

# НАРУШЕНИЕ РАДИОАКТИВНОГО РАВНОВЕСИЯ МЕЖДУ ИЗОМЕРАМИ ЯДРА $^{186}\text{Re}$ В УСЛОВИЯХ ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ УСТАНОВКИ «ИСКРА-5»

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

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

Для определения возраста Вселенной, и земной коры в частности, широко применяется радиометрический метод датировки, основанный на измерении соотношения между материнским радиоактивным изотопом и продуктами его распада. Некоторые исследователи подвергают сомнению точность данного метода (например, [1]), вводя в уравнения кинетики радиоизотопных часов поправки на кинетику распада возбуждённых состояний атомных ядер, образующихся в процессе нуклеосинтеза, что уменьшает оценки возраста космических тел. Для исследования нуклеосинтеза и роли в этом процессе изомеров атомных ядер предлагается [2, 3] использовать установку NIF, при помощи которой возможно моделирование условий недр звёзд (температура, давление, потоки нейтронов).

В этой связи с целью выяснения поведения изомеров в условиях горячей плотной плазмы на установке «Искра-5» [4] нами была проведена серия из четырёх экспериментов по прямому воздействию пучка лазерного излучения на препарат изомера  $^{186m}\text{Re}$ ; схема уровней изотопа  $^{186}\text{Re}$  приведена на рисунке 1.

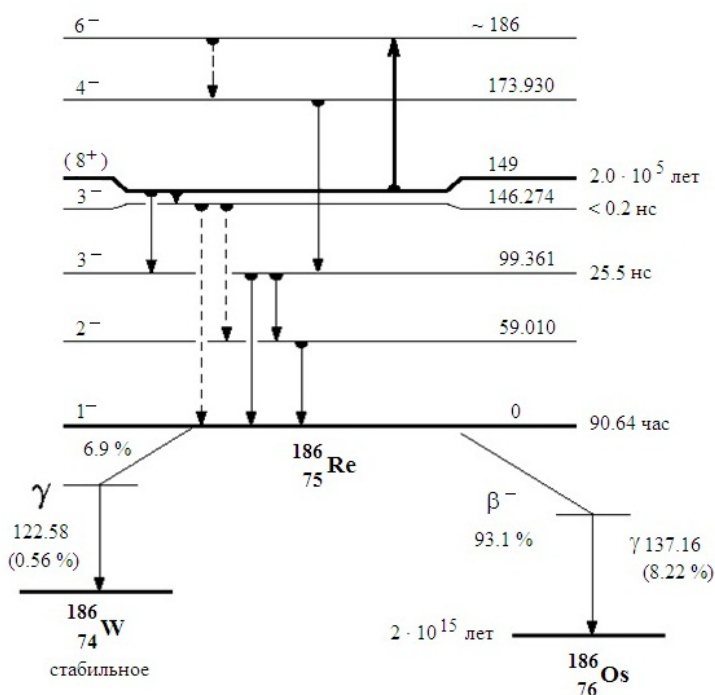


Рисунок 1 – Энергетическая структура ядра  $^{186}\text{Re}$

Как видно из представленной схемы, изотоп  $^{186}\text{Re}$  состоит из смеси двух изомерных состояний: нестабильного по бета-распаду  $^{186g}\text{Re}$  с периодом полураспада 90,64 ч, испускающего главным образом гамма-линию с энергией 137 кэВ, и метастабильного возбуждённого состояния с периодом полураспада  $2 \cdot 10^5$  лет, испускающего в результате каскада промежуточных распадов несколько гамма-линий, наиболее яркие из которых обладают энергией 40 и 59 кэВ.

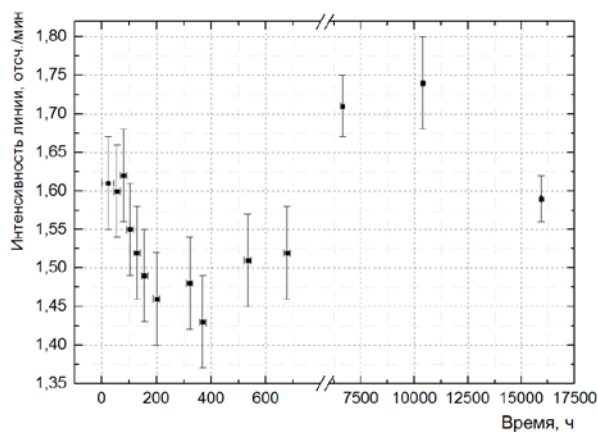
Для изготовления мишеней использовался препарат рения, полученный в лабораториях Радиевого института. Исходный препарат представляет собой сухую соль перрената аммония ( $\text{NH}_4\text{ReO}_4$ ). На 1 мг чистого рения распределение по числу ядер различных изотопов оказалось следующим:

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

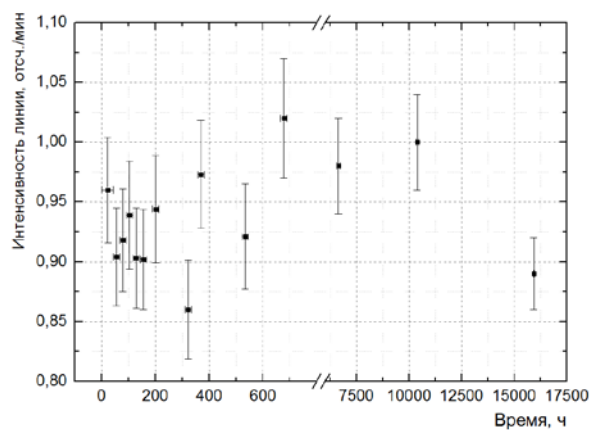
Всего было изготовлено четыре мишени, содержащие изотоп  $^{186m}\text{Re}$  в количестве  $\sim 10^{14}$  ядер каждая, получившие номера 57-60.

Параметры лазерного импульса, падающего на мишень, составили: длина волны 1,315 мкм, энергия 300 Дж, длительность 0,4 нс, радиус пучка 300 мкм. После облучения проводились спектрометрические измерения фрагментов мишеней, осевших на поверхности полиэтиленового сборника. При этом мишень №60 обмерялась на двух различных спектрометрах с разными детекторами.

Приведём результаты экспериментов в хронологическом порядке. На рисунке 2 представлены результаты обработки гамма-спектров, снятых с мишени №59, погрешность площади фотопиков приведена на уровне  $1\sigma$ . Планками погрешностей по абсциссе обозначен временной интервал измерения.



а



б

а – линия распада основного состояния  $^{186g}\text{Re}$  (137 кэВ);

б – линия распада возбуждённого состояния  $^{186m}\text{Re}$  (40 кэВ)

Рисунок 2 – Зависимости интенсивности гамма-линий от времени (мишень №59)

Как видно из графика, наблюдается выраженное изменение интенсивности распада со временем, что указывает на нарушение радиоактивного равновесия в облучённом препарате.

Явный провал на графике 2а позволяет выдвинуть следующую гипотезу:

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

– время жизни ядра на этом гипотетическом уровне больше, чем в основном состоянии, что нарушает радиоактивное равновесие, поскольку быстрораспадающееся основное состояние не получает «подпитки» из известного возбуждённого состояния – иными словами, происходит задержка распада состояния  $^{186g}\text{Re}$ .

Положим также, что отклонение числа ядер, заселяющих возбуждённое состояние, полностью обусловлено переходом последних на гипотетический уровень. Введение более сложных схем распада обусловит появление большого числа свободных параметров, что значительно усилит произвол в описании экспериментальных данных.

Система дифференциальных уравнений, описывающих заселённость уровней, в указанных предположениях будет иметь простой 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;

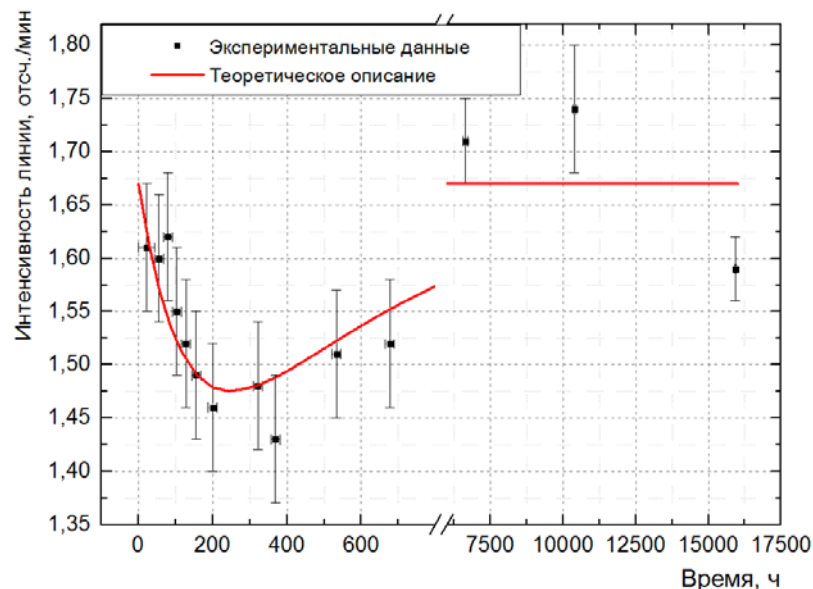
$\lambda$  – постоянная распада ядра на соответствующем уровне.

