

Ядерные изомеры как инструмент для исследования влияния нулевых колебаний электромагнитного (ЭМ) поля на вероятность спонтанных ЭМ переходов

Владимир Кольцов

Семинар Петербургского института ядерной физики им. Б. П. Константинова, 31.01.2023.

Радиевый институт им. В.Г. Хлопина, Санкт-Петербург

E-mail: vladimir-koltsov@yandex.ru

- Представление о стимуляции спонтанного излучения фотонов нулевыми колебаниями ЭМ поля (НКП), резонансными излучательному переходу.
- Подавление излучения фотонов ядрами в резонаторе (в полости с стенками, отражающими ЭМ волны) за счет подавления резонансных НКП.
- Теория подавления конверсионных переходов ядер в резонаторе.
- Подавление низкочастотных НКП в металлах.
- Эксперименты по подавлению ЭМ переходов малой энергии для ядер в металлах (конверсионные переходы в изомерных ядрах ^{99m}Tc, ^{154m}Eu, ^{235m}U).

Стимуляция спонтанного излучения фотонов нулевыми колебаниями ЭМ поля (НКП)

В теории возмущений гамильтониан *H* системы частиц и ЭМ поля входят:

- гамильтониан $H_{0, \text{част}}$ не взаимодействующих с ЭМ полем частиц и $H_{0, \text{поле}}$ свободного ЭМ поля;
- энергия *V*(*t*) взаимодействия между частицами и свободным ЭМ полем.

Свободное ЭМ поле состоит из фотонов и НКП.

Тогда спонтанное взаимодействие частиц стимулируется НКП (Weisskopf, Wigner 1930).

Волновая функция системы $\Phi(t)$ и уравнение для *S*-матрицы в момент времени *t*

$$H(t) = H_{0, \text{ vacr}} + H_{0, \text{ none}} + \underbrace{V(t)}_{H_{0, \text{ vacr}} \leftrightarrow H_{0, \text{ none}}} \Phi(t) = S(t) \Phi(t_o) \qquad i\hbar \frac{\partial S(t)}{\partial t} = V(t) S(t)$$

Оператор энергии взаимодействия

$$V(t) = -\frac{e}{c} \int J_{\mu}(\vec{r}, t) A_{\mu}(\vec{r}, t) d \vec{r}$$

J, А – операторы тока перехода частиц и потенциала ЭМ поля.

$$A_{\mu}(\vec{r},t) = \frac{c\sqrt{\hbar}}{(2\pi)^{3}} \int d\vec{k} \, \frac{\theta(\omega)}{\sqrt{2\,\omega}} \left[a_{\vec{k},\mu}^{+} e^{-i\,(\vec{k}\,\vec{r}-\omega t)} + a_{\vec{k},\mu} e^{i\,(\vec{k}\,\vec{r}-\omega t)} \right] e_{\mu}$$

 $\omega = c / k / , e_{\mu}$ – вектор поляризации ЭМ поля, $\theta(\omega) = 1$ в свободном пространстве, *a*+ , *a* – операторы рождения и уничтожения фотонов.

Стимуляция излучения фотона нулевыми колебаниями ЭМ поля (НКП)

Плотность энергии НКП

$$dW_{\rm ZPF}(\omega) = \theta^2(\omega) \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} d\omega$$

Энергия кванта НКП ħω/2.



Матричный элемент спонтанного излучения

фотона частоты ω_0 за время $t - t_0$

$$S_{\rm rad}(t) = \int_{0}^{\infty} d\omega J(\omega) \theta(\omega) \int_{t_0}^{t} dt_1 e^{i(\omega_0 - \omega)t_1} \int_{\delta(\omega_0 - \omega) \text{ if } (t - t_0) > 1/\omega_0}^{\infty}$$

*t*₀ - момент образования излучающего уровня,

 $J(\omega)$ определяется током перехода частиц.



- Резонансные нулевые колебания ЭМ поля стимулируют спонтанное излучение фотона.
- В малом резонаторе переход подавлен.

Резонансный характер внутренней электронной конверсии ү-квантов





Для конверсионного перехода энергии $\Delta E_{
m N}=~\hbar\omega_0$

матричный элемент получается в 2-м порядке теории возмущений

$$S_{\text{conv.}}(t) = \int_{0}^{\infty} d\omega J(\omega) \theta^{2}(\omega) \int_{t_{o}}^{t} dt_{1} e^{i(\Delta E_{e}/\hbar + \omega)t_{1}} \int_{\delta(\omega_{0} - \omega)}^{t_{1}} dt_{2} e^{i(\omega_{0} - \omega)t_{2}}$$

 $J(\omega)$ содержит произведение токов перехода ядра и электрона,

 t_0 – момент образования возбужденного уровня.

$$S_{\rm conv}(t) \propto \theta(\omega_0)$$

→ переход подавляется в резонаторе малого размера (Кольцов 1993, 2019)

Внутри резонатора интенсивность НКП малой частоты меньше, чем в свободном пространстве снаружи резонатора.

