

МАТЕРИАЛЫ И ТЕХНОЛОГИЯ ДЛЯ НОВЫХ ИСТОЧНИКОВ ЭНЕРГИИ

УДК 539.17

О РЕАКТОРНОЙ НАРАБОТКЕ ИЗОМЕРА ^{186m}Re

© 2021 г. В. В. Кольцов*

АО «Радиовый институт им. В.Г. Хлопина», Санкт-Петербург, 194021 Россия

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

Поступила в редакцию 20.11.2020 г.

После доработки 26.11.2020 г.

Принята к публикации 07.12.2020 г.

Для обеспечения экспериментов по стимуляции девозбуждения изомерного состояния ядер ^{186m}Re (период полураспада изомера $T_{1/2} = 2 \cdot 10^5$ лет) рассмотрена возможность наработки весовых количеств изомерных ядер ^{186m}Re при облучении природного рения в нейтронном потоке водо-водяного реактора. Из сравнения активности изомера ^{186m}Re в образцах рения, облученных внутри активной зоны реактора и в канале с термализованными нейтронами показано, что образование изомера происходит в основном при радиационном захвате тепловых нейтронов ядрами ^{185}Re . Интегральное сечение образования изомера равно 300 ± 60 мбн. С учетом выгорания стартовых изотопов и наработанного изомера максимальная концентрация изомера ^{186m}Re около 0.13% по отношению к другим изотопам рения достигается при нейтронном флюенсе $2.2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. Для получения материала с более высокой концентрацией изомера ^{186m}Re вначале можно очистить облученный рений от химических примесей на ионно-обменной колонне и затем выделить изотоп с массовым числом 186. Это и будет практически чистый изомер ^{186m}Re , поскольку ядра ^{186}Re в основном состоянии распадаются с периодом $T_{1/2} = 90$ ч. Для разделения изотопов рения перспективен газо-центрифужный метод с использованием газообразного гексафторида рения, его температура кипения всего 33.7°C. Металл из чистого изомера ^{186m}Re по существу будет являться новым состоянием вещества.

Ключевые слова: ядерные изомеры, стимуляция девозбуждения ядерных изомеров, наработка ядерных изомеров, радиационный захват нейтронов, разделение изотопов, газовые центрифуги

DOI: 10.56304/S2079562920060330

ВВЕДЕНИЕ

Ядерное изомерное состояние ^{186m}Re с энергией 149 кэВ и периодом полураспада $2 \cdot 10^5$ лет [1] представляет большой интерес для исследования стимуляции девозбуждения ядерных изомеров в плазме. В работе [2] эффект такой стимуляции наблюдали в лазерной плазме с электронной температурой около 1 кэВ, в работе [3] было предложено исследование этого эффекта в плазме электрического разряда, в частности в плазме электрического взрыва проводников. В настоящей работе рассматривается возможность реакторной наработки весовых количества вещества с высокой концентрацией изомера ^{186m}Re , необходимой для проведения таких экспериментов.

1. МЕТОДИКА РЕАКТОРНОЙ НАРАБОТКИ ИЗОМЕРА ^{186m}Re И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Согласно [1], ранее сечение σ_m образования изомера ^{186m}Re в потоке реакторных нейтронов было измерено только в работе [4]. На водо-водяном реакторе в течение 9 суток облучали мишень природ-

ного рения — 37% изотопа ^{185}Re и 63% изотопа ^{187}Re , средний поток нейтронов был около $2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, флюенс нейтронов во всем диапазоне энергий составил приблизительно $\Phi = 1.7 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$. В предположении образования изомера при радиационном захвате нейтронов ядрами ^{185}Re в работе [4] получили сечение $\sigma_m \approx 300$ мбн. При вычислении сечения σ_m не выделяли вклад именно тепловых нейтронов в образование изомера, поэтому полученное сечение относится к потоку нейтронов во всем энергетическом диапазоне.

