

## ПОИСК АНОМАЛЬНЫХ АТОМОВ УГЛЕРОДА — СВИДЕТЕЛЕЙ НАРУШЕНИЯ ПРИНЦИПА ПАУЛИ В ПЕРИОД НУКЛЕОСИНТЕЗА

А.С.Барабаш, В.Н.Корноухов, Ю.М.Ципенюк<sup>+</sup>, Б.А.Чапыжников\*

Государственный научный центр Российской Федерации  
"Институт теоретической и экспериментальной физики"  
117259 Москва, Россия

<sup>+</sup> Институт физических проблем им. П.Л.Капицы РАН  
117334 Москва, Россия

\* Институт геохимии и аналитической химии им. В.И.Вернадского РАН  
117975 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 1998 г.

После переработки 11 июня 1998 г.

Методом гамма-активационного анализа бора с радиохимической очисткой от примеси углерода проведен поиск аномальных атомов углерода  $^{12}\tilde{C}$  – атомов с тремя электронами на *K*-оболочке. Установлен предел на существование таких атомов:  $^{12}\tilde{C}/^{12}C < 2,5 \cdot 10^{-12}$ , что соответствует ограничению на время жизни по отношению к нарушению принципа Паули электронами в атоме углерода  $\tau \geq 2 \cdot 10^{21}$  лет.

PACS: 05.30.-d, 11.30.-j, 98.80.Вр

Принцип Паули является одним из наиболее фундаментальных законов природы. Он был сформулирован В.Паули в 1925 г. [1] для объяснения закономерностей периодической системы элементов и особенностей атомных спектров. В современной квантовой теории поля принцип Паули автоматически вытекает из принципа тождественности частиц и антикоммутируемости операторов рождения (уничтожения) фермионов и заключается в том, что в системе тождественных фермионов не могут находиться в одном и том же состоянии две (или более) частицы.

Открытие в 1956 г. несохранения четности при  $\beta$ -распаде [2] впервые показало, что фундаментальные законы могут нарушаться. Затем, как хорошо известно, последовало в 1964 г. обнаружение нарушения CP-инвариантности [3]. Эти работы привели к тому, что проверке стали подвергаться практически все законы сохранения. Так, например, в течение последних 10–15 лет интенсивно исследуется возможное несохранение лептонных квантовых чисел, барионного и электрического заряда, нарушение CPT-симметрии и лоренц-инвариантности.

Что касается принципа Паули, то на основе современных теоретических представлений нет ответа на вопрос: "с какой точностью справедлив принцип Паули?". Это связано, прежде всего, с отсутствием каких-либо "настоящих" (самосогласованных и непротиворечивых) моделей, допускающих слабое нарушение принципа Паули, и, вполне вероятно, что такие модели должны выходить за рамки стандартной квантовой теории поля.

В работе Окуня [4] отмечается, что независимо от той или иной модели представляет интерес экспериментальный поиск возможного нарушения принципа Паули в двух направлениях.

1. Поиск переходов типа  $2p-1s$  в стабильных атомах, в результате которых на  $1s$ -оболочке появляется третий электрон. В 1974 г. Райнес и Собел [5] на основе результата работы [6] по поиску нестабильности электрона впервые оценили нижний предел времени для процессов с нарушением принципа Паули в атомах йода:  $\tau > 10^{20}$  лет. Используя современные ограничения на стабильность электрона [7,8], можно получить еще более жесткие ограничения относительно нарушения принципа Паули в атомах йода ( $T_{1/2} > 1,2 \cdot 10^{23}$  лет) и германия ( $T_{1/2} > 2,6 \cdot 10^{23}$  лет). Следует подчеркнуть, что если гамильтониан обладает перестановочной симметрией, то спонтанное превращение обычного атома в "непаулевский" в рамках квантовой механики невозможно (см., например, [9,10]).

2. Поиски стабильных "непаулевских" атомов. Такие атомы могли бы иметь космологическое происхождение, если не все  $10^{80}$  электронов во Вселенной антисимметризованы либо если спонтанные переходы обычных атомов в "непаулевские" все же возможны. Химические свойства атомов с тремя электронами на  $1s$ -оболочке должны быть похожи на свойства их "младших" соседей по таблице Менделеева (например, "непаулевский" углерод похож на бор).

