

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ВНУТРИЯДЕРНЫХ ПЕРЕХОДОВ В ЯДРЕ $^{186}\text{Re}$ В ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЕ УСТАНОВКИ «ИСКРА-5»

А. А. Есьман, М. А. Куликов, Д. Е. Ларин, Г. В. Тачаев

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 607188, г. Саров Нижегородской обл.

Представлены результаты экспериментальных исследований неупругих процессов, происходящих внутри возбужденных ядер  $^{186m}\text{Re}$  в лазерной плазме, генерируемой на установке «Искра-5». По зафиксированному нарушению радиоактивного равновесия между основным и возбужденным состояниями ядра  $^{186}\text{Re}$  предложена гипотеза о существовании в ядре неизвестного уровня энергии. Оценены энергия уровня, его время жизни, четность и момент, а также вероятность внутриядерного перехода под действием вторичного рентгеновского излучения.

*Ключевые слова:* ядерная изомерия, гамма-распад, лазерное излучение, горячая плазма.

### 1. Введение

Начиная с момента изобретения лазеров внимание исследователей привлекают атомные ядра, находящиеся в возбужденном состоянии, как перспективный материал для создания активной среды. Однако несмотря на затраченные усилия, идея создания когерентного источника гамма-излучения до сих пор остается нереализованной.

Настоящая работа является последовательным развитием работы [1], проведенной совместно группами исследователей из Радиового института и ВНИИЭФ, где в качестве способа вынужденного девозбуждения ядер служило формирование из ядерноизомерного вещества горячей плазмы под действием мощного лазерного импульса. При таком воздействии в компактном объеме развиваются интенсивные потоки рентгеновского излучения с эффективной температурой, близкой к типичным энергетическим расстояниям между уровнями (порядка нескольких килоэлектронвольт), а также образуются протоны спектра с граничной энергией до десятка мегаэлектронвольт. В качестве исследуемого ядра заместителем директора Радиового института А. А. Римским-Корсаковым был предложен изомер  $^{186m}\text{Re}$ , структура энергетических уровней которого приведена на рис. 1.

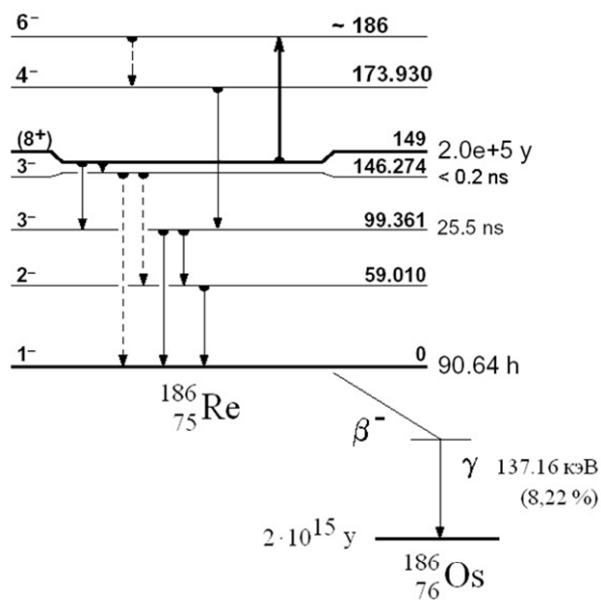


Рис.1. Структура уровней изотопа  $^{186}\text{Re}$

Основная идея эксперимента заключается в наблюдении нарушения радиоактивного равновесия между метастабильным состоянием изомера  $^{186m}\text{Re}$  (период полураспада –  $2 \cdot 10^5$  лет) и нестабильным основным состоянием того же изотопа (период полураспада – 90,64 ч) после облучения лазерным импульсом высокой интенсивности на установке «Искра-5» [2].

Для изготовления мишеней использовался препарат рения, полученный в июне 2015 года из Радиевого института. Исходный препарат изомера рения представляет собой сухую соль перрената аммония ( $\text{NH}_4\text{ReO}_4$ ). На 1 мг чистого рения распределение по числу ядер различных изотопов оказалось следующим:

- ядер рения  $^{185}\text{Re}$  (стабилен) – около  $1,2 \cdot 10^{18}$ ;
- ядер рения  $^{187}\text{Re}$  (стабилен) – около  $2,0 \cdot 10^{18}$ ;
- ядер рения  $^{186\text{m}}\text{Re}$  (период полураспада  $2,0 \cdot 10^5$  лет) – около  $2,5 \cdot 10^{13}$ .