В принципе изомер ^{186m}Re может образовываться не только при радиационном захвате нейтронов, но и при неупругом рассеянии нейтронов на ядрах ^{186}Re в основном состоянии и в реакциях $(n, 2n)$ на ядрах ^{187}Re . При рассмотрении возможности реакторной наработки большого количества изомерных ядер ^{186m}Re в первую очередь нужно заметить, что реакция возбуждения изомера при неупругом рассеянии нейтронов на ядрах ^{186}Re в основном состоянии не существенна. Хотя ядра ^{186}Re в основном состоянии и образуется при радиационном захвате нейтронов ядрами ^{185}Re ,

Таблица 1. Результаты облучения природного рения в реакторе ВВР-М

Облученный образец	Средний поток тепловых нейтронов, $\text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$	Флюенс тепловых нейтронов, см^{-2}	Удельная активность изомера ^{186m}Re , Бк г^{-1}	Сечение образования изомера, мбн
Ампула № 1	$2 \cdot 10^{13}$	$6 \cdot 10^{19}$	$(2.4 \pm 0.2) \cdot 10^3$	304 ± 66
Ампула № 2	$5 \cdot 10^{13}$	$1.4 \cdot 10^{20}$	$(5.4 \pm 0.3) \cdot 10^3$	294 ± 61

но они распадаются с периодом 90 ч и концентрация ядер ^{186}Re в реакторе очень мала.

Сечение образования ^{186m}Re изомера в реакции $(n, 2n)$ на изотопе ^{187}Re неизвестно, но верхнюю границу этого сечения можно оценить исходя из полного сечения $(n, 2n)$ реакции и из энергетического спектра реакторных нейтронов. Для $(n, 2n)$ реакции необходимы нейтроны энергии более 8 МэВ – больше энергии связи нейтрона в ядре ^{187}Re . Предполагая, что в этой области энергий спектр реакторных нейтронов описывается делительным спектром, можно считать, что энергию более 8 МэВ имеет приблизительно 0,5% нейтронов. Поскольку сечение $(n, 2n)$ реакции не более 2000 мбарн [6], то интегральное сечение $(n, 2n)$ реакции менее $2000 \cdot 0.5\% = 100$ мбн. Сечение $(n, 2n)$ реакции с образованием изомера меньше этого верхнего предела по крайней мере на порядок. Такой вывод можно сделать, рассматривая вероятность образования изомеров в $(n, 2n)$ реакциях на других ядрах, например на ядре ^{191}Ir с образованием изомера $^{190m2}\text{Ir}$ ($T_{1/2} = 3.25$ ч). Для реакции $(n, 2n)$ на ^{191}Ir сечение ≈ 800 мбарн при энергии нейтронов более 10–11 МэВ. Сечений этой реакции с образованием изомерного состояния $^{190m2}\text{Ir}$ в сорок раз меньше и равно 20 мбарн [5]. По аналогии можно предположить, что интегральное сечение образования изомера ^{186m}Re по $(n, 2n)$ реакции при взаимодействии реакторных нейтронов с природным рением не более 10 мбарн, что намного меньше экспериментального значения сечения образования изомера.

Таким образом, радиационный захват нейтронов – это основная реакция образования изомера ^{186m}Re в реакторе. Но важно знать зависимость сечения образования изомера от энергии нейтронов для возможности выбора оптимального режима наработки изомера. Общее представление о возможном характере этой зависимости может дать рассмотрение соотношения между спином $I = 8$ изомера ^{186m}Re и спином составного ядра, образуемого при захвате нейтрона ядром ^{185}Re , спин которого в основном состоянии равен $I = 5/2$. Как известно, наработка высокоспиновых изомеров в реакторе происходит в основном в реакциях с нейтронами, которые могут внести в составное ядро угловой момент, повышающий вероятность заселе-

