

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

ANALYSIS OF THE PROBABILITY OF INTRANUCLEAR TRANSITIONS IN THE NUCLEUS OF ^{186}Re IN THE LASER PLASMA OF THE LASER FACILITY «ISKRA-5»

A. A. Es'man, M. A. Kulikov, D. E. Larin, G. V. Tachaev

A. A. Yes'man, M. A. Kulikov, D. E. Larin, G. V. Tachaev

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

Russian Federal Nuclear Center – All-Russian Scientific Research Institute of Experimental Physics

В работе представлены результаты экспериментальных исследований неупругих процессов, происходящих внутри возбужденных ядер ^{186m}Re в лазерной плазме, генерируемой на установке «Искра-5». По зафиксированному нарушению радиоактивного равновесия между основным и возбужденным состояниями ядра ^{186}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.

The paper presents the results of experimental studies of inelastic processes in excited nuclei of ^{186m}Re in the laser plasma generated on the laser facility «Iskra-5». An unknown energy level is hypothesized to be present in the nucleus of ^{186}Re based on the detected disturbance of radioactive equilibrium between the ground and excited nuclear states. The energy, lifetime, parity and momentum of the level and the probability of intranuclear transitions driven by secondary x-ray emission are estimated.

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 Радиевого 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 кэВ), а также образуются протоны спектра с граничной энергией до десятка МэВ. В качестве исследуемого ядра заместителем директора Радиевого института А. А. Римским-Корсаковым был предложен изомер ^{186m}Re , структура энергетических уровней которого приведена на рис. 1.

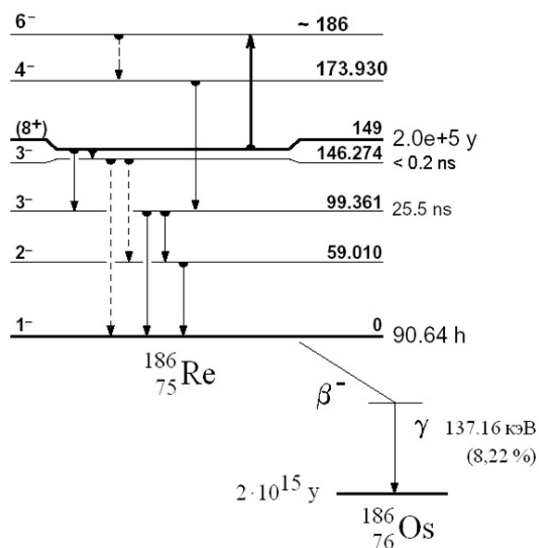


Рис. 1. Структура уровней изотопа ^{186}Re

Основная идея эксперимента заключается в наблюдении нарушения радиоактивного равновесия между метастабильным состоянием изомера ^{186m}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 Радиового института. Исходный препарат изомера рения представляет собой сухую соль перрената аммония (NH_4ReO_4). На 1 мг чистого рения распределение по числу ядер различных изотопов оказалось следующим: ядер рения ^{185}Re (стабилен) – около $1,2 \cdot 10^{18}$; ядер рения ^{187}Re (стабилен) – около $2,0 \cdot 10^{18}$; ядер рения ^{186m}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 ^{186m}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 ^{186m}Re , использовался листовый титан размером 6×6 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 $\sim 10^{15}$ Вт/см².

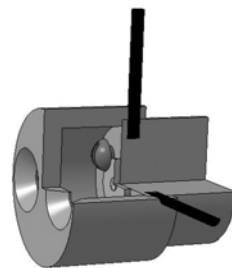


Рис. 2. Бокс для экспериментов с изомером рения

Ввиду неизбежной неоднородности распределения препарата по поверхности мишени повторяемость результатов низка; наиболее заметный эффект облучения был обнаружен на мишени № 59; опыт с нею состоялся 22 марта 2016 года в 15-00, измерения были начаты в 15-42.

В течение 10 месяцев, в период март 2016 – январь 2017, были проведены спектрометрические измерения мишени № 59, содержащей изомер ^{186m}Re . Измерения спектров гамма-излучения проводились на гамма-спектрометре при геометрии измерений – 0 (на криостате детектора). Результаты измерений представлены в табл. 1, погрешность площади фотопиков приведена на уровне 1σ .