В октябре 2015 года для проведения облучательных экспериментов на лазерной установке «Искра-5» было изготовлено четыре мишени, содержащие изомер  $^{186\text{m}}\text{Re}$  в количестве  $\sim 10^{14}$  ядер каждая.

Для размещения препарата рения был подготовлен бокс, схема которого в разрезе приведена на рис. 2. В качестве подложек мишеней, содержащих изомер  $^{186\text{m}}\text{Re}$ , использовался листовой титан размером  $6 \times 6$  мм и толщиной 2 мм. В центре подложек был высверлен колодец диаметром 1,3 мм и глубиной 1,8 мм, куда накапывался препарат рения. Лазерное излучение направлялось прямо на образец; интенсивность излучения составила величину около  $10^{15}$  Вт/см<sup>2</sup>.

Ввиду неизбежной неоднородности распределения препарата по поверхности мишени повторя-

емость результатов низка; наиболее заметный эффект облучения был обнаружен на мишени 59; опыт с нею состоялся 22 марта 2016 года в 15:00.

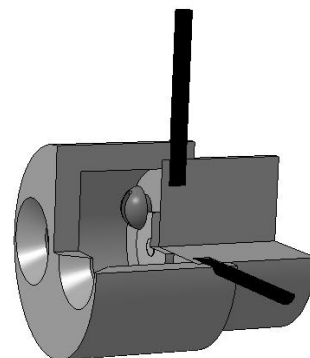


Рис. 2. Бокс для экспериментов с изомером рения

В течение 10 месяцев, с марта 2016 по январь 2017, были проведены спектрометрические измерения мишени 59, содержащей изомер  $^{186\text{m}}\text{Re}$ . Измерения спектров гамма-излучения проводились на гамма-спектрометре Spectrum Master 92X фирмы ORTEC с детектором типа EGC 15-200-R фирмы Eurisyс Mesures, геометрия измерений – 0 (на криостате детектора). Результаты измерений представлены в табл. 1, погрешность площади фотопиков приведена на уровне  $1\sigma$ .

Таблица 1

Значения площадей фотопиков радионуклидов в образце «Мишень 59»

Номер измерения	Дата, момент измерения и $\Delta t$ (ч)	Время измерения, мин	Площадь фотопиков, имп./мин			
			$^{186\text{m}}\text{Re}$ $E_\gamma = 40$ кэВ	$^{186\text{m}}\text{Re}^{**}$ $E_\gamma = 59$ кэВ	$^{186}\text{Re}$ $E_\gamma = 137$ кэВ	$^{178\text{m2}}\text{Hf}$ $E_\gamma = 89$ кэВ
1	22.03.2016, 15:42 0	2550	0,960±0,044	4,19 ± 0,08	1,61 ± 0,06	8,06 ± 0,09
2	24.03.2016, 10:17 19	1440	0,904±0,041	4,17 ± 0,08	1,60 ± 0,06	8,03 ± 0,09
3	25.03.2016, 10:28 43	1440	0,918±0,043	4,24 ± 0,08	1,62 ± 0,06	7,97 ± 0,09
4	26.03.2016, 10:28 67	1440	0,939±0,045	4,19 ± 0,08	1,55 ± 0,06	7,93 ± 0,09
5	27.03.2016, 10:28 91	1440	0,903±0,042	4,20 ± 0,08	1,52 ± 0,06	8,08 ± 0,09
6	28.03.2016, 14:39 119	1440	0,902±0,042	4,12 ± 0,08	1,49 ± 0,06	7,97 ± 0,09
7	30.03.2016, 11:18 165	1440	0,944±0,045	3,88 ± 0,07	1,46 ± 0,06	8,08 ± 0,09
8	4.04.2016, 12:37 285	1440	0,860±0,041	3,94 ± 0,07	1,48 ± 0,06	7,78 ± 0,09
9	6.04.2016, 12:16 333	1440	0,973±0,045	4,30 ± 0,08	1,43 ± 0,06	8,02 ± 0,09
10	13.04.2016, 8:45 497	1440	0,921±0,044	4,25 ± 0,09	1,51 ± 0,06	7,88 ± 0,09