На стенки давление НКП изнутри
 резонатора меньше чем давление НКП
 снаружи.

• Появляется сила, сдавливающая стенки резонатора (Casimir 1948).

$$F = \hbar c \frac{\pi^2}{240 D^4} = \frac{0.013}{D_{\mu}^4}$$
 Дин/см²



- Вероятность конверсионного перехода энергии $\hbar\omega_0$ подавлена в резонаторе, где $\theta(\omega_0) = 0$.
- Для ядер внутри металлов возможно подавление переходов, если ħω₀ меньше ~ 1 кэВ, когда еще существенно отражение от поверхности металла ЭМ волн частоты ω₀.
- Металл можно рассматривать как предельный случай резонатора малого размера.
 При отражении НКП от сближающихся стенок резонатора большого размера частота НКП возрастает (эффект Доплера) и колебания малой частоты ослабляются.
- Строгое рассмотрение на основе корреляторов напряженности ЭМ поля также показывает подавление НКП в металлах (Кольцов 2000).



- Интенсивность НКП ослабевает по мере углубления в металл.
- Для реальных фотонов с энергией до ~ 1 кэВ толщина переходной области определяется коэффициентом поглощения в основном за счет фотоэффекта.
- Но НКП не поглощаются атомами (Шифф, 1955), ослабляются только при рассеянии на свободных частицах (на электронах проводимости).



Для НКП:

- Коэффициент ослабления
 интенсивности в металле намного
 меньше чем для реальных фотонов.
- Толщина переходного слоя больше.

Кратковременное уменьшение интенсивности НКП при образовании металла

- $W_{e, cB}$ оценка энергии взаимодействия атомных электронов и НКП за счет виртуальных переходов электронов в непрерывный спектр энергии и обратно (Welton 1948).
- При образовании металла из свободных атомов энергия W_e растет за счет появления новых свободных состояний для электронов (Кольцов 2019/1).
- Энергия НКП *W*_{НКП} уменьшается, но потом растет до стационарного значения в металле.



ядер в металлах

- Уменьшение вероятности *Р* для переходов энергии меньше ~ 1 кэВ.
- Уменьшение вероятности *P* с увеличением глубины внедрения ядер в металлы.
- Временное уменьшение вероятности *P* для ядер в металле сразу после образования металла или после фазовых переходов в металле.

на вероятность ЭМ переходов ядер в металлах

- Для экспериментов оказались удобны ядерные изомеры 235m U (ΔE = 76 eV), 154m Eu (ΔE = 910 eV), 99m Tc (ΔE = 2172 eV).
- Было обнаружено уменьшение вероятности конверсионных переходов P_{conv} при переносе ядер из диэлектриков (соли металлов) в металлы.
- Этот эффект не объясняется ни химическим влиянием металла на вероятность P_{conv} ни рассеянием конверсионных электронов на атомах металлов.
- По крайней мере качественно эффект соответствует уменьшению вероятности P_{conv}
 за счет уменьшения в металлах интенсивности НКП на частоте переходов.

Подавление изомерного перехода ядер ^{235m}U в матрице Ад-металла

(Кольцов, Римский-Корсаков, ... 1989, 1992)



Изомерные ядра на поверхности металла



Изомерные ядра в диэлектрике

•	•	•	•	•	•	•
диэлектрик						

- Схема образования изомера ^{235m}U
 при α-распаде ²³⁹Pu.
- Изомерный переход можно детектировать
 только для ядер U на поверхности металла
 или в металле около его поверхности.
- Электроны детектировали канальным электронным умножителем.
- Измеряли интегральный спектр электронов.

Для ^{235m}U на поверхности различных металлов (Ag, Au, Cu, ...) или в приповерхностных слоях $D \sim 10$ A, внутри диэлектрика (NaCl соль), $T_{1/2} = 26$ мин ± 5 %

Приготовление образцов ^{235m}U в серебре



- На W-подложку наносили Ag-слой испарением Ag в вакууме.
- При α-распаде ²³⁹Ри ядра отдачи ^{235m}U наносили на Ад-слой в Ar-атмосфере.
- Радиоактивная метка γ208 кэВ ядра отдачи ²³⁷U от α-распада ²⁴¹Pu.
- Снова покрывали образец слоем серебра.