В 1989 г. Новиков и Поманский предложили проверку принципа Паули по поиску аномальных атомов, возникших в период нуклеосинтеза во Вселенной [11]. Если принцип Паули нарушается, то в каждом веществе, содержащем элементы с атомным номером  $Z$ , имеется примесь аномальных атомов элемента с атомным номером  $(Z + 1)$ , поскольку эти аномальные атомы имеют те же химические свойства, что и элемент с атомным номером  $Z$ . Концентрация аномальных атомов в веществе получается наибольшая в том случае, когда космическая распространенность материнского элемента  $(Z + 1)$  велика, а элемента  $Z$  мала. Если образование "непаулевских" атомов произошло в результате спонтанного перехода внешнего электрона на внутреннюю оболочку, то концентрация аномальных атомов в основном веществе составит:

$$C = \frac{t}{\tau} \frac{P(Z+1)}{P(Z)}, \quad (1)$$

где  $t$  – среднее время, прошедшее от момента образования аномального атома и до окончания нуклеосинтеза ( $\sim 4,5$  миллиарда лет);  $\tau$  – время жизни атомного электрона по отношению к нарушению принципа Паули;  $P(Z+1)$  и  $P(Z)$  — космическая распространенность элементов с атомными номерами  $(Z + 1)$  и  $Z$ .

В этой же работе [11] были предложены в качестве наиболее перспективных для исследования две пары атомов: бор–углерод и фтор–неон с соотношением  $P(Z + 1)/P(Z)$ , равным  $2,18 \cdot 10^6$  и  $650$ , соответственно. И если эксперимент по поиску аномальных атомов неона во фторе и аргона в хлоре был выполнен [12] (методом ускорительной масс-спектрометрии были получены следующие результаты:  $\tau(^{20}\text{Ne}) > 2 \cdot 10^{30}$  лет,  $\tau(^{36}\text{Ar}) > 4 \cdot 10^{27}$  лет), то пара бор–углерод осталась неизученной.

Данная работа посвящена поиску аномальных атомов углерода в боре. Напомним, что бор существует в виде двух стабильных изотопов —  $^{10}\text{B}$  ( $\sim 19\%$ ) и  $^{11}\text{B}$  ( $\sim 81\%$ ). Углерод также состоит из двух изотопов —  $^{12}\text{C}$  ( $\sim 99\%$ ) и  $^{13}\text{C}$  ( $\sim 1\%$ ). Аномальный атом  $^{12}\text{C}$  содержит 3 электрона на  $K$ -оболочке и поэтому химически ведет себя как атом бора. В процессе эволюции такие аномальные атомы должны оказаться сосредоточенными в боре и его соединениях. Чтобы их обнаружить нужно либо вести поиск аномальных ядер  $^{12}\text{C}$  в боре, либо искать атом бора с массой ядра 12.

В данной работе мы попытались реализовать первую возможность. При обсуждении возможных экспериментов по поиску аномальных атомов углерода в боре Новиков и Поманский предлагали искать их методом масс-спектрометрии и даже сделали оценку чувствительности такого рода экспериментов. Однако эта оценка очень завышена, ибо достаточно большая примесь "обычного" углерода (на уровне 0,1%) всегда имеется как в образцах бора, так и в остаточной атмосфере масс-спектрометра.

Идея данного эксперимента состояла в том, чтобы химическим способом очистить образец бора от атомов углерода, а затем измерить в нем содержание ядер углерода. Поиск аномальных атомов углерода проводился с помощью гамма-активационного анализа различных образцов бора. Бор является идеальным объектом для гамма-активационного метода анализа, так как в нем не образуется под действием  $\gamma$ -квантов никаких радиоактивных изотопов и тем самым вся наведенная активность определяется только примесями.

