

文章编号:0253-9950(2009)04-0193-05

## $^{101}\text{Tc}$ 半衰期的测量

游新锋,张生栋,杨志红,丁有钱,崔安智

中国原子能科学研究院 放射化学研究所,北京 102413

**摘要:**在微型中子源反应堆中辐照 75 mg 仲钼酸铵 20 min,冷却 12 min,然后用  $\alpha$ -安息香肟-乙酸乙酯在水相介质为 0.8 mol/L  $\text{HNO}_3$ 、相比 1:1 条件下,连续萃取 2 次分离出了无载体、放化纯的  $^{101}\text{Tc}$  样品。用 HPGe  $\gamma$  探测器对 306.8 keV  $\gamma$  射线采用位置接续法跟踪测量,分别用“平移法”、“迭代法”和“R-值法”进行数据处理,得到  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期为  $(14.02 \pm 0.01) \text{ min}$  ( $n=5$ ),经检验数据可靠。

**关键词:**  $^{101}\text{Tc}$ ; 半衰期测量; Mo, Tc 分离; HPGe  $\gamma$  谱仪

中图分类号: TL816 文献标志码: A

## Measurement of $^{101}\text{Tc}$ Half-Life

YOU Xin-feng, ZHANG Sheng-dong, YANG Zhi-hong, DING You-qian, CUI An-zhi

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275 (126), Beijing 102413, China

**Abstract:** 75 mg  $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  solution was irradiated for 20 min in miniature neutron source reactor (MNSR) and cooled for 12 min. In the conditions of 0.8 mol/L  $\text{HNO}_3$ , phase ratio 1:1, the solution of  $^{101}\text{Tc}$  sample was extracted twice with  $\alpha$ -benzoin oxime/ethyl acetate phase to remove  $^{101}\text{Mo}$  and a radiochemically pure and carrier-free  $^{101}\text{Tc}$  product was obtained. The half-life of  $^{101}\text{Tc}$  was accurately measured with a HPGe  $\gamma$ -detector by following 306.8 keV  $\gamma$ -ray about 150 min, and processed the data by three methods, R-value method, iterative method and translation method. Five parallel measurements gave a half-life  $(14.02 \pm 0.01) \text{ min}$  ( $n=5$ ) for  $^{101}\text{Tc}$ .

**Key words:**  $^{101}\text{Tc}$ ; measurement of half-life; separate Tc from Mo; HPGe  $\gamma$ -detector

$^{101}\text{Tc}$  是测定核燃料裂变燃耗用的重要核素,其半衰期测量和评价工作非常重要。直至 1990 年以前, $^{101}\text{Tc}$  的半衰期实验数据多为 20 世纪四五十年代的测量结果<sup>[1-5]</sup>,测量仪器为 G-M 管或闪烁计数器等。这些仪器只能测量  $^{101}\text{Tc}$  的总  $\beta$  或  $\gamma$  的放射性计数,而无法分辨测量源中可能存在的放射性杂质,测量结果差别比较大。在随后

的 40 年没有报道新的测量数据。目前采用的是 Abzouzi 等<sup>[6]</sup> 获得的实验数据,但他们未去除  $^{101}\text{Tc}$  的母体  $^{101}\text{Mo}$ ,直接用 HPGe 跟踪 306.8 keV  $\gamma$  射线,可能会导致半衰期测量值偏大。因此,非常有必要对  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期进行重新测量。 $^{101}\text{Tc}$  的半衰期仅 14 min 左右,属于短寿命核素,本工作拟采用跟踪测量其放射性活度的办法获得半

衰期。

## 1 实验部分

### 1.1 测量原理

$^{101}\text{Tc}$  的放射性活度符合  $C=C_0e^{-\lambda t}$  的衰变规律。在测量真时间  $\Delta t$  内  $^{101}\text{Tc}$  的平均计数率  $\bar{C}$  应为:

$$\bar{C} = \frac{\int_t^{t+\Delta t} C dt}{\Delta t} = \frac{\int_t^{t+\Delta t} C_0 e^{-\lambda t} dt}{\Delta t} = \frac{C_0 e^{-\lambda t} \times (1 - e^{-\lambda \Delta t})}{\lambda \Delta t} \quad (1)$$

两边取对数得:

$$\ln \bar{C} = -\lambda t + \ln(1 - e^{-\lambda \Delta t}) - \ln(\lambda \Delta t) + \ln C_0 \quad (2)$$

其中:  $t$ , 某一给定时刻与测量起始时刻的时间差, s;  $\Delta t$ , 跟踪测量的真时间, s;  $\bar{C}$ , 从  $t$  到  $t + \Delta t$  时间内的平均计数率,  $s^{-1}$ ;  $C_0$ , 初始计数率,  $s^{-1}$ ;  $\lambda$ ,  $^{101}\text{Tc}$  的衰变常数,  $s^{-1}$ 。设定测量真时间  $\Delta t$  恒定, 则(2)式后面三项为与时间  $t$  无关的常数, 平均计数率的对数与时间呈线性关系。以  $\ln \bar{C}$  对  $t$  作图, 可以得到一条斜率为  $-\lambda$  的直线, 从而求得半衰期<sup>[7]</sup>。

