

МАТЕРИАЛЫ И ТЕХНОЛОГИЯ
ДЛЯ НОВЫХ ИСТОЧНИКОВ ЭНЕРГИИ

УДК 539.17

О ВОЗМОЖНОСТИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО СРАВНЕНИЯ
ИЗОМЕРНОГО ОТНОШЕНИЯ ДЛЯ ЯДЕР ^{186}Re ПРИ РАДИАЦИОННОМ
ЗАХВАТЕ РЕАКТОРНЫХ ТЕПЛОВЫХ И НАДТЕПЛОВЫХ
НЕЙТРОНОВ ПРИРОДНЫМ РЕЕНИЕМ

© 2025 г. Ю. В. Волчихина^а, Д. М. Гордеева^а, А. А. Зырянова^а,
В. В. Кольцов^{б, *}, И. М. Русских^а, В. А. Яковлев^б

^аАО “Институт реакторных материалов”, Заречный, Свердловская обл., 624250 Россия

^бАО “Радиевый институт им. В.Г. Хлопина”, Санкт-Петербург, 194021 Россия

*E-mail: vladimir-koltsov@yandex.ru

Поступила в редакцию 13.02.2024 г.

После доработки 13.02.2024 г.

Принята к публикации 27.02.2024 г.

Перспектива создания аккумулятора энергии на основе ядерного изомера ^{186m}Re (период полураспада $2 \cdot 10^5$ лет) делает актуальным вопрос о выборе условий облучения реакторными нейтронами природного рения для наработки больших количеств изомера. Известные в литературе расчеты зависимости изомерного отношения при образовании ядер ^{186}Re в основном и изомерном состоянии показывают несущественное различие в эффективности наработки изомера термализованными нейтронами или в активной зоне реактора. Этот вывод ранее был подтвержден экспериментально с точностью до 20%. В настоящей работе предлагается методика более точной экспериментальной проверки результатов расчета изомерного отношения.

Ключевые слова: ядерные изомеры, изомерное отношение, наработка ядерных изомеров, реакторный спектр нейтронов

DOI: 10.56304/S2079562924060460

ВВЕДЕНИЕ

Перспектива создания аккумулятора энергии на основе ядерного изомера ^{186m}Re делает актуальным вопрос о эффективности наработки изомера в зависимости от спектра нейтронов на образце природного рения в реакторе [1]. Период полураспада изомера $T_{1/2} = 2 \cdot 10^5$ лет, спин-четность изомерного и основного состояния ядра ^{186}Re равны 8^+ и 1^- соответственно. Принцип работы предполагаемого аккумулятора следующий. Приготавливается рабочее вещество, содержащее изомерные ядра ^{186m}Re , которое может храниться неограниченно долго. При необходимости использования энергии стимулируется девозбуждение изомера путем его помещения в плазму с электронной температурой порядка 1 кэВ.

Для разработки аккумулятора необходимо в реакторе наработать большую массу изомера ^{186m}Re , более ~ 100 г, с последующим выделением изомера из облученного материала методом газоцентрифужного разделения изотопов [1]. И тут возникает вопрос — нужны ли для наработки изомера быстрые нейтроны или достаточно тепловых

нейтронов? Ведь все-таки изомер ^{186m}Re имеет относительно высокий спин, а для внесения большого спина в ядро желательны именно быстрые нейтроны. В настоящей работе анализируется этот вопрос.

В проводившихся ранее реакторных облучениях использовались образцы из природного рения ($^{185}\text{Re} - 37\%$, $^{187}\text{Re} - 50\%$). Впервые изомер был получен на водо-водяном реакторе Savannah River Facility (USA) в 1972 г. при облучении нейтронами металлического порошка рения [2]. В предположении образования изомера по реакции (n, γ) сечение образования изомера $\sigma_m(n, \gamma) \approx 300$ мбн. В 2007 г. Радиевый институт им. В.Г. Хлопина облучил порошок металлического природного рения на водо-водяном реакторе ВВР-М в Петербургском Институте ядерной физики им. Б.П. Константинова (г. Гатчина) [1]. Облучали одновременно два образца по 1 г рения в канале тепловых нейтронов и в более жестком спектре внутри активной зоны реактора. Получили приблизительно такое же сечение, как и в работе [2], а также выяснили, что в основном изомер ^{186m}Re образуется в реакции (n, γ) на тепловых нейтронах, поскольку отличие в наработке