11	19.04.2016, 8:00 641	1440	1,02±0,05	4,18 ± 0,08	1,52 ± 0,06	7,92 ± 0,09
12	17.01.2017, 11:04	1200	0,953±0,046	4,18 ± 0,07	1,68 ± 0,06	7,99 ± 0,09
13	18.01.2017, 7:04	1200	0,997±0,046	4,26 ± 0,07	1,74 ± 0,06	8,03 ± 0,09
14	19.01.2017, 3:04	1200	0,965±0,046	4,34 ± 0,07	1,69 ± 0,06	7,78 ± 0,09
15	19.01.2017, 23:04	1200	0,963±0,046	4,34 ± 0,07	1,68 ± 0,06	7,92 ± 0,09
16	20.01.2017, 19:04	1200	0,903±0,046	4,23 ± 0,07	1,79 ± 0,06	7,87 ± 0,09
17	21.01.2017, 15:04	1200	0,981±0,046	4,23 ± 0,07	1,75 ± 0,06	7,90 ± 0,09
18	22.01.2017, 11:04	1200	1,04±0,05	4,32 ± 0,07	1,68 ± 0,06	8,05 ± 0,09
19	23.01.2017, 7:04	1200	0,988±0,046	4,17 ± 0,07	1,69 ± 0,06	7,92 ± 0,09

Как видно из табл.1, наблюдается изменение со временем интенсивностей гамма-линий изотопа  $^{186}\text{Re}$ , как основного, так и возбужденного состояния. В качестве возможного объяснения предлагается следующая модель:

– в ядре  $^{186}\text{Re}$  существует неизвестный уровень энергии (выше известного возбужденного), на который в процессе взаимодействия ядер с лазерной плазмой в луче установки «Искра-5» переходит часть ядер возбужденного состояния;

– время жизни ядра на этом гипотетическом уровне больше, чем в основном состоянии, поэтому нарушается радиоактивное равновесие, поскольку быстроспадающее основное состояние не получает «подпитки» из известного возбужденного состояния;

– за 9 месяцев, прошедших между измерениями 11 и 12, равновесие восстанавливается, и результаты измерений 12–19 можно усреднить в одну точку; результаты усреднения приведены в табл. 2.

Таблица 2

Усреднение интенсивностей линий  $^{186}\text{Re}$  по достижении равновесия

	$^{186m}\text{Re}$ $E_\gamma = 40$ кэВ	$^{186}\text{Re}$ $E_\gamma = 137$ кэВ
Среднее значение	0,97	1,71
Среднеквадратичное отклонение	0,04	0,04

Положим также, что отклонение числа ядер, заселяющих возбужденное состояние, полностью обусловлено переходом последних на гипотетический уровень; также не принимаем во внимание

линию с энергией 59 кэВ, так как обмеряемый образец был загрязнен нуклидами, дающими близкие по спектру гамма-линии.

Система дифференциальных уравнений, описывающих заселенность уровней, в указанных предположениях будет иметь вид:

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = -\lambda_x x + \lambda_y y \\ \frac{dy}{dt} = -\lambda_y y + \lambda_z z, \\ \frac{dz}{dt} = -\lambda_z z \end{cases}$$

где  $x, y, z$  – относительное число ядер, заселяющих основной, возбужденный и гипотетический уровни соответственно;  $\lambda$  – постоянная распада ядра на соответствующем уровне.

Решив систему уравнений, получим следующие выражения для  $x, y, z$ :

$$\begin{cases} x(t) = \frac{z_0 \lambda_y \lambda_z}{\lambda_z - \lambda_y} \left( \frac{e^{-\lambda_x t} - e^{-\lambda_y t}}{\lambda_y - \lambda_x} - \frac{e^{-\lambda_x t} - e^{-\lambda_z t}}{\lambda_z - \lambda_x} \right) + \\ + \frac{y_0 \lambda_y}{\lambda_y - \lambda_z} \left( e^{-\lambda_x t} - e^{-\lambda_y t} \right) + x_0 e^{-\lambda_x t}; \\ y(t) = \frac{z_0 \lambda_z}{\lambda_z - \lambda_y} \left( e^{-\lambda_y t} - e^{-\lambda_z t} \right) + y_0 e^{-\lambda_y t}; \\ z(t) = z_0 e^{-\lambda_z t}, \end{cases}$$

где соотношение между  $x_0$  и  $y_0$  определяется из условия векового равновесия  $x_0 \cdot \lambda_x = y_0 \cdot \lambda_y$ , и таким образом система имеет 2 свободных параметра:

доля ядер, перешедших под воздействием лазерного импульса на гипотетический уровень,  $z_0$  и постоянная распада этого уровня  $\lambda_z$ .