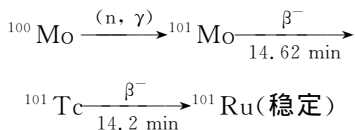
### 1.2 试剂和仪器

$(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ , 分析纯, 北京化工厂;  $\alpha$ -安息香肟、乙酸乙酯、 $\text{HNO}_3$  等, 分析纯, 北京化学试剂公司。

BP211D 型电子天平, 德国 Satorius 公司, 感量  $10^{-5}$  g; GEM40P4 型同轴 HPGe  $\gamma$  谱仪, 美国 ORTEC 公司, 分辨率, 对  $^{60}\text{Co}$  的 1 332 keV  $\gamma$  射线的 FWHM 为 1.7 keV。

### 1.3 $^{101}\text{Tc}$ 测量源的制备

在微堆辐照  $\text{Mo}$  靶, 发生如下反应, 然后用  $\alpha$ -安息香肟-乙酸乙酯萃取分离得到  $^{101}\text{Tc}$ 。



操作流程如下:

(1) 取 150 g/L 仲钼酸铵水溶液 0.5 mL, 用聚乙烯小瓶热封。在中国原子能科学研究院微型反应堆(中子剂量率  $\approx 7 \times 10^{11}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ ) 辐照 20 min, 冷却 12 min;

(2) 用 1 mL 注射器取出样品, 转移至盛有 3.5 mL 1.0 mol/L  $\text{HNO}_3$  溶液的分液漏斗中, 摇匀; 然后, 加入 4 mL 40 g/L 的  $\alpha$ -安息香肟-乙酸

乙酯溶液, 萃取 1 min, 静止分相 1~2 min; 放出下层清液, 至另一个盛有 4 mL 40 g/L  $\alpha$ -安息香肟-乙酸乙酯的分液漏斗中, 重复萃取 1 次, 静止分相 2 min;

(3) 放出下层清液至 10 mL 的测量管中, 盖上塞子, 作  $^{101}\text{Tc}$  测量源。

### 1.4 测量方法

将制好的  $^{101}\text{Tc}$  液体源, 用同轴 HPGe  $\gamma$  谱仪跟踪 306.8 keV (分支比为 89%) 的  $\gamma$  射线, 每 300 s 记录一个数据。首先在距探头 121.5 mm 的高位测量约 4~6 个半衰期; 在高位和低位(距离探头 5 mm) 之间交替测量 3~4 次, 每次测量真时间仍保持 300 s 不变; 最后在低位测量约 4~6 个半衰期。为减少  $\gamma$  谱测量过程中随机相加效应引入的峰计数丢失, 测量过程中在固定位置放置一个长寿命的  $^{137}\text{Cs}$  监督源与  $^{101}\text{Tc}$  样品同时测量。

### 1.5 数据处理

分别采用迭代法、 $R$ -值法和直接平移法 3 种方法处理数据<sup>[7-9]</sup>。

**1.5.1 迭代法** 以某一位置某一时刻的测量值  $C_0$ , 按照  $C_t = C_0 e^{-\lambda(t-t_0)}$  和最新同位素数据表<sup>[10]</sup> 给出的  $^{101}\text{Tc}$  半衰期值 14.22 min 计算  $t$  时刻的  $C_t$  值, 与另一位置相同时刻的测量值  $C'_t$  相比较, 求出不同位置之间的计数率比。根据计数率比, 将低位的测量数据归一到高位, 作  $\ln C_t-t$  图, 用最小二乘法拟合得到直线, 根据斜率, 求出  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期。再用得到的半衰期进行迭代, 直到前后 2 次迭代的半衰期数值不变为止。

**1.5.2  $R$ -值法**  $R$  值定义为在某一测量位置  $^{101}\text{Tc}$  计数率的测量值与同一时刻  $^{137}\text{Cs}$  的计数率之比。 $R$  值原理上仍然符合  $R_t = R_0 e^{-\lambda t}$  的规律。 $R$  值的处理过程如下:

(1) 取文献值 14.22 min 为  $^{101}\text{Tc}$  半衰期的初始值;

(2) 求出不同测量位置的  $^{101}\text{Tc}$  与  $^{137}\text{Cs}$  的计数率之比  $R$ , 根据高、低位置交替测量数据求出校正因子  $b = R_{\text{高}}/R_{\text{低}}$ ;

(3) 用校正因子  $b$  的平均值, 把低位数据全部校正到高位;

(4) 作  $\ln R-t$  图, 用最小二乘法拟合得一条直线, 根据斜率求出半衰期, 再用得到的半衰期进行迭代, 直到前后 2 次得到的半衰期值不变为止。