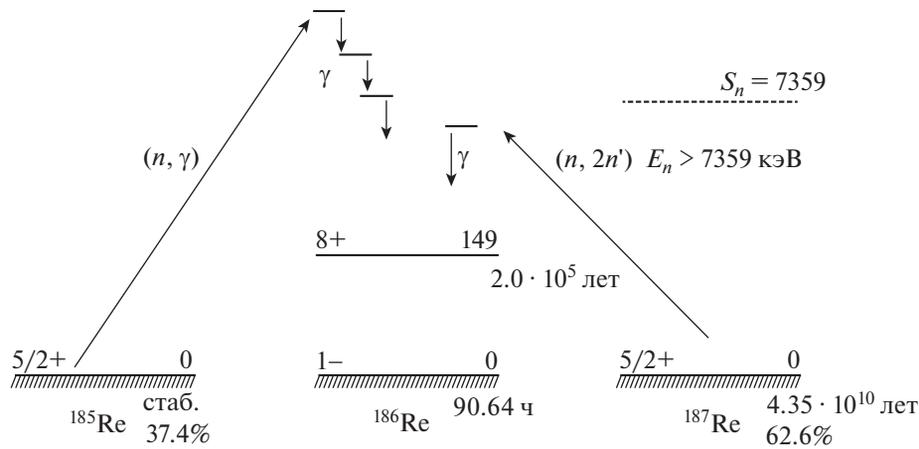


Рис. 1. Варианты наработки в реакторе изомера ^{186m}Re ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^5$ лет).

изомера для двух образцов было не более 20%. Однако до начала наработки изомера ^{186m}Re в больших количествах точность таких измерений желательна повысить.

1. НАРАБОТКА ИЗОМЕРА ^{186m}Re В РЕАКТОРЕ

На рис. 1 представлены возможные варианты наработки изомера ^{186m}Re при облучении нейтронами природного рения в реакторе, характеристики ядерных уровней изотопов рения из работы [3]. Во-первых надо отметить, что вклад неупругого рассеяния нейтронов на ядрах ^{186}Re малый, поскольку в реакторе мало ядер ^{186}Re в основном состоянии, их период полураспада $T_{1/2} = 90$ ч. Во вторых, ранее из рассмотрения аналогичных хорошо изученных случаев образования изомеров в других ядрах было получено ограничение на интегральное сечение образования изомера в реакции $(n, 2n)$, менее 10 мбн [1]. Тогда с учетом экспериментального значения интегрального сечения образование изомера ^{186m}Re $\sigma_m \approx 300$ мбн получается, что основная реакция образования изомера ^{186m}Re — это реакция захвата тепловых нейтронов (n, γ) изотопом ^{185}Re .

Поскольку полное сечение (n, γ) реакции нейтронного захвата тепловых нейтронов ядрам ^{185}Re равно $\sigma_{n, \gamma} = 112$ бн [4], то экспериментальное интегральное изомерное отношение равно $J_m = \sigma_m / \sigma_{n, \gamma} \approx 2.7 \cdot 10^{-3}$ и зависит не более чем на 20% от спектра нейтронов в реакторе.

С этим выводом согласуются расчеты Чедвика и Янга в 1992 г. на основе модели Хаузера и Фешбаха для изомерного отношения $J_m(E)$ для нескольких изомеров в зависимости от энергии нейтронов E от тепловых нейтронов до нейтронов энергии 10 МэВ [5]. Для реакции (n, γ) на ^{185}Re на тепловых нейтронах они получили $J_m = \sigma_m / \sigma_{n, \gamma} \approx$

$\approx 2 \cdot 10^{-3}$. Согласно [5] в области энергии нейтронов менее 10 кэВ изомерное отношение меняется не более чем на 20% и поэтому для эффективной наработки изомера ^{186m}Re необязательно облучать рений нейтронами жесткого спектра активной зоны реактора, а можно использовать и термализованные нейтроны. Однако ввиду большой стоимости наработки больших количеств изомера ^{186m}Re необходимо предварительно дополнительно экспериментально проверить сами расчеты [5].