- Делили образец на одинаковые части №1 и №2.
- С образца №1 удаляли Ад нагревом в вакууме, начинали детектировать его электроны конверсии.
- Потом удаляли Ag с образца №2 и от него детектировали электроны конверсии.

Результаты экспериментов с изомером ^{235m}U

- Было проведено около 50 экспериментов. Все эксперименты показали превышение активности изомера ^{235m}U для образца №2.
- Величина эффекта была плохо воспроизводима из-за плохой воспроизводимости структуры системы U – Ag.
- Также одновременно приготовляли четыре ^{235m}U Ag образца, наблюдали накопление "ступеньки" со временем, однако это накопление прекращалось через ~100 мин.



Возрастание T_{12} изомерных ядер of ^{99m}Tc при увеличении глубины внедрения

в металлическую матрицу (Кольцов, Суглобов, ... 1998, 2000)

Эффект возможен за счет уменьшения интенсивности НКП вглубь металла.





- ^{99m}Тс ядра однородно распределены
 в металлических каплях разного размера.
- Капли металла измерялись по очереди.
- В каплях большого размера средняя глубина для детектируемого ^{99m}Tc была больше чем в каплях меньшего размера.

^{99m}Тс результаты экспериментов

$$Y = \ln \left(N(t) e^{\ln 2 \cdot t / T_0} \right)$$

N(t) – интенсивность регистрации γ -квантов за вычетом фона, $T_0 = 6.02$ ч



^{99т}Тс линии распада различных образцов,

измеренные в одном эксперименте.

Вариация $T_{1/2}$ для ^{99m}Tc образцов различного размера

Металл	Cu	Ag	Au	Sn	Pb
<i>D</i> (мм)	0.70 ± 0.14	0.49 ± 0.10	0.16 ± 0.03	0.59 ± 0.12	0.23 ± 0.05
	0.29 ± 0.06	0.24 ± 0.05	0.14 ± 0.03	0.25 ± 0.05	0.19 ± 0.04
$\delta T_{1/2}$ (%)	0.20 ± 0.08	0.15 ± 0.08	0.16 ± 0.09	0.46 ± 0.06	0.38 ± 0.07

 $\delta T_{1/2} = rac{T_{1/2,60льшой} - T_{1/2,Mалый}}{T_{1/2,Mалый}}$ D – средняя глубина детектируемых ядер ^{99m} Тс в матрицах

Влияние Sn-металла на вероятность перехода 910 эВ в ядрах ¹⁵⁴Eu



(Кольцов, Римский-Корсаков, Карасев 2016)

Преимущества ^{154m}Eu методики эксперимента:

- После 910 эВ перехода излучаются γ-кванты большой энергии. Можно измерять вероятность перехода 910 эВ прямо внутри матрицы.
- Энергия перехода 910 эВ меньше энергии изомерного перехода в ^{99m}Tc.
- Диффузия атомов Еu в матрице была бы заметна по изменению со временем относительной интенсивности γ-квантов 31 и 68 кэВ.

Фрагмент схемы распада изомера ^{154m}Eu

Методика эксперимента: изменение вероятности перехода 910 эВ для ядер ¹⁵⁴Eu внутри матрицы измеряли по изменению относительного выхода γ-квантов 68.17 и 100.86 кэВ.

Получение образцов ^{154m}Eu



γ-спектр Sm металла после протонного облучения



Старт измерения γ-спектра через 35 мин после окончания облучения Sm протонами, экспозиция 1000 с.

Для учета поглощения γ-квантов в материале образцов, при анализе γ-спектров интенсивность аналитических γ-линий 68.2 and 100.9 keV ^{154m}Eu сравнивалась с интенсивностью "опорных" γ-линий других Eu изотопов.