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

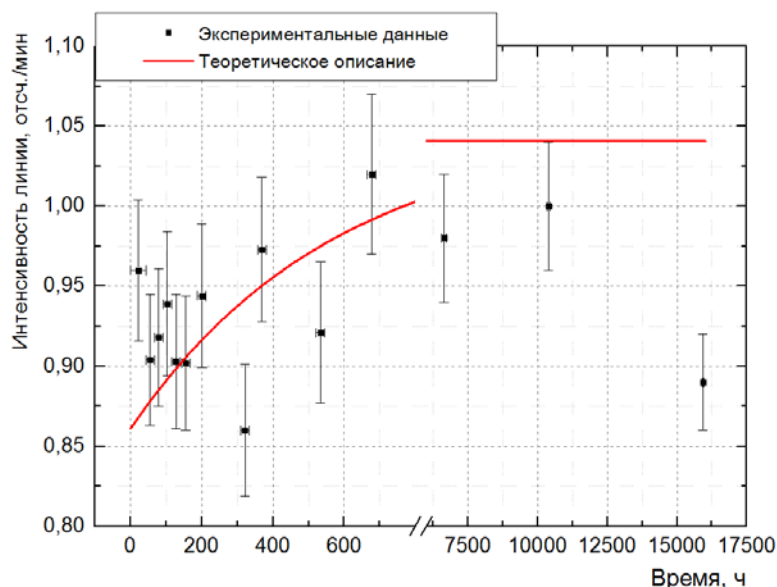
$$\begin{cases} x(t) = \frac{z_0 \lambda_y \lambda_z}{\lambda_z - \lambda_y} \cdot \left( \frac{e^{-\lambda_x t} - e^{-\lambda_y t}}{\lambda_y - \lambda_x} - \frac{e^{-\lambda_x t} - e^{-\lambda_z t}}{\lambda_z - \lambda_x} \right) + \frac{y_0 \lambda_y}{\lambda_y - \lambda_z} \cdot (e^{-\lambda_x t}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

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:  $z_0 = 0,18$ ,  $\lambda_z = 4,81 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$ , что соответствует периоду полураспада 400 часов. Сравнение теоретического описания с экспериментальными точками приведено на рисунке 3.



а



б

а – линия распада основного состояния  $^{186g}\text{Re}$  (137 кэВ);

б – линия распада возбуждённого состояния  $^{186m}\text{Re}$  (40 кэВ)

Рисунок 3 – Зависимости интенсивности гамма-линий от времени (мишень №59)

Как видно из графиков, предлагаемая теоретическая модель хорошо описывает экспериментальные результаты, полученные облучением лазерным импульсом мишени №59. Поделив глубину «ямы» на графике 3а на максимальное значение интенсивности линии, получим 12% при наибольшей статистической ошибке, равной 4%.

Результаты эксперимента с облучением мишени №57 не приводятся ввиду постоянства в пределах статистической погрешности измерений интенсивностей гамма-линий как основного, так и возбуждённого состояний<sup>1</sup>.

На рисунке 4 представлены результаты зависимости интенсивности линии рения 137 кэВ, полученные спектрометрией осколков мишени №58.

<sup>1</sup> При визуальном осмотре в центральной зоне мишени обнаружилось отверстие, которое образовалось в результате воздействия лазерного импульса и через которое могла вылететь облучённая часть мишени.