Правильность расчетной модели [5] подтверждается соответствием результатов расчета изомерных отношений с нейтронными реакциями для других ядер, например для еще более высоко-спинового изомера $^{178m2}\text{Hf}$ ($T_{1/2} = 31$ год), согласно которым изомерное отношение для захвата тепловых нейтронов ^{177}Hf равно $J_m = 2.3 \cdot 10^{-11}$, а для реакции $(n, 2n)$ на ^{179}Hf изомерное отношение $J_m = 1.2 \cdot 10^{-4}$. С учетом спектра нейтронов в реакторе это означает, что при облучении природного гафния в реакторе изомер $^{178m2}\text{Hf}$ образуется в основном в реакциях $(n, 2n)$. Этот вывод из расчетов [5] подтверждаются нашими результатами [6] по наработке изомера $^{178m2}\text{Hf}$ в металлической пластине природного Hf ($^{176}\text{Hf} - 5.2\%$, $^{177}\text{Hf} - 18.6\%$, $^{178}\text{Hf} - 27.3\%$, $^{179}\text{Hf} - 13.6\%$, $^{180}\text{Hf} - 35.1\%$) с примесью моноизотопа ^{93}Nb при облучении в водородном реакторе РБТ-6 Института атомных реакторов (ГНЦ НИИАР, г. Димитровград), флюенс нейтронов был около 10^{22} нейтронов/см². В той работе мы экспериментально выяснили, что в отличие от изомера ^{186m}Re изомер $^{178m2}\text{Hf}$ нарабатывается в основном в $(n, 2n)$ реакции. В спектре хорошо видны γ -линии 702 и 871 кэВ наработанного в образце ^{94}Nb , его период полураспада $T_{1/2} = 2 \cdot 10^4$ лет. ^{94}Nb может служить удобным монитором флюенса нейтронов при длительных облучениях.

2. МЕТОДИКА ПРОВЕРКИ ИЗОМЕРНОГО ОТНОШЕНИЯ ПРИ НАРАБОТКЕ ^{186m}Re

Для более надежной проверки результатов расчетов [5] изомерного отношения ^{186m}Re мы рассмотрели возможность измерения зависимости интегральных изомерных отношений от спектра нейтронов при наработке в реакторе изомера в специальном образце рения и возможность сопоставления экспериментальных результатов с оценкой на основе расчета изомерных отношений [5]. Разработанный нами образец состоит из шести сложенных стопкой металлических фольг природного рения толщиной по 0.1 мм; из Ре-фольги толщиной 0.1 мм в плоском Cd-пенале с толщиной стенки 1 мм. Для контроля флюенса нейтронов по образцу используются мониторы из Nb-фольги толщиной 50 мкм размером 1×1 мм.

Мы рассчитали изменение изомерного отношения δJ_m в нескольких точках образца при его облучении в водо-водяном реакторе ИВВ-2М Института реакторных материалов (г. Заречный Свердловской области), где предполагается проведение облучения образца. Интегральное изомерное отношение J_m определяли по формуле

$$J_m = \frac{\int_0^{\infty} J_m(E) \sigma_{n,\gamma}(E) \Phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \sigma_{n,\gamma}(E) \Phi(E) dE}, \quad (1)$$

где $\Phi(E) dE$ – флюенс нейтронов в интервале энергий dE . Изменение изомерного отношения $\delta J_{m,i}$ в i -й точке образца определяли по формуле

$$\delta J_{m,i} = \frac{J_{m,i} - J_{m,\text{пов}}}{J_{m,\text{пов}}}, \quad (2)$$

где $J_{m,i}$ и $J_{m,\text{пов}}$ – изомерные отношения в i -й точке образца и на поверхности образца.