ния изомерного состояния при каскадном девозбуждении составного ядра [7]. Для этого энергия нейтронов должна быть более 1 МэВ из-за наличия центробежного барьера при образовании составного ядра. Такая ситуация имеет место например при образовании в реакторе изомерных ядер $^{178m2}\text{Hf}$ из ядер ^{177}Hf , поскольку спин изомера $^{178m2}\text{Hf}$ больше на 12 единиц спина составного ядра, образующегося при захвате тепловых нейтронов ядрами ^{177}Hf . Но при образовании изомера ^{186m}Re различие в спинах изомера и составного ядра, образующегося при захвате тепловых нейтронов ядрами ^{185}Re , не очень велико – спин изомера всего на пять единиц больше спина составного ядра. Поэтому при образовании в реакторе изомера ^{186m}Re роль быстрых нейтронов может быть не определяющей, по крайней мере не такой существенной, как при образовании изомера $^{178m2}\text{Hf}$.

Этому выводу соответствует ранее неопубликованный результат наработки изомера ^{186m}Re , проведенной в 2006 г. в Радиовом институте им. В.Г. Хлопина по инициативе А.А. Римского-Корсакова. На реакторе ВВР-М Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова в течение 32.5 суток одновременно облучали две ампулы с 2.5 г металлического порошка природного рения. Ампулу №1 облучали в канале В-8 (тепловые нейтроны), ампулу №2 облучали в активной зоне реактора, где спектр нейтронов был жестче. Параметры облучения ампул приведены в таблице. Средний поток тепловых нейтронов был определен с точностью 20%. Через 780 суток после окончания облучения была измерена удельная активность изомера ^{186m}Re в ампулах, результаты приведены в табл. 1. Видно, что в пределах 20% погрешности измерения потока тепловых нейтронов наработка изомера в образцах оказалась пропорциональна флюенсу именно тепловых нейтронов и не зависела от различия в флюенсе нейтронов большой энергии.

Таким образом, для наиболее эффективной наработки изомера следует поместить изотоп ^{185}Re в максимально большой поток тепловых нейтронов. Экспозиция облучения не может быть очень большой ввиду выгорания стартового изотопа ^{185}Re и выгорания наработанного изомера ^{186m}Re . Зависимость от нейтронного флюенса числа накопленных

в реакторе изомерных ядер N_m описывается формулой

$$N_m(\Phi) = \sigma_m N_{0,185} \frac{e^{-\sigma_{\text{burn},m}\Phi} - e^{-\sigma_{185}\Phi}}{\sigma_{185} - \sigma_{\text{burn},m}}, \quad (1)$$

где $\sigma_{185} = 112$ бн — сечение захвата нейтронов ядрами ^{185}Re [6]; $\sigma_{\text{burn},m} = 12$ бн — сечение выгорания изомера ^{186m}Re (сечение радиационного захвата нейтронов изомерными ядрами ^{186m}Re), принятое таким же, как и для ядра ^{186}Re в основном состоянии; σ_m — сечение образования изомера при захвате нейтрона ядром ^{185}Re , Φ — флюенс нейтронов, $N_{0,185}$ — стартовое количество ядер ^{185}Re . Формула (1) получена из рассмотрения баланса между образованием изомера, его выгоранием в нейтронном потоке и выгоранием стартового изотопа ^{185}Re . Эту же формулу использовали в работе [8]. В таблице приведены рассчитанные из формулы (1) значения сечений образования изомера ^{186m}Re для двух облученных образцов. Эти значения совпадают между собой в пределах погрешности измерений и очень хорошо соответствуют результату работы [4]. Ввиду небольшого флюенса нейтронов при облучении образцов рения выгорание изотопов рения в ампулах № 1 и № 2 было несущественным.