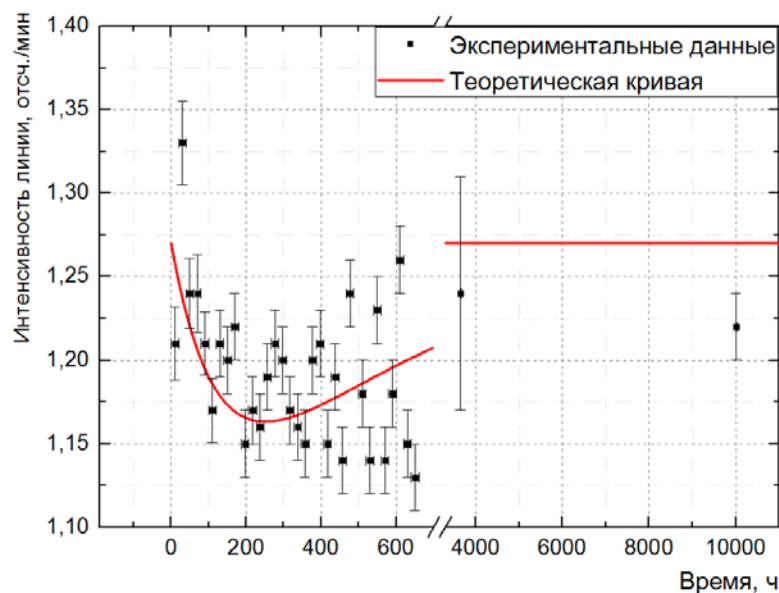
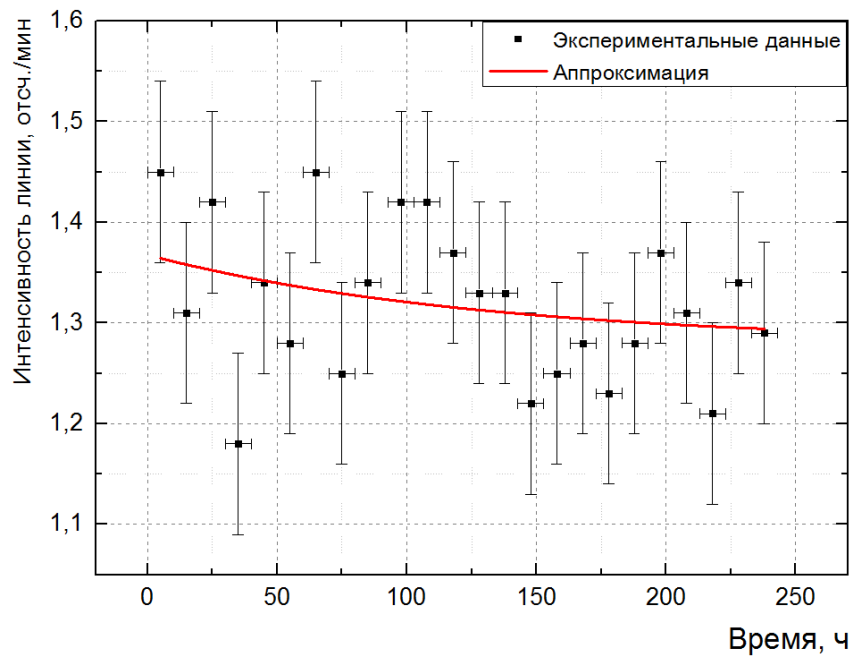


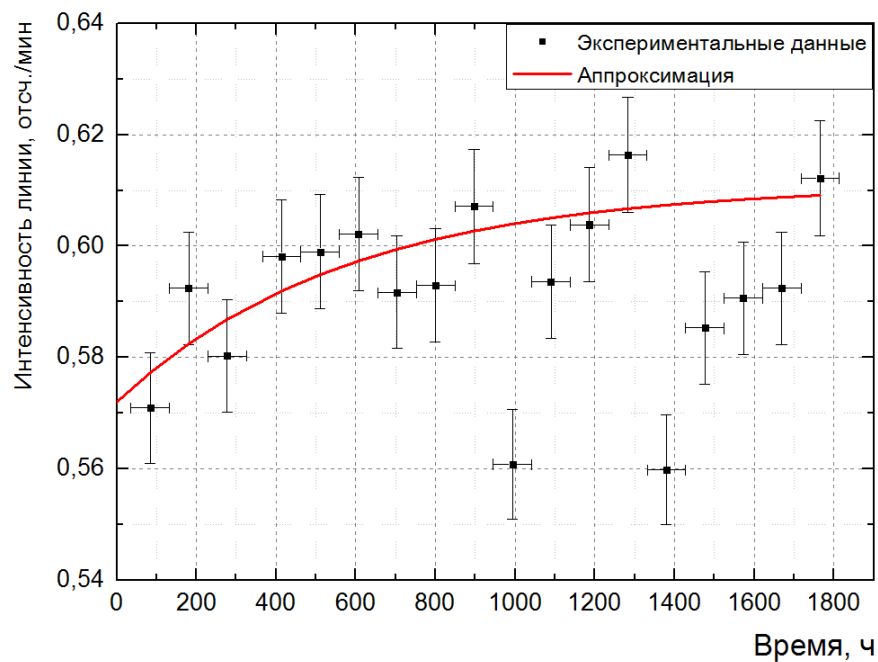
Рисунок 4 – Зависимость интенсивности гамма-линии  $^{186g}\text{Re}$  от времени (мишень №58)