Подбором свободных параметров под наилучшее описание теоретической кривой экспериментальных данных, были получены следующие оценки:  $z_0 = 0,1$ ,  $\lambda_z = 10^{-6} \text{ с}^{-1}$ , что соответствует периоду полураспада 400 ч.

Графики сравнения данных приведены на рис. 3, 4; экспериментальные точки были сдвинуты по времени на 42 минуты (0,7 ч) – время, прошедшее между лазерным импульсом и началом измерений. На момент времени 6000 ч приведены средние по 8 измерениям значения интенсивности линий. Погрешности даны на уровне  $1\sigma$ .

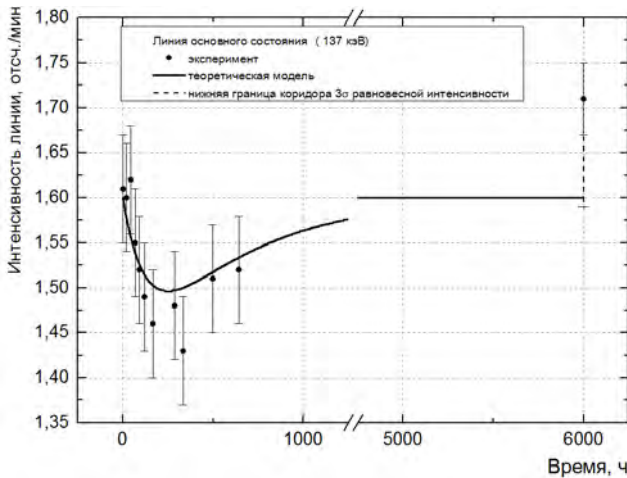


Рис. 3. Зависимость интенсивности линии основного состояния  $^{186}\text{Re}$  от времени

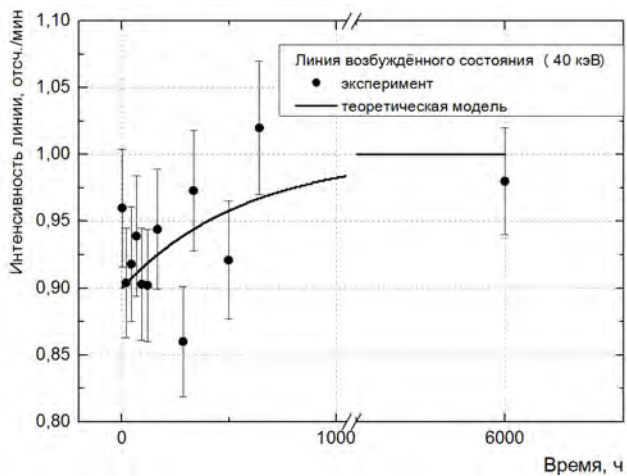


Рис. 4. Зависимость интенсивности линии возбужденного состояния  $^{186m}\text{Re}$  от времени

Как видно по графикам, предлагаемая теоретическая модель хорошо описывает экспериментальные результаты. Оценим вероятность разрядки

изомера воздействием рентгеновского излучения, развивающегося в плазме установки «Искра-5», по формуле [3], выведенной в приближении классической электромагнитной волны, взаимодействующей с атомным ядром:

$$P(\omega) = \frac{2I_z + 1}{2I_y + 1} \frac{\pi^2 c^2}{h} \frac{\Gamma_{zy}^2}{\Gamma_z \Gamma_G} \frac{S_0}{\omega^3} e^{-\left(\frac{E_0}{\hbar - \omega}\right)^2 \tau^2},$$

где  $I_z$  и  $I_y$  – моменты гипотетического и возбужденного уровня соответственно;  $\omega$  и  $S_0$  – частота и плотность потока энергии падающего излучения;  $\Gamma_{zy}$  – энергетическая ширина перехода между уровнями  $z$  и  $y$ , равная сумме ширин уровней; в формуле мы учли, что в нашей модели конечный уровень совпадает с начальным (уровень  $y$ );  $\Gamma_G$  – энергетическая ширина волнового пакета лазерного излучения, равная  $\hbar/\tau$ , где  $\tau$  – временная ширина волнового пакета на полувысоте в предположении гауссовой формы лазерного импульса;  $E_0$  – энергия возбуждения начального уровня (разность энергий между уровнями  $y$  и  $z$ ).