В расчетах изомерных отношений спектр нейтронов на поверхности образца определяли с помощью программного комплекса MCU-PTR [7]. Программный комплекс MCU-PTR предназначен для моделирования процессов переноса нейтронов, фотонов, электронов и позитронов методом Монте-Карло на основе оцененных ядерных данных в системах с трехмерной геометрией с учетом изменения нуклидного состава материалов при взаимодействии с нейтронами. Для всех вышеперечисленных частиц решается неоднородное уравнение переноса частиц, а для нейтронов программа позволяет решать также однородное уравнение. Математически это означает, что для рассматриваемой системы решается кинетическое уравнение с заданными граничными условиями, описывающее распределение в ней потока частиц. При этом регистрируются эффективный коэффициент размножения нейтронов, распреде-

ление энерговыделения по тепловыделяющим сборкам и отдельным тепловыделяющим элементам, эффективная доля запаздывающих нейтронов, потоки частиц и другие функционалы. Программный комплекс MCU-PTR может работать в статическом или в динамическом режимах. В статическом режиме рассчитываются характеристики реактора при заданном нуклидном составе его материалов. В динамическом режиме учитывается изменение нуклидного состава, и те же характеристики рассчитываются в зависимости от времени работы реактора. Для расчета изменения нуклидного состава материалов реактора применяется модуль выгорания BURNUP, в котором реализована итерационная схема расчета (предиктор-корректор) для учета зависимости сечений от времени. Это позволяет использовать сравнительно большие размеры шагов и тем самым сократить общее время работы программы. Все необходимые для расчета характеристики выгорающей ядер собраны в библиотеке BURN, содержащей данные для примерно 1100 нуклидов.

Спектр нейтронов в различных частях образца рассчитывали аналитическим методом, при котором изменение потока и спектра нейтронов получали только при учете поглощения нейтронов в образце без учета рассеяния нейтронов. При расчете накопления ядер использовали расчетную зависимость Чедвика и Янга [5] для изомерного отношения $J_m(E)$ от энергии нейтронов при (n, γ) реакции на ядре ^{185}Re и нейтронные сечения из библиотеки ENDF-8 [4].

Результаты расчета для потоков нейтронов на поверхности образца и в двух внутренних точках, а также изменение изомерного отношения для этих внутренних точек образца показаны в табл. 1. Для потока нейтронов различной энергии использованы относительные единицы. Для удобства сравнения в таблице поток нейтронов энергии более 0.1 МэВ принят за 100%, поскольку нейтроны с такой энергией практически не взаимодействуют с тонким рениевым образцом. Погрешность оценки δJ_m не более 10% и в основном определяется средней погрешностью используемых сечений. Из табл. 1 видно, что расчетные интегральные изомерные отношения слабо зависят от спектра нейтронов, хотя в различных точках образца изменяются более чем на 1%.

3. ВОЗМОЖНОСТЬ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ПРОВЕРКИ РАСЧЕТА ИНТЕГРАЛЬНЫХ ИЗОМЕРНЫХ ОТНОШЕНИЙ

Расчетная величина изменения по образцу изомерных отношений δJ_m достаточно большая и может быть проверена экспериментально изменением распределения активности радионуклидов по образцу. Методика такой проверки следу-

Таблица 1. Спектр нейтронов в относительных единицах и изменение интегрального изомерного отношения δJ_m по формуле (2) в различных точках образца рения. Во всех точках образца поток нейтронов в диапазоне энергий $E_n > 0.1$ МэВ принят за 100% для удобства сравнения

Диапазон энергии нейтронов E	Поток нейтронов, отн. ед.		
	на поверхности образца	внутри Cd-пенала	внутри слоя Re
$0.5 \text{ эВ} > E > 0 \text{ эВ}$	149	0.23	113
$0.1 \text{ МэВ} > E > 0.5 \text{ эВ}$	45.9	43.3	39.3
$E > 0.1 \text{ МэВ}$	100	100	100
Изменение интегрального изомерного отношения			
δJ_m	0	3.9%	0.9%

