, 430 (1953).
8. И. С. Шапиро, УФН, 40, 189 (1950).