Отношение ширины перехода и уровней распишем в явном виде, приняв во внимание соотношение между временами жизни ядра на возбужденных уровнях:

$$\frac{\Gamma_{zy}^2}{\Gamma_z \Gamma_G} = \frac{(\Gamma_z + \Gamma_y)^2}{\Gamma_z \Gamma_G} = \frac{\left(\frac{\hbar}{\tau_z} + \frac{\hbar}{\tau_y}\right)^2}{\frac{\hbar^2}{\tau_z \tau_y}} \approx \frac{\tau}{\tau_z}.$$

Момент гипотетического уровня оценим по одноуклонной модели; согласно ей, время жизни ядра  $\tau_l$  в возбужденном состоянии с моментом  $l$  связано с радиусом ядра  $R$  и длиной волны кванта перехода  $\lambda$  как

$$\frac{1}{\tau_l} = A \frac{R^{2l}}{\lambda^{2l+1}},$$

где  $A$  – функция типа перехода: магнитного или электрического.

Тогда время жизни ядра при переходе с уровня на уровень изменится в число раз:

$$\frac{\tau_y}{\tau_z} = \frac{A_z}{A_y} \frac{R^{2l_z - 2l_y}}{\lambda^{2l_z - 2l_y}} = \frac{A_z}{A_y} \left(\frac{ER}{2\pi\hbar}\right)^{2j},$$

где  $j$  – разность между моментами уровней  $z$  и  $y$  (момент, уносимый гамма-квантом).

Отсюда энергия перехода  $E$  будет равна

$$E = \frac{2\pi\hbar}{R} 2^j \sqrt{\frac{A_y \tau_y}{A_z \tau_z}}$$

Радиус ядра  $^{186}\text{Re}$  есть

$$R = 1,1 \text{ фм} \cdot \sqrt[3]{186} = 6,3 \text{ фм},$$

отношение времен жизни равно  $4,6 \cdot 10^6$ .

Распад состояния  $^{186m}\text{Re}$  (обозначаемого нами как  $y$ ), обладающего четностью и моментом  $8^+$ , протекает через промежуточное состояние  $3^-$ ; изменение момента равно нечетному числу, переход сопровождается изменением четности ядра, и таким образом, это говорит об электрическом типе распада состояния  $y$ . Тогда оценим отношение функций различных типов перехода для ядра  $^{186}\text{Re}$ ; оно в однонуклонном приближении есть отношение электрического и магнитного дипольных моментов валентного нуклона:

$$\frac{A_E}{A_M} = \left( \frac{eR}{\frac{e\hbar}{m_N c}} \right)^2 = \left( \frac{m_N c R}{\hbar} \right)^2 = \left( \frac{1,67 \cdot 10^{-27} \text{ кг} \cdot 3 \cdot 10^8 \text{ м/с} \cdot 6,3 \text{ фм}}{1,054 \cdot 10^{-34} \text{ Дж} \cdot \text{с}} \right)^2 = 890.$$

Перебирая различные варианты изменения момента и типов перехода, получим следующие значения энергии (табл. 3).

Т а б л и ц а 3

Возможные значения энергии распада гипотетического уровня, кэВ

Величина уносимого момента	$E$ -переход	$M$ -переход
-2	4300	790
-1	94	3,2
1	$4,1 \cdot 10^8$	$1,2 \cdot 10^{10}$
2	$9,0 \cdot 10^6$	$4,9 \cdot 10^7$

Как видно из табл. 3, реальной возможностью существования обладает уровень с  $j = -1$ , т. е. с полным моментом, равным 7. При этом, по всей видимости, электрический тип распада не имеет места, ибо линия 94 кэВ может быть легко обнаружена спектроскопическими измерениями. В таком случае радиационный переход не будет сопровождаться изменением четности, т. е. уровень  $z$  есть  $7^+$ -состояние.

