

Расчетно-теоретический анализ экспериментов на лазерной установке «Искра-5» по облучению препаратов изомера ^{186m}Re

Д.Е.Ларин

Изложена постановка и результаты проведенных на установке «Искра-5» экспериментов по стимулированному де-возбуждению прямым облучением лазерным излучением высокой интенсивности изомерного состояния ядер ^{186}Re , в которых было зафиксировано нарушение радиоактивного равновесия между основным и изомерным состояниями. Проведен сравнительный анализ постановок двух серий экспериментов. Рассмотрены возможные механизмы стимулирования внутриядерных переходов с численными оценками сечений процесса. Предложена гипотеза о стимулировании указанных переходов электронами надтепловых энергий, и рассмотрены возможные постановки экспериментов по ее проверке.

Ключевые слова: изомерные состояния атомных ядер, лазерная плазма, внутриядерные переходы.

1. Введение

Метаустойчивые возбужденные состояния атомных ядер (изомерные состояния) характеризуются высокими значениями удельной энергии, запасенной в веществе, которое состоит из таких ядер, – для 12 известных изомеров с периодом полураспада, большим 10 лет, удельная энергия составляет от 5 (^{121m}Sn) до 1320 МДж/г ($^{178m2}\text{Hf}$). По энергоёмкости изомерные источники энергии могли бы занять промежуточное положение между химическими и ядерными источниками, если бы существовали способы стимулированного девозбуждения изомерных ядер с положительным балансом энергии.

Одним из способов стимулированного девозбуждения изомеров, который широко исследуется как теоретически, так и экспериментально, является девозбуждение изомера в горячей плотной плазме, в частности при облучении мишеней, содержащих изомерные ядра, лазерным излучением высокой интенсивности. Ряд авторов указывают (напр., [1]), что скорость гамма-распада вырастает на несколько порядков при нагреве изомеров до температур, сравнимых с расстояниями между ядерными уровнями энергии.

В условиях горячей плотной плазмы межуровневые переходы в ядрах ионов могут осуществляться по нескольким каналам. Помимо прямого взаимодействия с тепловым излучением плазмы, ядерные переходы могут быть стимулированы резонансными возмущениями кулоновского поля внутри иона, которые возникают при связанно-связанных (эффект NEET – nuclear excitation by electronic transition) и свободно-связанных (эффект NEEC – nuclear excitation by electronic capture) электронных переходах, инициируемых, в том числе, неупругими столкновениями с горячей электронной компонентой плазмы.

Д.Е.Ларин. ФГУП «Российский федеральный ядерный центр – ВНИИЭФ», Россия, Нижегородская обл., 607188 Саров, просп. Мира, 37; e-mail: delarin@vniief.ru

Поступила в редакцию 13 июля 2021 г.

Возбуждение ядра с изомерного на вышележащий уровень по механизму NEEC (с последующим распадом в обход долгоживущего изомерного уровня) экспериментально подтверждено в работе [2] измерениями интенсивности гамма-распада ядер ^{93m}Mo при рекомбинации содержащих эти ядра ионов.

Одним из изомеров, перспективных для создания управляемого в широком диапазоне мощностей источника энергии, является изомерное состояние ядра ^{186}Re , схема уровней которого приведена на рис. 1 [3]. Небольшая энергия перехода между метастабильным уровнем 8^+ с периодом полураспада 2×10^5 лет и короткоживущим уровнем 3^- , равная 2.7 кэВ, обуславливает привлекательность этого ядра для использования в экспериментах по вынужденному девозбуждению в лазерной плазме.