Как видно из табл. 1, наблюдается изменение со временем интенсивностей гамма-линий изотопа ^{186}Re , как основного, так и возбужденного

Таблица 1

Значения площадей фотопиков радионуклидов в образце «Мишень 59»

Номер измерения	Прошедшее время, час	Время измерения, мин	Площадь фотопиков, имп./мин		
			^{186m}Re $E_\gamma = 40$ кэВ	^{186m}Re $E_\gamma = 59$ кэВ	^{186}Re $E_\gamma = 137$ кэВ
1	0,7	2550	$0,960 \pm 0,044$	$4,19 \pm 0,08$	$1,61 \pm 0,06$
2	43,3	1440	$0,904 \pm 0,041$	$4,17 \pm 0,08$	$1,60 \pm 0,06$
3	67,5	1440	$0,918 \pm 0,043$	$4,24 \pm 0,08$	$1,62 \pm 0,06$
4	91,5	1440	$0,939 \pm 0,045$	$4,19 \pm 0,08$	$1,55 \pm 0,06$
5	115,5	1440	$0,903 \pm 0,042$	$4,20 \pm 0,08$	$1,52 \pm 0,06$
6	143,6	1440	$0,902 \pm 0,042$	$4,12 \pm 0,08$	$1,49 \pm 0,06$
7	188,3	1440	$0,944 \pm 0,045$	$3,88 \pm 0,07$	$1,46 \pm 0,06$
8	309,6	1440	$0,860 \pm 0,041$	$3,94 \pm 0,07$	$1,48 \pm 0,06$
9	357,3	1440	$0,973 \pm 0,045$	$4,30 \pm 0,08$	$1,43 \pm 0,06$
10	521,7	1440	$0,921 \pm 0,044$	$4,25 \pm 0,09$	$1,51 \pm 0,06$
11	665,0	1440	$1,02 \pm 0,05$	$4,18 \pm 0,08$	$1,52 \pm 0,06$
12	6055	1200	$0,953 \pm 0,046$	$4,18 \pm 0,07$	$1,68 \pm 0,06$
13	6075	1200	$0,997 \pm 0,046$	$4,26 \pm 0,07$	$1,74 \pm 0,06$
14	6095	1200	$0,965 \pm 0,046$	$4,34 \pm 0,07$	$1,69 \pm 0,06$
15	6115	1200	$0,963 \pm 0,046$	$4,34 \pm 0,07$	$1,68 \pm 0,06$
16	6135	1200	$0,903 \pm 0,046$	$4,23 \pm 0,07$	$1,79 \pm 0,06$
17	6155	1200	$0,981 \pm 0,046$	$4,23 \pm 0,07$	$1,75 \pm 0,06$
18	6175	1200	$1,04 \pm 0,05$	$4,32 \pm 0,07$	$1,68 \pm 0,06$
19	6195	1200	$0,988 \pm 0,046$	$4,17 \pm 0,07$	$1,69 \pm 0,06$

состояний. В качестве возможного объяснения предлагается следующая модель:

- в ядре ^{186}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 быстрораспадающееся 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; усредненные значения интенсивностей составят $0,97 \pm 0,04$ и $1,71 \pm 0,04$ имп./мин. для линий 40 и 137 кэВ соответственно.

Положим теперь, что отклонение числа ядер, заселяющих возбужденное состояние, полностью обусловлено переходом последних на гипотетический уровень; также не принимаем во внимание линию с энергией 59 кэВ, ибо 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;

λ – 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 λ_z .

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

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 условный момент времени 6000 ч после выстрела приведены средние по 8 измерениям значения интенсивности линий. Погрешности даны на уровне 1σ .