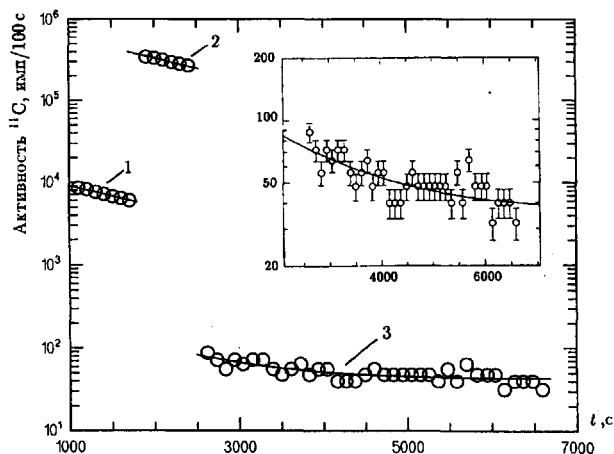
Эксперимент проводился на микротроне Института физических проблем РАН. В качестве образцов бора для анализа использовались аморфный бор (порошок, получаемый из газа  $\text{BCl}_3$ ),  $\alpha$ - и  $\beta$ -ромбоэдрический бор, вискеры бора на вольфраме, декаборан ( $\text{B}_{10}\text{H}_{14}$ ), а также бор, выращенный методом зонной плавки. Как показали эксперименты, наиболее чистым оказался бор, полученный методом зонной плавки, с которым и проводились основные измерения. В этих образцах начальное содержание атомов углерода составляло примерно  $1,5 \cdot 10^{-3}$  г/г. В других образцах (аморфный бор, вискеры, борный ангидрид) было обнаружено большое содержание хлора и фтора ( $\sim 10^{-4}$  г/г), а также небольшие (в основном на уровне  $10^{-6} - 10^{-8}$  г/г) примеси различных металлов. Поэтому поиск аномальных атомов углерода в боре инструментальным методом ( $\gamma$ -спектрометрия облученных образцов без их разрушения) невозможен и была разработана специальная методика по очистке бора от примесей.

Образец бора массой  $\sim 0,1$  г облучался  $\gamma$ -квантами тормозного излучения электронов с энергией 28 МэВ. Если в боре присутствуют ядра  $^{12}\text{C}$ , то должна идти реакция  $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ , то есть образуются радиоактивные ядра  $^{11}\text{C}$  с периодом полураспада 20,34 мин. Причем в 99% случаев ядро  $^{11}\text{C}$  испытывает  $\beta^+$ -распад, что позволяет использовать для его регистрации метод ( $\gamma - \gamma$ )-совпадений (регистрируются 2 аннигиляционных  $\gamma$ -кванта с энергией 511 кэВ каждый, которые испускаются после остановки и аннигиляции позитронов в веществе).

Следует заметить, что при испускании нейтрона ядро приобретает импульс отдачи и, двигаясь в веществе, может потерять электроны, в том числе и с  $K$ -оболочки, и тогда аномальные атомы станут при последующем заполнении электронной оболочки нормальными. Однако в используемой нами реакции  $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$  энергия ядра отдачи  $^{11}\text{C}$  не превышает 1 МэВ (средняя энергия  $\sim 300$  кэВ). Согласно работе [13], при энергии 600 кэВ вероятность потери атомом углерода  $K$ -электрона составляет не более 10%. Была также проведена оценка вероятности потери электронов с  $K$ -оболочки при передаче нейтральному атому энергии отдачи (за счет "встряски" электронной оболочки при передаче ядру импульса отдачи). Вероятность такого процесса не превышает нескольких процентов.

Образец бора после облучения окислялся в расплаве  $\text{KNO}_3\text{-KOH}$  (3 : 1) в течение около 10 мин при  $600^\circ\text{C}$ . При окислительном сплавлении в щелочном расплаве углеродсодержащие примеси в боре (твердый раствор внедрения углерода, карбид бора  $\text{B}_4\text{C}$ ) окисляются до  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{KHCO}_3$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3$ , а бор — до  $\text{B}_2\text{O}_3$ . Охлажденный

сплав затем растворялся в воде и избытке азотной кислоты для того, чтобы перевести борный ангидрид в борную кислоту  $H_3BO_3$ . После этого раствор доводился до кипения, при этом бикарбонаты и карбонаты калия разлагались с образованием углекислого газа, который выносился из раствора борной кислоты потоком воздуха. Эксперименты по измерению активности выделяющегося  $^{11}CO_2$  показали, что за 25 мин при такой процедуре из раствора удаляется более 99% углерода. После отгонки  $CO_2$  измерялось изменение во времени активности ядер  $^{11}C$ , оставшихся в растворе борной кислоты. Одновременно с образцом облучался графит, измерение активности которого позволяло рассчитать массу оставшегося углерода.