Таким образом, статистический коэффициент будет равен

$$\frac{2I_z + 1}{2I_y + 1} = \frac{7 \cdot 2 + 1}{8 \cdot 2 + 1} = 0,88.$$

Интенсивность рентгеновского излучения была оценена расчетом методом Монте-Карло в одномерной постановке задачи [4]; энергетический спектр рентгеновского излучения, генерируемый при облучении мишени и проинтегрированный по времени лазерного воздействия на мишень, приведен на рис. 5. Согласно тому же расчету, давление, электронная температура и плотность в плазме достигают значений 4 Мбар, 2,5 кэВ и  $9 \text{ г/см}^3$  соответственно.

Как видно из расчета, суммарная энергия, переносимая рентгеновским излучением с энергией квантов 3,2 кэВ, составляет приблизительно 15 Дж/кэВ. Ширина значимого энергетического диапазона, однако, крайне мала, что связано с быстро убывающим экспоненциальным множителем в формуле для вероятности перехода  $P(\omega)$ . Эту ширину можно оценить как  $1/\tau$ , или в энергетических единицах –  $\hbar/\tau$ , что при ширине лазерного импульса на полувысоте, равной 0,4 нс, даст  $1,6 \cdot 10^{-9}$  кэВ.

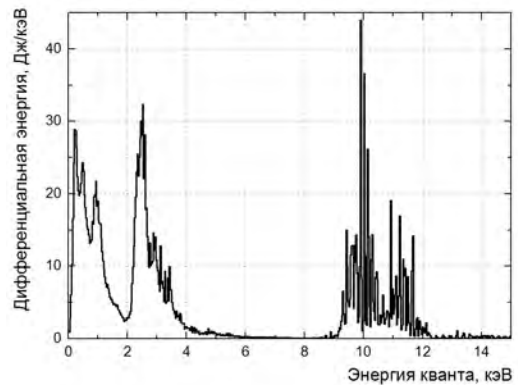


Рис. 5. Энергетический спектр рентгеновского излучения, генерируемый в мишени

Подставляя в формулу все оцененные величины и деля на площадь сечения мишени, получаем, что за время существования горячей плазмы, составляющего по расчету приблизительно 1,5 нс, переход испытают порядка  $10^{-21}$  ядер.

Таким образом, излучательный механизм внутриядерных переходов совершенно несуществен. Де-возбуждение за счет неупругих столкновений ионов в плазме также не может играть сколько-нибудь заметной роли, поскольку энергия лазера поглощается в тонком, порядка долей микрона, слое мишени, и тепло не успевает проникнуть в глубину до разрушения мишени развивающейся ударной волной.

Однако в наших оценках не был учтен коэффициент электронной конверсии, который, таким образом, может достигать величины  $10^{20}$ . В больших значениях коэффициента электронной конверсии нет ничего необычного; например, для перехода с энергией 2,17 кэВ в изомере  $^{99m}\text{Tc}$  коэффициент составляет порядка  $10^{10}$ , поскольку энергия связи электрона на *L3*-оболочке близка к энергии изомерного перехода и составляет 2,678 кэВ. В атоме же рения энергии связи электронов на *M2*- и *M1*-оболочках составляют 2,682 и 2,932 кэВ соответственно (см. график на рис. 6), что очень близко к нашим оценкам энергии внутриядерного перехода в  $^{186}\text{Re}$ . Это позволяет предполагать существование острого резонанса в обмене энергией между ядром и *M*-электроном.

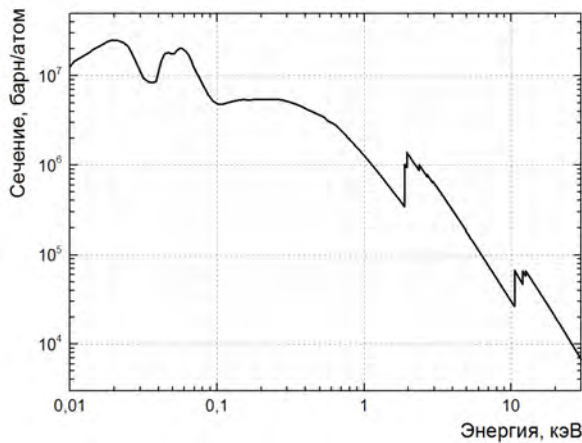


Рис.6. Зависимость полного сечения взаимодействия фотонов с атомом рения

Таким образом, полученная выше оценка вероятности разрядки ядра может быть сильно занижена. Однако возможность развития своего рода цепной реакции взаимного обмена энергией между квантами рентгеновского излучения, связанными электронами и возбужденными ядрами представляется маловероятной ввиду очень малой концентрации возбужденных ядер в мишени ( $\sim 10^{-5}$ ).