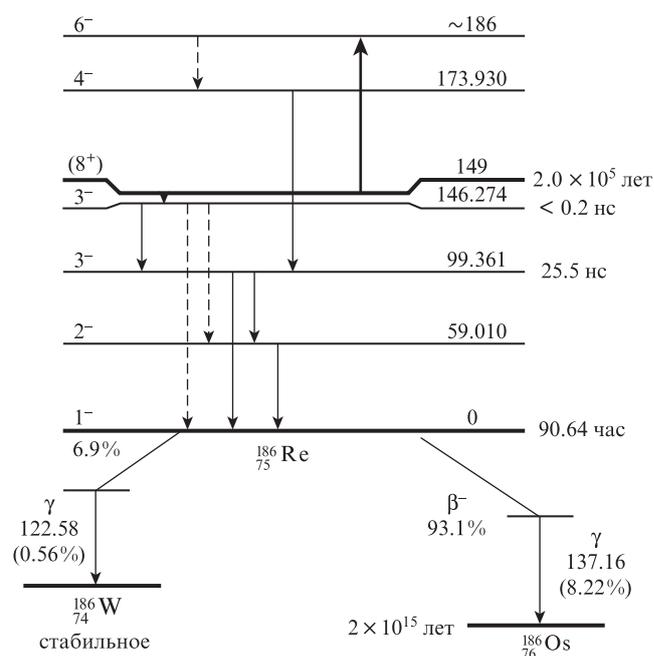


Рис. 1. Схема уровней энергии ядра ^{186}Re .

2. Совместные эксперименты Радиевого института и РФЯЦ-ВНИИЭФ

Эксперименты по вынужденному девозбуждению ядер ^{186m}Re проводились на лазерной установке «Искра-5» [4] во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» (Саров) совместно с группой исследователей Радиевого института имени В.Г.Хлопина (Санкт-Петербург) [5]. Лазерные мишени, изготовленные по технологии Радиевого института, представляли собой стальные и вольфрамовые подложки, на которые наносился либо электролитическим осаждением (для стали), либо накапыванием с последующим высушиванием (для вольфрама) перренат аммония NH_4ReO_4 ; затем мишени отжигались в атмосфере водорода. Активность каждой из мишеней составила приблизительно 0.5 Бк. Металлическая пленка рения на подложке имела толщину, варьирующуюся в пределах 1–1.5 мкм, диаметр 3 мм и достаточно неоднородное распределение.

Лазерное излучение с длиной волны 1.312 мкм (первая гармоника) направлялось непосредственно на образец, находившийся на дне дюралюминиевого сборника цилиндрической формы. Внутренние стенки сборника были выложены полиэтиленовой пленкой, на которую осаждался испаренный с мишени рений. Одно отверстие в крышке сборника служило для ввода лазерного пучка, через второе отверстие излучение лазерной плазмы попадало в камеру-обскуру с рентгеновской фотопленкой, по которой определялись размер лазерного пятна и интенсивность облучения. Осколки мишени извлекались из сборника и подвергались спектрометрическому анализу с целью установить нарушение радиоактивного равновесия между основным ^{186g}Re и возбужденным ^{186m}Re состояниями ядер рения-186. Диаметр лазерного пятна на поверхности мишени составлял 600 мкм, длительность импульса на полувысоте равнялась 0.3 нс, энергия в импульсе – 300 Дж, соответствующая интенсивность лазерного излучения на поверхности мишени – 3×10^{14} Вт/см². Флюенс рентгеновских фотонов с энергией вблизи 3 кэВ авторы [5] оценивают величиной 10^{15} см⁻²·кэВ⁻¹; другие параметры лазерной плазмы не оценивались.

Спектрометрический анализ осколков выполнялся в Радиевом институте. В результате одного из проведенных экспериментов обнаружены заметные временные колебания интенсивности гамма-линии распада состояния ^{186g}Re . Эта зависимость приведена на рис.2, погрешность приводится на уровне 1σ ; экспозиция каждого измерения составляла 12 часов.