Временная зависимость позитронной активности углерода, выделенного из образца бора массой 100 мг после облучения (1), углеродного образца сравнения массой 6 мг, облучаемого вместе с исследуемым образцом (2), и раствора после химического выделения атомов углерода (3). На вставке приведена только зарегистрированная позитронная активность раствора, сплошной линией показана аппроксимация данных в предположении о наличии только радионуклидов  $^{11}C$  и фона

На приведенном графике показан результат одного из проведенных измерений. Остаточная активность обусловлена практически только фоном (он составляет примерно 40 распадов за 100 с) и лишь небольшой подъем активности в начале измерений можно приписать 20-минутному периоду полураспада радиоактивных ядер углерода. На вставке к рисунку приведен в большем масштабе результат измерений активности раствора и результат математической обработки полученных данных функцией  $a + b \exp(-t/T_{1/2})$ , где  $a$  – постоянный фон, а  $T_{1/2} = 1224$  с – период полураспада  $^{11}C$ .

В результате серии такого рода измерений было установлено, что концентрация аномальных атомов углерода составляет не более  $5 \cdot 10^{-6}$  г/г. На самом деле мы не можем исключить того, что наблюдаемая активность ядер  $^{11}C$  связана с остаточным содержанием "нормального" углерода в образце бора. Поэтому можно лишь утверждать, что концентрация аномальных атомов  $^{12}C$  в боре  $\leq 5 \cdot 10^{-6}$  г/г. Так как космическая распространенность углерода в  $2 \cdot 10^6$  раз больше распространенности бора, то это означает, что относительная концентрация аномальных атомов углерода в углероде соответствует значению  $^{12}C/^{12}C \leq 2,5 \cdot 10^{-12}$ . Используя полученное ограничение, по формуле (1) находим, что так как время накопления аномальных

атомов углерода могло происходить за все время нуклеосинтеза  $t = 4.5 \cdot 10^9$  лет, то время жизни электронов в атоме углерода относительно нарушения принципа Паули

$$\tau \geq 2 \cdot 10^{21} \text{ лет.} \quad (2)$$

В заключение отметим, что чувствительность используемого нами гамма-активационного метода определения концентрации ядер  $^{12}\text{C}$  в боре в принципе позволяет повысить предел определения  $\tau$  на порядок, если удастся получить образец бора с низким содержанием примесей "нормального" углерода, либо удастся более эффективно очистить образец бора от углерода после облучения.

Авторы глубоко признательны Л.Б. Окуню за внимание к работе и обсуждение результатов, В.Э.Янцу и И.О.Пилюгину за помощь в оценке вероятности потери электронов с  $K$ -оболочки, А.И.Козыреву за предоставленные образцы бора, К.А.Солнцеву за предоставление образцов декаборана и плодотворные обсуждения химии бора, а также Б.С. Закирову за помощь при проведении экспериментов.

- 
1. W.Pauli, Z.Phys. **31**, 765 (1925).
  2. C.S.Wu, E.Ambler, R.W.Hayward et al., Phys.Rev. **105**, 1413 (1957).
  3. J.H.Christinsen, J.W.Cronin, V.L.Fitch et al., Phys. Rev. Lett. **13**, 138 (1964).
  4. Л.Б.Окунь, УФН **158**, 294 (1989); Phys. Rev. **D45**, VI.10 (1992).
  5. F.Reines and H.Sobel, Phys. Rev. Lett. **32**, 954 (1974).
  6. M.K.Moe and F.Reines, Phys. Rev. **B140**, 992 (1965).
  7. H.Ejiri, H.Kinoshita, H.Sano, and H.Ohsumi, Phys. Lett. **B282**, 281 (1992).
  8. Y.Aharonov, F.T.Avignone III, R.L.Brodzinski et al., Phys. Lett. **B353**, 168 (1995).
  9. P.A.M.Dirac. *The Principles of Quantum Mechanics*, Clarendon Press, Oxford, 1958, ch. IX.
  10. R.D.Amado and H.Primakoff, Phys. Rev. **C22**, 1338 (1980).
  11. В.М.Новиков, А.А.Поманский, Письма в ЖЭТФ **49**, 68 (1989).
  12. V.M.Novikov, A.A.Pomansky, T.Faestermann et al., Phys. Lett. **B240**, 227 (1990).
  13. K.Shima, N.Kuno, M.Yamanoudri, and H.Tawara, Atomic Data Nuclear Data Tables **51**, 173 (1992).