В рамках работы [1] В. В. Кольцов с сотрудниками в Радиевом институте провели серию экспериментов по облучению металлических препаратов  $^{186m}\text{Re}$  электронами с энергией 10 кэВ и спектром тормозного излучения с граничной энергией 46 кэВ. Результаты наблюдения над интенсивностью распада основного состояния  $^{186}\text{Re}$  показали, что отклонение от радиоактивного равновесия не превышает статистической погрешности эксперимента. Однако следует учитывать, что процесс внутриядерного перехода может идти как в одну, так и в другую сторону, и высокие интен-

сивности излучений могут в среднем не оказывать наблюдаемого эффекта в силу небольшого отличия статистического множителя от единицы.

В любом случае, на текущий момент механизм стимулирования энергетических переходов внутри атомных ядер остается неясным. В этой связи одним из очевидных путей усиления предполагаемых эффектов является обогащение препарата по изомеру в последующих экспериментах для повышения статистической достоверности измерений.

Отметим, тем не менее, любопытное обстоятельство. Как известно [5], перренат аммония — нестойкое к нагреву соединение, разлагающееся при температурах выше 300 °С на оксиды  $\text{ReO}_2$  ( $\beta$ -фаза) и  $\text{Re}_2\text{O}_7$  с выделением газообразных фракций молекулярных водорода и азота. Периоды кристаллических решеток оксидов с энергиями рентгеновского излучения, соответствующими этим периодам, приведены в табл. 4.

Таблица 4

Периоды кристаллических решеток оксидов рения

Окись	<i>a</i> , нм	<i>b</i> , нм	<i>c</i> , нм	$E_a$ , кэВ	$E_b$ , кэВ	$E_c$ , кэВ
$\text{ReO}_2$ ( $\beta$ -фаза)	0,48	0,56	0,46	2,58	2,20	2,70
$\text{Re}_2\text{O}_7$	1,25	1,52	0,54	0,99	0,82	2,23

Близость энергий связи электрона на *M*-оболочке, перехода между возбужденными ядерными уровнями и «эквивалента» периода кристаллической решетки может обуславливать развитие своеобразной рентгеновской волны, глубоко распространяющейся вглубь разлагающегося под действием ударной волны препарата за счет острого пика дифракции вперед. Тогда объясняется плохая повторяемость результатов, ибо ориентация дифракционных каналов в кристаллах оксидов при разложении носит случайный характер. Принципиальным ограничением здесь является скорость термического разложения соли, которое не должно превышать нескольких наносекунд.

### Список литературы

1. Ватулин В. В., Жидков Н. В., Римский-Корсаков А. А. и др. Поиск стимулированной разрядки изомерного состояния ядер  $^{186m}\text{Re}$  в плазме лазерной установки «Искра-5». // Известия РАН. Сер. физ. 2017. Т. 81, № 10. С. 401.
2. Анненков В. И., Багрецов В. А., Безуглов В. Г. и др. Импульсный лазер мощностью

120 ТВт «Искра-5» // Квантовая электроника. 1991. Т. 18, № 5. С. 536–537.

3. Dzyublik A. Ya. Triggering of nuclear isomers by x-ray laser. // Pis'ma v ZhETF. Vol. 92. Iss. 3. P. 152–156.

4. Моренко Л. З., Рябикина Н. А., Кибкало А. А. Моделирование методом Монте-Карло спектраль-

ного переноса излучения в режиме неравновесного горения в комплексе МИМОЗА (программа МИММК) // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2003. Вып. 2. С. 48–51.

5. Борисова Л. В., Ермаков А. Н. Аналитическая химия рения. М.: Наука, 1974.

Статья поступила в редакцию 11.12.2017