ющая. 1) Рассмотренный выше образец рения облучается в реакторе нейтронами. Для простоты последующего анализа флюенс нейтронов лучше выбрать небольшим, чтобы не нужно было учитывать выгорание компонент образца в процессе облучения. 2) Рассчитываются энергетические спектры нейтронов в местах расположения Nb-мониторов. 3) Измеряются γ -спектры Nb-мониторов и по интенсивности γ -линий 702 и 871 кэВ измеряется активность наработанного в мониторах ^{94}Nb . 4) По измеренной активности ^{94}Nb в мониторах и рассчитанным энергетическим спектрам нейтронов в местах расположения мониторов калибруется распределение флюенса нейтронов $\Phi(E)$ по энергии E . 5) Исходя из этого распределения флюенса и известных сечений (n, γ) реакции на ядрах ^{185}Re в пробах рения определяется число $N_{\text{Re-186}}$ образовавшихся ядер ^{186}Re в основном состоянии за все время облучения образца

$$N_{\text{Re-186}} = N_{\text{Re-185}} \int_0^{\infty} \sigma_{n,\gamma}(E) \Phi(E) dE, \quad (3)$$

где $N_{\text{Re-185}}$ — число ядер ^{185}Re в пробах рения. После этого измеряются спектры γ -квантов от проб рения — кусочков Re фольг одинакового размера в местах расположения Nb-мониторов. По интенсивности основной γ -линии изомера ^{186m}Re 137 кэВ в этих γ -спектрах определяется число $N_{\text{Re-186m}}$ изомерных ядер в пробах. Затем вычисляются изомерные отношения $J_m = N_{\text{Re-186m}}/N_{\text{Re-186}}$ в местах расположения Nb-мониторов. Затем согласно формуле (2) вычисляются изменения изомерных отношений $\delta J_{m,i}$ для различных точек образца. Полученные таким образом величины $\delta J_{m,i}$ не зависят от рассчитанной в работе [5] зависимости изомерного отношения от энергии нейтронов.

Точность экспериментального определения изменения изомерных отношений $\delta J_{m,i}$ зависит от точности измерения интенсивности γ -квантов ^{94}Nb в мониторах и интенсивности γ -квантов 137 кэВ

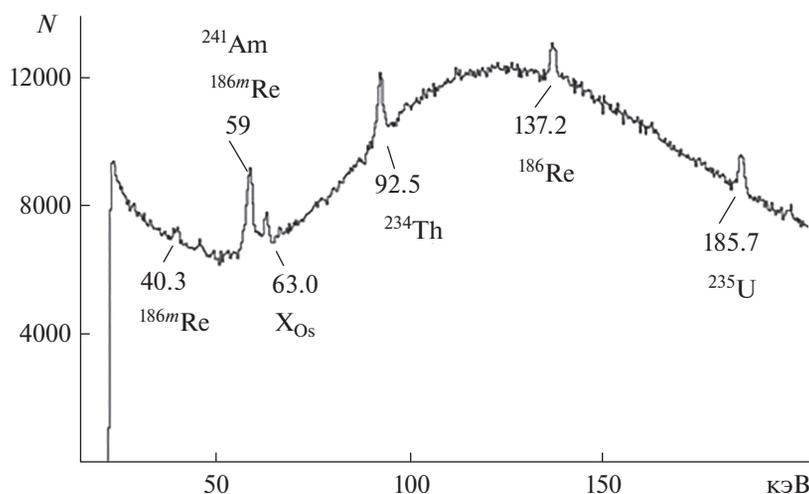


Рис. 2. Спектр γ -квантов пробы изомера ^{186m}Re активностью 0.2 Бк. Хорошо видны фотопики 137.2 кэВ изомера ^{186m}Re , фотопики примесных радионуклидов ^{241}Am и ^{235}U , фоновые фотопики. N — число отсчетов спектрометра за 8 сут измерений.

изомера ^{186m}Re в ренийевых фольгах. При флюенсе тепловых нейтронов 10^{19} см^{-2} активность ^{94}Nb в мониторе приблизительно равна 300 Бк, активность изомера ^{186m}Re в кусочке Re фольги размером $1 \times 1 \text{ мм}$ равна 0.7 Бк. Таких величин активностей достаточно для измерения интенсивности линий с точностью не хуже 0.5%. На рис. 2 показан спектр γ -кантов пробы ^{186m}Re активностью 0.2 Бк, измеренной в колодце кристалла особо чистого германия объемом 150 см^3 спектрометрического детектора в свинцовой защите. Даже при такой малой активности изомера ^{186m}Re его фотопик 137 кэВ хорошо выделяется над фоном.