Отношения интенсивности у-линий в спектрах

Sm-металла и Sn-Sn-сплава к интенсивности линий в спектре Sm-хлорида



Для учета различия в эффективности регистрации γ-квантов от различных источников сравнивали отношение "опорных" γ-линий 89.9, 121.8 и 197.3 кэВ в γ-спектрах трех источников (Sm-металл, Sn – Sm сплав, Sm-хлорид). $J_{E_{i}, \frac{Sm-Sn cплав}{Xлорид}} = \frac{I_{E_{i}, Sm-Sn cплав}}{I_{E_{i}, Xлорид}}$

Сравниваемые источники	Относительное изменение δ <i>Р</i> вероятности перехода 910 эВ		
Sm металл / Sm-хлорид	0.004 ± 0.012		
Sm-Sn сплав / Sm-хлорид	0.17 ± 0.03		

$$\delta P = \frac{P_{\text{хлорид}} - P_{\text{металл}}}{P_{\text{хлорид}}}$$

Изомер	Энергия перехода, кэВ	Материал матрицы	Уменьшение вероятности перехода, %
^{235m} U	0,076	Ag	200
^{154m} Eu	0,91	Sn	20
^{99m} Tc	2,17	Sn, Pb, Cu, Ag, Au	0,3

Подавление переходов уменьшается с увеличением энергии перехода.

- Эффект соответствует предположению о резонансной стимуляции конверсионного перехода нулевыми колебаниями ЭМ поля (НКП) и подавлению НКП в металлах.
- Эффект может рассматриваться как непрямое экспериментальное подтверждение резонансного характера конверсионного перехода.
- Эффект не может быть объяснен стандартными причинами ни деформацией электронных оболочек ядер с изомерными ядрами, ни рассеянием конверсионных электронов в металле.



Известно только слабое изменение $T_{1/2}$

- Деформация атомных оболочек U.
- Интерференция волновой функции
 электронов конверсии при рассеянии
 на атомах металла.

Эксперимент:

Только 5% вариации $T_{1/2}$ для ^{235m}U в приповерхностных ~ 10 А слоях металлов, где уже есть деформация атомных оболочек U и рассеяние электронов конверсии.

Теория:

максимальные вариации $\delta T_{1/2}$ < 50 %

- За счет деформации атомной оболочки урана в серебре (Гречухин, ... 1992).
- За счет рассеяния электронов конверсии на атомах матрицы (Добрецов 1992).





- Для β -распада необходимо $E_{\beta} > E_{\rm F}$. При $E_{\rm F} > 0$ вероятность распада уменьшается.
- В металлах E_F ~ 1 эВ и эффект незначителен, E_{β} до ~ 1 MeV.
- В звездах (внешние оболочки белых карликов и нейтронных звезд) *E*_F ~ 1 МэВ, возможно *E*_F ~ *E*₆.
 - Для β-распада свободных ядер спектр
 энергии β-частиц непрерывен, от 0 to E_{β, max.}
 - В вырожденной плазме распад при *E*_β < *E*_F
 запрещен, что уменьшает вероятность β-распада.
 - Эффект может быть существенен для звездного нуклеосинтеза.

Изомерные переходы в других ядрах (^{229*m*}Th, ^{234*m*}Pa, ^{240*m*}Np)

Эти изомеры оказались неудобны для экспериментов.



- Вероятность перехода очень сильно зависит от химического окружения изомера и на этом фоне трудно выделить влияние НКП (Кольцов, ... 1995, 1998, 2022).
- Энергия ^{229m}Th изомерного перехода $\Delta E = 8$ эВ.

Для ^{234m}Ра нашли энергию изомерного перехода
 Δ*E* = 2.5 keV. Для такой сравнительно большой
 энергии эффект матрицы оказался слишком мал для
 наблюдения (Кольцов, Римский-Корсаков, ... 2008).

• Для изомера ^{240m}Np (ΔE < 18 keV, $T_{1/2}$ = 7.22 мин), $T_{1/2}$ для ядер в Ag-металле больше, чем в Np-хлориде, но сложность экспериментальной методики не позволила провести систематические исследования (Кольцов, ... 1994).



- Проведенные эксперименты по подавлению ЭМ ядерных переходов пока только обозначили интересную область исследований. Основная работа еще впереди.
- Необходимо более детально теоретически рассмотреть соответствие между вероятностью переходов ядер и спектром НКП в металлах.
- В экспериментах интересно исследовать следующие вопросы:
 - Вероятность изомерного перехода ^{235m}U в Аи-матрице вместо Ад-матрицы.
 - Для ^{54m}Eu исследовать подавление перехода 910 эВ в зависимости от глубины внедрения ядер в матрицу.
 - Расширить набор матриц из различных материалов в экспериментах с ^{154m}Eu.