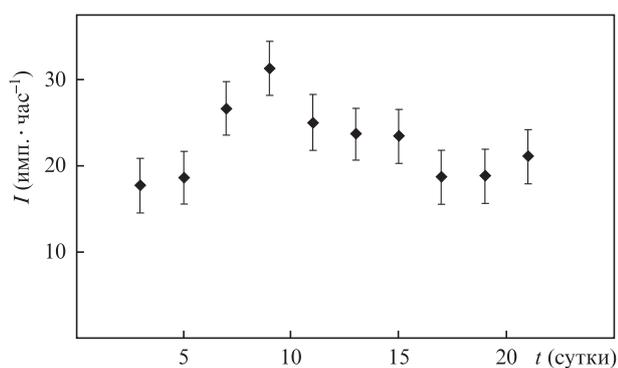


Рис.2. Зависимость интенсивности распада ^{186g}Re от времени (спектрометрические измерения Радиевого института).

По результатам проведенной серии экспериментов авторы [5] делают вывод об успешной стимуляции перехода ядра ^{186}Re из m-состояния на неизвестный уровень, лежащий ниже метастабильного и обладающий периодом полураспада около 10 суток.

3. Эксперименты РФЯЦ-ВНИИЭФ

Для уменьшения статистической погрешности полученного результата, а также из-за невозможности проведения в Радиевом институте измерений в первые двое суток после облучения, связанной с транспортировкой осколков, на установке «Искра-5» была проведена вторая серия экспериментов по стимулированному девозбуждению ядер ^{186m}Re в измененной постановке.

Мишени были изготовлены из титановых подложек толщиной 2 мм, в которых высверливались «колодцы» диаметром 1.3 мм и глубиной 1.8 мм. В колодцы накапывался раствор перрената аммония, образовавший после высушивания сплошной массив соли; активность каждой мишени составила приблизительно 30 Бк. Отжигу мишени не подвергались. Подложки с заполненными солью колодцами помещались в такой же сборник из дюралюминия, как и в первой серии экспериментов.

Результат с наиболее выраженным эффектом из всей серии описан в работе [6]. В этом опыте длительность лазерного импульса была 0.3 нс, энергия в импульсе – 270 Дж, эффективный диаметр лазерного пятна составлял или 100 мкм (в пятне сосредоточено 50% энергии лазерного излучения) или 300 мкм (в пятне 90% энергии лазера). Соответствующие интенсивности лазера равнялись 10^{16} или 1.3×10^{15} Вт/см², таким образом, интенсивность падающего лазерного излучения в наиболее яркой области пятна была на 2 порядка больше, чем в первой серии экспериментов.

Моделирование эксперимента проводилось в расчетном комплексе МИМОЗА [7] в двумерной постановке в приближении локального термодинамического равновесия и равномерного распределения лазерного пятна интенсивностью 10^{15} Вт/см². Расчет показал, что максимальные значения электронной, ионной и фотонной температур лазерной плазмы, формирующейся из изомерного препарата, в центре лазерного пятна достигают 2.0 кэВ, 150 и 100 эВ соответственно на момент времени 0.37 нс.

В процессе спектрометрических измерений осколков мишени чувствительность детектора контролировалась по интенсивностям гамма-линий загрязнений детектора, используемых, таким образом, в качестве реперов. В пределах статистической погрешности измерений отклонений от экспоненциального закона распада загрязнений не обнаружено.

На рис.3 приведена зависимость интенсивности гамма-линий распада основного состояния ^{186}Re . Погрешность приводится на уровне 1σ , экспозиция каждого измерения составляла 19 часов. Представленная экспериментальная зависимость подробно проанализирована в работе [6]; результаты анализа позволили авторам (в отличие от предположений работы [5]) выдвинуть гипотезу о переходе части ядер ^{186m}Re на уровень с энергией выше, чем у состояния ^{186m}Re . По оценке период полураспада гипотетического уровня составляет 400 ч, его энергия $E = 3.2$ кэВ относительно состояния ^{186m}Re и спин-четность – 7^+ . Доля ядер ^{186m}Re , испытавших переход $8^+ \rightarrow 7^+$ на гипотетический уровень, составила 10%, более корректная