Функция накопления изомера $N_m(\Phi)$ достигает максимума при флюенсе нейтронов Φ_{max} , определяемом по формуле

$$\Phi_{\text{max}} = \frac{\ln \frac{\sigma_{\text{burn},m}}{\sigma_{185}}}{(\sigma_{\text{burn},m} - \sigma_{185})}. \quad (2)$$

Согласно этой формуле флюенс нейтронов равен $\Phi_{\text{max}} = 2.2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. При этом число ядер изомера будет равно $N_m = 2.0 \cdot 10^{-3} N_{0,185}$. То есть при облучении 1 г природного рения накопится около 1 мг изомера ^{186m}Re . При увеличении нейтронного флюенса количество наработанного изомера будет уменьшаться вследствие выгорания изомера и стартового изотопа ^{185}Re . Таким образом, накопление больших количеств изомера можно вести только порциями, облучая стартовый ^{185}Re потоком нейтронов с флюенсом не более $2.2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, затем облученный рений необходимо извлекать из реактора, и начинать облучение в реакторе новой закладки ^{185}Re .

2. МЕТОДИКА ВЫДЕЛЕНИЕ ИЗОМЕРА ^{186m}Re ИЗ ОБЛУЧЕННОГО МАТЕРИАЛА

Получение материала с высокой концентрацией изомера ^{186m}Re возможно его выделением из облученного рения. Вначале необходимо очистить облученный рений от химических примесей — даже если стартовый рений был химически чистым, то при его облучении возникли новые химические

элементы. Такая очистка возможна либо перегонкой рения в виде легко летучего соединения гексафторид рения — его температура кипения всего 33.7°C [9], либо пропусканием раствора облученного рения через подходящую ионно-обменную колонну. После удаления химических примесей в облученном нейтронами с флюенсом $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ рении концентрация изомера ^{186m}Re будет приблизительно 0.13%, остальное — это невыгоревшие при облучении изотопы ^{185}Re и ^{187}Re . Из смеси изотопов рения необходимо выделить изотоп с массовым числом 186, это и будет практически чистый изомер ^{186m}Re , поскольку ядра ^{186}Re , образованные при облучении в основном состоянии, быстро распадаются. Выделение ^{186m}Re перспективно проводить газо-центрифужным разделением изотопов. Для газо-центрифужного разделения изотопов многих металлов подходят их гексафториды [10]. В случае рения его гексафторид по-видимому также подходит для газо-центрифужного разделения изотопов, поскольку имеет низкую температуру кипения. Принципиально важно, что при получении изомерного материала ^{186m}Re не возникает вопрос о разделении ядер рения в изомерном и неизомерном состоянии, поскольку основное состояние ^{186}Re быстро — за 90 часов, распадается в другой химический элемент. Возможность получения чистого изомерного продукта ^{186m}Re является большим преимуществом этого изомера по сравнению с изомерами, у которых основное состояние ядер стабильно и для получения высокой концентрации изомера возникает проблема разделения атомов с изомерными и неизомерными ядрами. Таким неудобным изомером является например изомер $^{178m2}\text{Hf}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты настоящей работы показывают, что для наиболее эффективной наработки изомера ^{186m}Re необходимо изотоп ^{185}Re в виде обогащенного изотопного материала, либо в составе природного рения поместить в поток тепловых нейтронов. Максимальная концентрация изомера ^{186m}Re , равная 0.13% по отношению к другим изотопам рения, достигается при флюенсе нейтронов $2.2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. После очистки облученного рения от других химических элементов и газо-центрифужного выделение изотопа рения с массовым числом 186 получится чистый изомерный материал ^{186m}Re . Режим оптимального облучения природного рения для наработки изомера ^{186m}Re и методику его газо-центрифужного выделения из облученного материала необходимо экспериментально отработать, но в принципе реакторная наработка весовых количеств изомера ^{186m}Re высокой концентрации представляется возможной. Интересно, что приготовленный из чистого изомера ^{186m}Re металл по

существованию будет являться новым состоянием вещества и будет представлять интерес сам по себе, а не только применительно к экспериментам по стимулированному девозбуждению ядерных изомеров.