- V. Weisskopf, E. Wigner // Z. Phys. 1930. 63, 54; 1930. 65, 18.
 V. Weisskopf // Uspekhi Fizicheskikh Nauk. 1982. 138, 55 (in Russian).
- 2. V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz, L. P. Pitaevskii. Quantum electrodynamics. Butterworth-Heinemann. N.Y. 2012. P. 240.
- 3. V.V. Koltsov // "On the probability of the conversion transition of 235mU nuclei in silver". Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 1993. **57**, 93.
- 4. V.V. Koltsov // "On the resonant character of a nuclear conversion transition and the possibility of its resonant stimulation". Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys., 2019, **83**, 1144.
- 5. H.B.G. Casimir // "On the action between two perfectly conducting plates". Proc. K. Ned. Akad. Wet **60**, 793 (1948).
- 6. L.D. Landau, E.M. Lifshitz, L.P. Pitaevskii. Statistical Physics, Part 2, 3rd edition (Course of Theoretical Physics, Volume 09). 1979. Pergamon Press. N.Y. 387 P.
- V.V. Koltsov // "Method for describing the influence of the dielectric properties of the medium on the probability of the isomeric transition E = 3.5 eV in the 229mTh nucleus". Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2000. 64, 447.
- 8. L. I. Schiff. Quantum mechanics. 1955. McGraw-Hill. N.Y. 417 P.
- 9. Th. Welton // Phys. Rev. 1948. 74, 1157.
- V.V. Koltsov. // "On resonant influence of matrix with isomeric nuclei on isomeric transition probability". Proc. Int. Conf. "Nucleus-2018" (69th Meeting on Nuclear Spectroscopy and Atomic Nucleus Structure). Dubna, Russia, July 1-5, 2019. P. 176.

Литература

- V.V. Koltsov, A.A. Rimskii–Korsakov // "Influence of the electro conducting environment on the decay of the 235mU isomer". Bull. Acad. Sci. USSR. Phys. Ser. (USA). 1989. 53, 21.
 O.V. Vorjhalov, E.A. Zaitzev, V.V. Koltsov, A.A. Rimskii–Korsakov // Bull. Acad. Sci. USSR. Phys. Ser. (USA). 1992. 56, 30.
 O. Dragoun. // Rare effects in gamma-ray internal conversion. J. Phys. G.: Nucl. Part. Phys. 1991. 17, S91. V.V. Koltsov, D.N. Suglobov, L.G. Masherov // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys., V. 62, №5, (1998).
 V.V. Koltsov, Y.V. Mortikov, D.N. Suglobov, L.G. Masherov // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2000. 64, 451.
- 12. V.V. Koltsov, A. A. Rimskii-Korsakov, V. V. Karasev // "Influence of a Metallic Matrix on the Probability of the Transition at 910 eV in 154Eu Nuclei". Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2016, **80**, 884.
- V. Koltsov "Suppression of low-energy electromagnetic (EM) transitions of atomic nuclei in metals due to suppression of resonant zero-point fluctuations of the EM field". «AstronomyForum 2022 – 2nd International Forum on Physics and Astronomy». Book of abstracts, P. 42. 14-16 November 2022, Valencia, Spain.
- О.В. Ворыхалов, В.В. Кольцов. // "Поиск изомерного перехода с энергией меньше 5 эВ в ядре ²²⁹Th". Изв. АН, Сер. физ., 1995, Т. 59, № 1, С. 24-28; О.V. Vorykhalov, V.V. Kol'tsov // "Search for an isomeric transition with an energy below 5 eV in the 229Th nucleus". Bull. Russ. Acad. Sci: Phys., V. 59, № 1, P. 24-28, (1995).
- 15. V.V. Koltsov, T.E. Kuzmina, D.N. "Suglobov. "Half-life measurement of the ²²⁹Th isomer". Proc. Int. Conf. on Nucl, Phys., Moscow, June 16–19, P.266 (1999).
- V.V. Koltsov, T.E. Kuzmina. "The half-life of ^{229m}Th isomers in acid solution". LXXII international conference «Nucleus-2022 Fundamental problems and applications». Book of abstracts, P. 50. 11 16 July 2022. Moscow.

Литература

- 17. A.A. Rimsky-Korsakov, V.V. Koltsov, V.V. Karasev. // "Scheme of the β-Decay of ²³⁴Th". Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics, 2016, V 80, No. 8, pp. 880–883.
- О.В. Ворыхалов, В.В. Кольцов, А.И. Костылев, А.В. Малышенков, А.А, Михайлов, Ю.Г. Покровский. "Влияние атомного окружения на вероятность изомерного перехода ядра Np-240". Международное совещание «Ядерное спектроскопия и структура ядра». Санкт-Петербург, 17 – 20 мая, с. 158 (1994).

Спасибо!