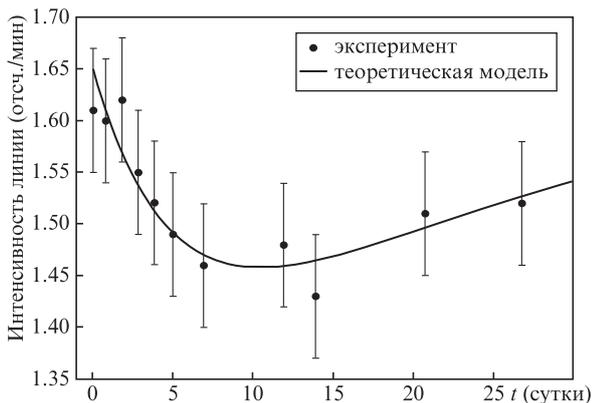


Рис.3. Экспериментально полученная и рассчитанная зависимости интенсивности распада ^{186}Re от времени (спектрометрические измерения РЯЦ-ВНИИЭФ).

обработка данных, проведенная позже, дала величину 18%. Указанные параметры были использованы для оценки сечения процесса перехода.

4. Анализ результатов экспериментов

При рассмотрении возможных механизмов стимулирования переходов в ядре ^{186}Re в первую очередь заметим, что вероятность перехода непосредственно под действием лазерного излучения, оцененная в [6] в полуклассическом приближении, ничтожно мала, порядка 10^{-21} .

Если же рассматривать стимулирование рентгеновскими квантами, то по определению сечение процесса

$$\sigma = \frac{dN}{\Phi}, \tag{1}$$

где dN – доля ядер, испытавших переход, а Φ – флюенс стимулирующих квантов. Расчетный спектр рентгеновского излучения в объеме мишени, проинтегрированный по времени существования плазмы, приведен на рис.4 [6]. Видно, что $\Phi = 15 \text{ Дж/кэВ}$ на площади, занимаемой пятном лазерного излучения, что, с учетом ширины спектральной группы 15 эВ, дает число квантов 4.7×10^{14} . Расчет спектра рентгеновского излучения проведен для интенсивности лазерного излучения 10^{15} Вт/см^2 , что соответствует его средней интенсивности в области диаметром 300 мкм. Тогда сечение перехода $8^+ \rightarrow 7^+$

$$\sigma_E = \frac{dN}{\Phi_E} = \frac{18\%}{15 \frac{\text{Дж}}{\text{кэВ}} \cdot \frac{1}{3.2 \text{ кэВ}}} \times \pi(150 \text{ мкм})^2 = 4.4 \times 10^3 \text{ барн} \cdot \text{кэВ}. \tag{2}$$

С другой стороны, согласно формуле Брейта–Вигнера сечение резонансного процесса при энергии перехода $E \gg \Gamma$

$$\sigma_E \approx \pi \left(\frac{\hbar c}{E} \right)^2 \frac{2J_f + 1}{2J_i + 1} \Gamma = 5 \times 10^{-17} \text{ барн} \cdot \text{кэВ}, \tag{3}$$

где Γ – сумма ширин уровней, а J_i и J_f – моменты начального и конечного уровней энергии, откуда следует, что сечение процесса на те же 20 порядков меньше оценок, получаемых по результатам эксперимента.

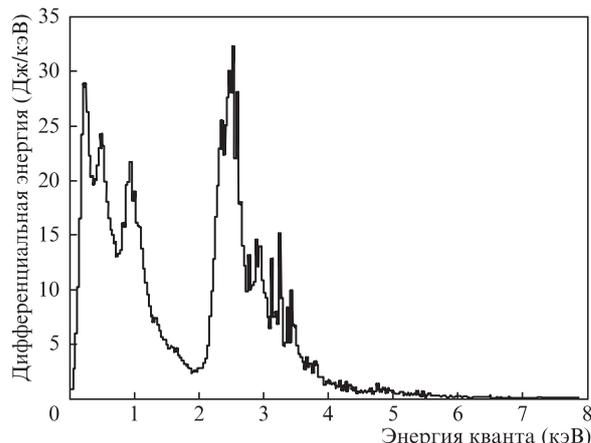


Рис.4. Спектр рентгеновских квантов, распространяющихся в глубь мишени (ширина группы 15 эВ).