Нужно отметить, что согласно приведенной методике экспериментальное определение изменения изомерных отношений δJ_m по точкам образца основывается на относительных измерениях. Если в γ -измерениях используются одинаковые по геометрии Nb-мониторы и Re-фольги, то в результате определения δJ_m не входят эффективности регистрации γ -квантов. Тогда точность определения δJ_m зависит только от точности измерения интенсивности γ -линий и не должна быть хуже 0.5%. Как видно по оценке в табл. 1 величины δJ_m на основе расчетного изомерного отношения Чедвика и Янга [5], этой точности достаточно для обнаружения изменения по образцу изомерного отношения для ^{186}Re .

Полученные экспериментальные и расчетные изменения изомерных отношений $\delta J_{m, i}$ для различных точек образца сравниваются между со-

бой. Если соответствие этих значений оказывается в пределах погрешности измерений $\delta J_{m, i}$, то можно считать расчетную зависимость изомерного отношения от энергии нейтронов [5] достоверной и тогда для эффективной наработки больших количеств изомера ^{186m}Re в реакторе не нужно предъявлять требований к спектру нейтронов, а только к их общему флюенсу.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Кольцов В.В.* // Ядерная физика и инжиниринг. 2021. Т. 12 (3). С. 147–150. [*Koltsov V.V.* // Phys. At. Nucl. 2021. V. 84 (11). P. 1817].
2. *Seegmiller D.W., Linder M., Meyer R.A.* // Nucl. Phys. A. 1972. V. 185. P. 94.
3. *Firestone R.B.* Table of Isotopes (8th Ed.). 1996. Berlin: Wiley-VCH.
4. Evaluated Nuclear (Reaction) DATA File (ENDF). <http://nncd.bnl.gov>.
5. *Chadwick M.B., Young P.G.* // Calculation of Long-Lived Isomer Production in Neutron Reactions. 1992. Vienna: IAEA. INDC(NDS)-263GSP. Ref. No. 24043574.
6. *Afanas'ev V.V., Gromov M.O., Izhutov A.L., Koltsov V.V., Petelin A.L., Pimenov V.V., Sazontov S.A.* // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2021. V. 85. P. 1472.
7. *Alekseev N.I., Bol'shagin S.N., Gomin E.A., Gorodkov S.S., Gurevich M.I., Kalugin M.A., Kulakov A.S., Marin S.V., Novosel'tsev A.P., Oleynik D.S., Pryanichnikov A.V., Sukhino-Fomenko E.A., Shkarovskiy D.A., Yudkevich M.S.* // Vopr. Atom. Nauki Tekh. Ser.: Fiz. Yad. Reakt. 2011. No. 4. P. 4 (in Russian).

On the Possibility of Experimental Comparison of the Isomeric Ratio for ^{186}Re Nuclei in Radiative Capture of Reactor Thermal and Epithermal Neutrons By Natural Rhenium

Yu. V. Volchikhina¹, D. M. Gordeeva¹, A. A. Zyryanova¹,
V. V. Koltsov^{2, *}, I. M. Russkikh¹, and V. A. Yakovlev²

¹ Institute of Reactor Materials, Zarechny, Sverdlovskaya oblast, 624250 Russia

² Khlopin Radium Institute, St. Petersburg, 194021 Russia

*e-mail: vladimir-koltsov@yandex.ru

Received February 13, 2024; revised February 13, 2024; accepted February 27, 2024

Abstract—The prospect of creation of the energy accumulator based on the ^{186m}Re nuclear isomer (a half-life of $2 \times 10^5 \text{ yr}$) requires the choice of conditions of natural rhenium irradiation by reactor neutrons for production of a large amount of the isomer. The known calculations of dependence of the isomeric ratio at formation of ^{186}Re nuclei in ground and isomeric states show insignificant difference between isomer production efficiencies by thermal neutrons and in the core of a reactor. This conclusion has been earlier confirmed experimentally with an accuracy up to 20%. A method for a more accurate experimental test of results of the isomeric ratio calculation has been proposed in this work.

Keywords: nuclear isomers, isomeric ratio, production of nuclear isomers, reactor spectrum of neutrons