Как видно, предлагаемая трёхуровневая модель неупругих процессов, происходящих в ядре  $^{186}\text{Re}$  под воздействием лазерного импульса, качественно описывает результаты опыта с мишенью №58, однако численное описание менее точно, нежели в случае мишени №59. Относительное количество ядер, испытавших переход на гипотетический уровень, было оценено величиной  $z_0 = 0,13$ ; относительная величина эффекта, вычисленная по интенсивности линии распада основного состояния аналогично случаю мишени №59, составила те же 12% при максимуме статистической погрешности 6%.

На рисунке 5 приводятся результаты спектрометрических измерений мишени №60 двумя различными спектрометрами (для краткости назовём их «Детектор-1» и «Детектор-2») на протяжении различных периодов времени.



а



б

а – измерения «Детектором-1»; б – измерения «Детектором-2»  
 Рисунок 5 – Зависимости интенсивности гамма-линии  $^{186g}\text{Re}$  от времени (мишень №60)

Результаты, полученные на «Детекторе-1», были аппроксимированы формулой

$$I(t) = a + b \cdot 2^{-t/90,64 \text{ ч}},$$

где 90,64 ч – период полураспада  $^{186g}\text{Re}$ . Иными словами, предполагается, что на промежутке времени от момента лазерного выстрела до минимума активности,

составляющего приблизительно 240 часов, основное влияние на интенсивность линии оказывает собственный распад. Параметры аппроксимации равны

$$a = 1,28 \text{ отсч./мин.}, b = 0,088 \text{ отсч./мин.}$$

Величина наблюдаемого эффекта, таким образом, составит приближённо 6%, что меньше средней статистической погрешности измерений.

Иная ситуация с результатами, полученными на «Детекторе-2». В силу низкой интенсивности линии распада основного состояния  $^{186}\text{Re}$  относительно чувствительности спектрометра и, соответственно, плохой статистики, одна экспериментальная точка этим спектрометром снималась в течение 4 суток по живому времени детектора. В итоге оказалась фактически утраченной информация о поведении интенсивности распада  $^{186g}\text{Re}$  в течение первых 300 часов после опыта, где лежит предполагаемый спад интенсивности. Поэтому результаты были аппроксимированы в предположении, что поведение интенсивности линии определяется, наоборот, только подпиткой распадающегося гипотетического уровня:

$$I(t) = a - b \cdot 2^{-t/400 \text{ ч}},$$

$$a = 0,611 \text{ отсч./мин.}, b = 0,039 \text{ отсч./мин.},$$

и величина наблюдаемого эффекта составит те же 6% при величине статистической ошибки не более 3%. 12 из 18 точек (67%) попадают на аппроксимирующую кривую в пределах коридора  $1\sigma$ .

Таким образом, результаты 3-х экспериментов из 4-х согласуются между собой; относительная величина наблюдаемого эффекта превышает статистическую ошибку спектрометрических измерений в 2-3 раза. Поэтому можно утверждать, что эксперименты показывают задержку распада части ядер  $^{186}\text{Re}$  под воздействием лазерного импульса; в нашей трактовке это обусловлено переходом части ядер в состояние с периодом полураспада 400 часов, лежащее выше метастабильного уровня  $^{186m}\text{Re}$ .