Таким образом, флюенс рентгеновских квантов в линии

$$\Phi_E = \frac{15 \frac{\text{Дж}}{\text{кэВ}} \cdot \frac{1}{3.2 \text{ кэВ}}}{\pi(150 \text{ мкм})^2} \sim 10^{19} \text{ кэВ}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}. \tag{4}$$

Таким образом, заявленного в работе [5] флюенса квантов тормозного спектра с энергией вблизи 3 кэВ, равного $4 \times 10^{17} \text{ кэВ}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, недостаточно для обнаружения эффекта, который превышает статистическую погрешность измерений.

Реальная величина флюенса рентгеновского излучения может оказаться существенно ниже, поскольку модели расчетного комплекса МИМОЗА не учитывают процессы рождения и переноса электронов надтепловых энергий. Доля энергии лазерного излучения η , преобразованная в энергию горячих электронов, в случае больших интенсивностей лазерного излучения приближенно описывается следующей формулой [8]:

$$\lg \eta = 1.31 \lg \left(\frac{I \lambda^2}{10^{15}} \right) - \left\{ \left[1.31 \lg \left(\frac{I \lambda^2}{10^{15}} \right) \right]^{3/2} + 1 \right\}^{2/3}, \tag{5}$$

где I – пиковая интенсивность лазерного излучения (в 10^{14} Вт/см^2), а λ – длина волны лазера, равная 1.312 мкм (первая гармоника лазерного излучения установки «Искра-5»).

Подставив в формулу (5) соответствующие величины, получим, что доля энергии горячих электронов в общем балансе энергии равняется 30%. Для сравнения, в экспериментах первой серии, проведенных с участием Радиового института, доля горячих электронов была 7%.

Тогда оценка сечения перехода $8^+ \rightarrow 7^+$ в предположении того, что вся энергия электронов надтепловых энергий тратится резонансным образом на переход ядра, составляет

$$\sigma = \frac{dN}{\Phi_{el}} = \frac{dN S}{\eta E_{las} E^{-1}} = \frac{0.18 \pi (50 \text{ мкм})^2}{30\% \cdot 270 \text{ Дж} \cdot 90\% \cdot (3 \text{ кэВ})^{-1}} \approx 90 \text{ барн}, \tag{6}$$

где Φ_{el} – флюенс электронов; S – площадь лазерного пятна; E_{las} – энергия лазерного импульса. Подставляя в формулу (6) величины, указанные в работе [5], и долю горячих электронов, получаем $\sigma = 10^{-7} \pi (300 \text{ мкм})^2 [7\% 300 \text{ Дж} \times (3 \text{ кэВ})^{-1}]^{-1} \approx 6 \text{ мбарн}$, что на 4 порядка величины меньше, чем в (6).

В этом случае либо оценка относительного количества ядер, перешедших на гипотетический уровень, которая по результатам экспериментов Радиового института составляет 10^{-7} , сильно занижена, либо, что представляется наиболее вероятным, из-за малости толщины рениевой мишени электроны затратили на неупругие взаимодействия с ядрами ^{186m}Re лишь небольшую долю своей энергии. Более точные выводы можно сделать по результатам расчетного моделирования переноса в лазерных мишенях электронов соответствующих спектров.

5. Обсуждение результатов

Проведено сравнение результатов двух серий экспериментов в различных постановках по стимулированному девозбуждению изомера ^{186m}Re при прямом его облучении лазерным импульсом на установке «Искра-5». По результатам анализа спектроскопических измерений облученного препарата выдвинуто предположение о существенной роли горячих (обладающих надтепловыми энергиями) электронов лазерной плазмы при взаимодействиях ядра с электронной оболочкой ионов, что приводит к переходам между уровнями энергии в ядре. Получены оценки энергии лазера, затраченной на генерацию горячих электронов, флюенсов горячих электронов и верхние оценки сечения стимулированного перехода на предполагаемый уровень 7^+ в ядре ^{186}Re .