БЛАГОДАРНОСТИ

Автор с благодарностью вспоминает своего старшего коллегу по Радиевому институту, ныне покойного доктора А.А. Римского-Корсакова, который много лет назад полученный им экспериментальный материал по реакторной наработке изомера предоставил автору. Автор также благодарен сотрудникам Радиевого института В.В. Карасеву за систематизацию материалов по реакторной наработке изомера, доктору А.И. Костылеву и доктору Ю.И. Трифонову за обсуждение вопросов газо-центрифужного разделения изотопов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Baglin C.M.* // Nucl. Data Sheet. 2003. V. 99. P. 1.
2. *Ватулин В.В., Жидков Н.В., Римский-Корсаков А.А., Кольцов В.В. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2017. Т. 81. С. 401. [*Vatulin V.V., Jidkov N.V., Rimsky-Korsakov A.A., Koltsov V.V. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2017. V. 81. No. 10. P. 1159].
3. *Koltsov V.V.* Proc. Intl. 68th Meeting on Nuclear Spectroscopy and Atomic Nucleus Structure "Nucleus-2018". Voronezh, Russia, July 2–5, 2018. P. 127.
4. *Seegmiller D.W., Linder M., Meyer R.A.* // Nucl. Phys. A. 1972. V. 185. P. 94.
5. *Vlastou R., Kalamara A., Kokkoris M. et al.* // EPJ. Web Conf. 2017. V. 146. P. 11013.
6. Evaluated Nuclear (Reaction) Data File (ENDF). <http://nncd.bnl.gov>.
7. *Karamian S.A.* // Phys. Part. Nucl. 2008. V. 39. P. 490.
8. *Karamian S.A., Carroll J.J., Adam J. et al.* // High Energy Density Phys. 2006. V. 2. P. 48.
9. <https://www.webelements.com/rhenium>.
10. *Борисевич В.Д., Борман В.Д., Сулаберидзе Г.А. и др.* Физические основы разделения изотопов в газовой центрифуге. 2011. Москва: МЭИ.

Production of the ^{186m}Re Isomer in Nuclear Reactor

V. V. Koltsov*

JSC Khlopin Radium Institute, Saint-Petersburg, 194021 Russia

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

Received November 20, 2020; revised November 26, 2020; accepted December 7, 2020

To provide experiments on stimulating the de-excitation of the isomeric state of ^{186m}Re nuclei (half-life of the isomer $T_{1/2} = 2 \times 10^5$ years), the possibility of producing weighed amounts of isomeric ^{186m}Re nuclei by irradiating natural rhenium in the neutron flow of a pressurized water reactor was considered. From a comparison of the activity of the ^{186m}Re isomer in rhenium samples irradiated inside the reactor core and by thermalized neutrons, it was shown that the isomers are formed mainly in the radiative capture of thermal neutrons by ^{185}Re nuclei. The integral cross section for isomer formation is 300 ± 60 mb. Taking into account the burn up of the starting isotopes and the produced isomer, the maximum concentration of the ^{186m}Re isomer of about 0.13% relative to other rhenium isotopes is achieved at a neutron fluence of $2.2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$. To obtain a material with a higher concentration of the ^{186m}Re isomer, one can first purify irradiated rhenium from chemical impurities on an ion-exchange column and then isolate the isotope with a mass number of 186. This will be an almost pure isomer of ^{186m}Re , since the ground state of ^{186}Re nuclei decays with a period of $T_{1/2} = 90$ h. For the separation of rhenium isotopes, the gas-centrifugal method using gaseous rhenium hexafluoride is promising; its boiling point is only 33.7°C . A metal from the pure ^{186m}Re isomer will essentially be a new state of matter.

Keywords: nuclear isomers, stimulation of de-excitation of nuclear isomers, production of nuclear isomers, radiative capture of neutrons, isotope separation, gas centrifuges