Вычислим параметры гипотетического уровня энергии. Момент гипотетического уровня оценим по однонуклонной модели Вайскопфа; согласно ей, время жизни ядра  $\tau_l$  в возбуждённом 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:

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

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

Отсюда энергия перехода  $E$  будет равна

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

Радиус ядра  $^{186}\text{Re}$  есть

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

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

Распад состояния  $^{186m}\text{Re}$  (обозначенного нами в системе уравнений кинетики внутриядерных переходов как  $y$ ), обладающего чётностью и моментом  $8^+$ , протекает через промежуточное состояние  $3^-$ ; изменение момента равно нечётному числу, переход сопровождается изменением чётности 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:

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

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

Таблица – Возможные значения энергии распада гипотетического уровня, кэВ

Изменение 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 таблицы, 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; линия же с энергией около 3 кэВ, наоборот, стандартным гамма-спектрометром не регистрируется. В таком случае радиационный переход не будет сопровождаться изменением чётности, то есть уровень  $z$  есть  $7^+$ -состояние.

Оценим вероятность перехода изомера воздействием рентгеновского излучения, развивающегося в плазме установки «Искра-5», по формуле [5], 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 возбуждённого 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 возбуждённых уровнях:

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

Статистический коэффициент перехода 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 расчётом методом Монте-Карло в одномерной постановке задачи [6]; энергетический спектр рентгеновского излучения, генерируемый при облучении мишени и проинтегрированный по времени лазерного воздействия на мишень, приведён на рисунке 6. Согласно тому же расчёту, давление, электронная температура и плотность в плазме достигают значений 4 Мбар, 2,5 кэВ и 9 г/см<sup>3</sup> соответственно.

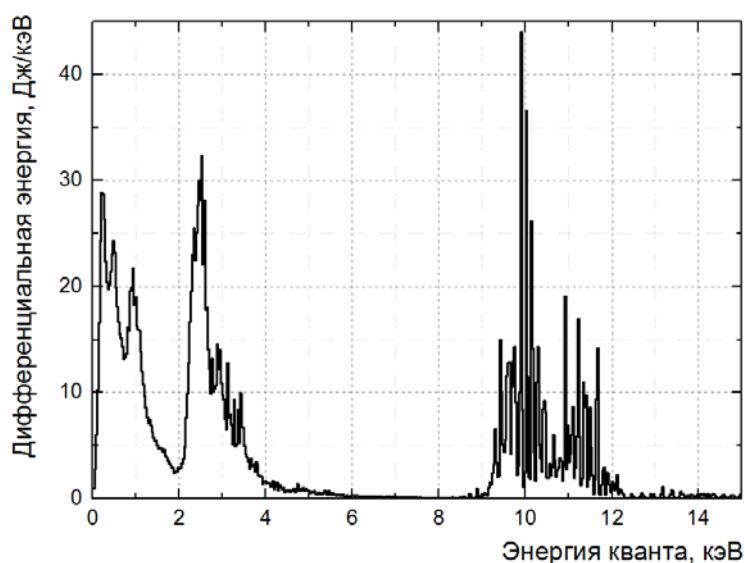


Рисунок 6 – Энергетический спектр рентгеновского излучения, генерируемый в мишени

Как видно из расчёта, 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.

Подставляя в формулу все оценённые величины и деля на площадь сечения лазерного пучка 0,3 мм<sup>2</sup>, получаем, что за время существования горячей плазмы, составляющего по расчёту приблизительно 1,5 нс, переход испытают порядка  $10^{-21}$  ядер.

Таким образом, излучательный механизм внутриядерных переходов совершенно несуществен. Девозбуждение за счёт 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 проникнуть в глубину до разрушения мишени развивающейся ударной волной.

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

## ЛИТЕРАТУРА

1 Olkhovsky V.S., Grantsev V.I. Is it essential for nuclear chronometry to consider the decay of the excited radioactive nuclei? *Atti dell'Accademia Peloritana dei Pericolanti, Sci. Fis., Mat. eNat.*, v. 57, Messina. 1999.

2 L.A. Bernstein. Reactions on Excited States using the National Ignition Facility. Nuclear Astrophysics using NIF, 28 Aug 2007, LLNL. UCRL PRES-233342.

3 L.A. Bernstein. Low-energy neutrons and the prospects for neutron capture nucleosynthesis measurements using NIF. NIF Users Group Meetings, 15 Feb 2012, LLNL. LLNL-PRES-530513.

4 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.

5 Dzyublik A.Ya.. Triggering of nuclear isomers by x-ray laser. // *Pis'ma v ZhETF*, vol.92, iss.3, pp.152-156.

6 Моренко Л.З., Рябикина Н.А., Кибкало А.А. Моделирование методом Монте-Карло спектрального 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.