Сравнительный анализ экспериментов обеих серий показывает, что условия, развивающиеся в лазерной плазме, существенно различаются между ними по флюенсу горячих электронов. Если предположить определяющую роль горячих электронов в стимулировании внутриядерных переходов, то для переноса электронов, торможения их в веществе и процессов неупругого взаимодействия с атомами большое значение имеют геометрия и технология изготовления мишеней. В этом случае объясняются принципиальные различия между результатами, полученными в экспериментах обеих серий. Стоит отметить, что в обеих сериях экспериментов не проводились измерения ни потока, ни спектра горячих электронов. Поэтому в постановке экспериментов по проверке указанной гипотезы следует предусмотреть соответствующие системы диагностики лазерной плазмы.

Очевидный метод экспериментальной проверки предлагаемой гипотезы о влиянии электронов надтепловых энергий на внутреннее состояние атомного ядра заключается в облучении тонких мишеней, содержащих изомер ^{186m}Re , монохроматическими электронами различных энергий (например, в диапазоне 0–10 кэВ). Однако в подобном эксперименте облучаемая мишень будет находиться в конденсированном состоянии, что затруднит оценки влияния термодинамического состояния препарата на интенсивность процессов внутриядерных переходов.

Постановка эксперимента на какой-либо другой лазерной установке затруднена тем обстоятельством, что для достижения существенного эффекта требуется не только высокая интенсивность лазерного излучения I , но и большая энергия в импульсе E , поскольку приблизительно количество горячих электронов $N_{cl} \propto E \lg I$.

В этой связи представляется целесообразным проведение эксперимента по облучению препаратов изомера ^{186m}Re лазерным излучением в растворе, содержащем металлические наночастицы, аналогичного экспериментам, описанным в работе [9], в которых было установлено влияние лазерного излучения на гамма-активность ^{152}Eu . Этот изотоп сходен по структуре с ^{186}Re – нечетно-нечетное ядро, обладающее изомерным уровнем ^{152m}Eu с энергией 45.6 кэВ и временем жизни 13.434 ч, что позволяет ожидать изменения в скорости распада как g-состояния ядра ^{186}Re , так и m-состояния.

Автор выражает благодарность коллективу лазерной установки «Искра-5» и лично Н.А.Суслову за предоставленные для анализа результаты измерений систем диагностики.

1. Gosselin G., Morel P. *Phys. Rev. C: Nucl. Phys.*, **70**, 064603 (2004).
2. Chiara C.J., Carroll J.J., Carpenter M.P., et al. *Nature*, **554**, 216 (2018).
3. Baglin C.M. *Nucl. Data Sheets*, **99**, 1 (2003).
4. Анненков В.И., Багрецов В.А., Безуглов В.Г. и др. *Квантовая электроника*, **18** (5), 536 (1991) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **21** (5), 487 (1991)].
5. Ватулин В.В., Жидков Н.В., Римский-Корсаков А.А. и др. *Изв. РАН. Сер. Физич.*, **81** (10), 401 (2017).
6. Есьман А.А., Куликов М.А., Ларин Д.Е. и др. *Вопросы атомной науки и техники. Сер. Теоретическая и прикладная физика*, вып. 4, 43 (2017).
7. Моренко Л.З., Рябикина Н.А., Кибкало А.А. *Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов*, вып. 2, 48 (2003).
8. Getomer S.J., Jones R.D., Begay F., et al. *Phys. Fluids*, **29** (8), 2679 (1986).
9. Бармина Е.В., Симакин А.В., Стегайлов В.И. и др. *Квантовая электроника*, **49** (8), 784 (2019) [*Quantum Electron.*, **49** (8), 784 (2019)].