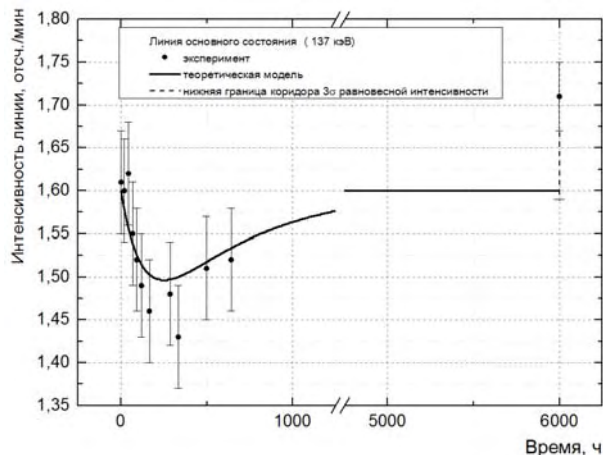


Рис. 3. Зависимость интенсивности линии основного состояния ^{186}Re от времени

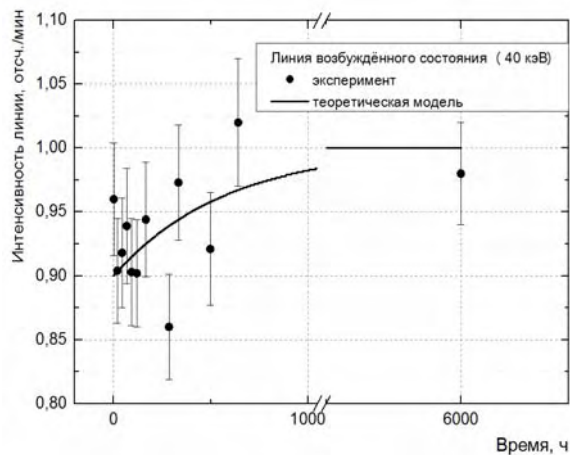


Рис. 4. Зависимость интенсивности линии возбужденного состояния ^{186m}Re от времени

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:

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

где I_z и I_y – моменты гипотетического и возбужденного уровня соответственно;

ω и S_0 – частота и плотность потока энергии падающего излучения;

Γ_{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);

Γ_G – энергетическая ширина волнового пакета лазерного излучения, равная \hbar/τ , где τ – 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:

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

Момент гипотетического уровня оценим по однонуклонной модели; согласно ей, время жизни ядра τ_l в возбужденном состоянии с моментом l связано с радиусом ядра R и длиной волны кванта перехода λ 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:

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

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

Отсюда энергия перехода E будет равна

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

Радиус ядра ^{186}Re есть

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

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

Распад состояния ^{186m}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}Re ; оно в однонуклонном приближении есть отношение электрического и магнитного дипольных моментов валентного нуклона:

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

Перебирая различные варианты изменения момента и типов перехода, получим следующие значения энергии.

Таблица 2

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. 2, реальной возможностью существования обладает уровень с $j = -1$, то есть 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, то есть 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 г/см^3 соответственно.

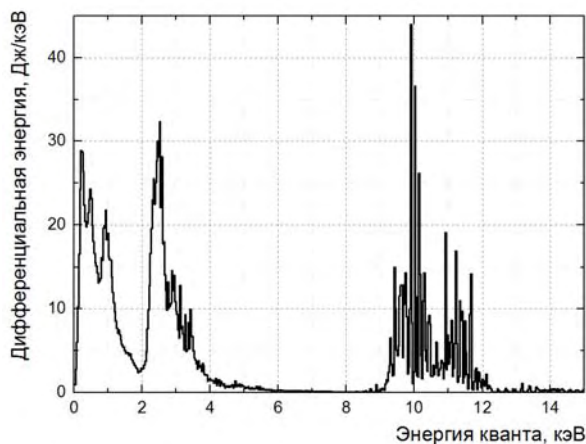


Рис. 5. Энергетический спектр рентгеновского излучения, генерируемый в мишени

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/τ , что при ширине лазерного импульса на полувысоте, равной 0,4 нс, даст $1,6 \cdot 10^{-9}$ кэВ.

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. Девозбуждение за счет неупругих столкновений ионов в плазме также не может играть сколько-нибудь заметной роли, поскольку энергия лазера поглощается в тонком, порядке долей микрона, слое мишени, и тепло не успевает проник-

нуть 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}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}Re . Это позволяет предполагать существование острого резонанса в об-мене энергией между ядром и M-электроном.

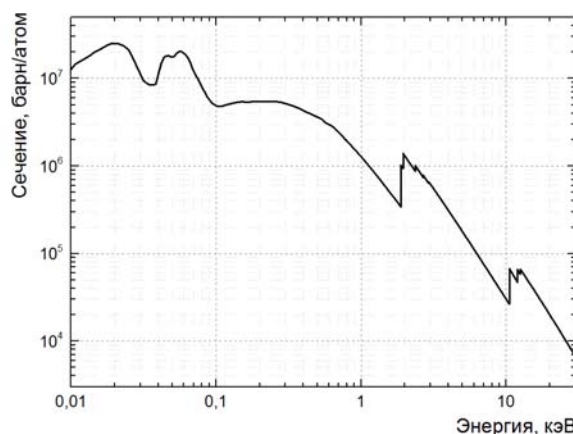


Рис. 6. Зависимость полного сечения взаимодействия фотонов с атомом рения

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 ($\sim 10^{-4}$).

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.

Список литературы

1 Ватулин В. В., Жидков Н. В., Римский-Корсаков А. А. и др. Поиск стимулированной разрядки изомерного состояния ядер ^{186m}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. 18, № 5. С. 536–537.

3 Dzyublik A. Y. 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 спектрального переноса излучения в режиме неравновесного горения в комплексе МИМОЗА (программа МИМК) // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2003. Вып. 2. С. 48–51.