**1.5.3 平移法** 将高位数据作  $\ln C_t-t$  图, 用最

小二乘法线性拟合得直线方程。根据方程算出  $t$  时刻的  $\ln C_t$ , 然后与不同位置同一时刻测得的  $C_t'$  取对数比较, 求出高位和低位之间  $\ln C_t$  的差值, 根据差值将低位数据转换为高位的  $\ln C_t$  值, 以  $\ln C_t$  对  $t$  作图, 再用最小二乘法重新拟合得一条直线, 根据斜率求得  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期。

## 2 结果和讨论

### 2.1 母体 $^{101}\text{Mo}$ 的去除

由于  $^{101}\text{Tc}$  由  $^{101}\text{Mo}$  衰变而来, 如不进行母子

体分离, 那么在  $^{101}\text{Tc}$  半衰期测量过程中  $^{101}\text{Mo}$  不断产生  $^{101}\text{Tc}$ , 致使  $^{101}\text{Tc}$  的计数率变化偏离指数衰变规律, 使  $^{101}\text{Tc}$  半衰期测量值偏大。用 1.3 节流程得到的  $^{101}\text{Tc}$  测量源在同轴 HPGe  $\gamma$  谱仪距探头表面 121.5 mm 位置上测量, 得到产品谱图示于图 1。图 1 中各峰均能与  $^{101}\text{Tc}$  的特征峰一一对应, 没有发现  $^{101}\text{Mo}$  的最大特征  $\gamma$  峰 590 keV。按本底计数率为  $0.02 \text{ s}^{-1}$  计算, Mo 的去污因子约为  $3.0 \times 10^4$ , 满足半衰期测量要求。

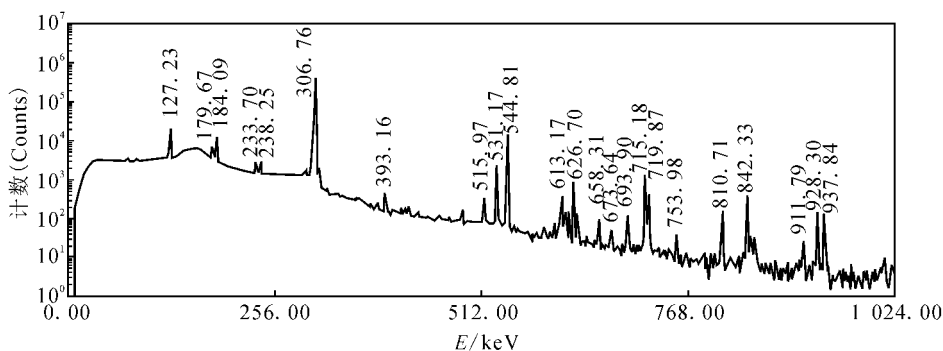


图 1 从 Mo 靶中分离出的  $^{101}\text{Tc}$  的  $\gamma$  谱图

Fig. 1  $\gamma$ -spectrum of  $^{101}\text{Tc}$  separated from Mo target

### 2.2 $^{101}\text{Tc}$ 的半衰期

用上述方法进行了 5 次独立样品分离并进行半衰期测量, 其中前 2 次测量没有加  $^{137}\text{Cs}$  监督源, 所得数据仅用直接平移法进行了处理, 其余 3 次测量分别用三种方法处理数据。本文给出其中一条用最小二乘法拟合得到的直线, 示于图 2, 根据直线斜率可求出半衰期。将 5 次测得结果列于表 1 中。将得到的 5 个半衰期值进行算术平均, 得到  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期为  $(14.02 \pm 0.01) \text{ min}$ 。所给出的标准不确定度是 5 次测量结果的标准偏差。

### 2.3 仪器稳定性

为检验测量过程中仪器的稳定性, 将  $^{137}\text{Cs}$  监督源在测量过程中的计数率变化结果列入表 2。由表 2 可知, 在其中 3 次半衰期测量过程中,  $^{137}\text{Cs}$  计数率变化的均值小于 6.7%, 表明所使用的 HPGe  $\gamma$  探测器在统计误差范围内稳定性很好。

### 2.4 数据可靠性检验

为了有效检验  $^{101}\text{Tc}$  半衰期测量值的可靠性, 本工作把数据点之间的差别放大。具体方法是: 根据测得的半衰期数据  $((14.02 \pm 0.01) \text{ min})$  将

每个测量点的计数率校正到第一个测量点的起始时刻, 取平均值, 再把每个计数率与均值比较求得比值, 用  $r$  表示, 然后将  $r$  对时差  $t$  作图。图 3 为第三次测量结果误差放大检验图。

经统计, 5 次测量中, 所测得数据点分布在  $1\sigma$  内的占所测总数的 83% 以上, 分布在  $2\sigma$  内的数据点占 96% 以上, 所有测量点均在  $\pm 3\%$  范围内。这表明给出的  $^{101}\text{Tc}$  半衰期数据可靠。

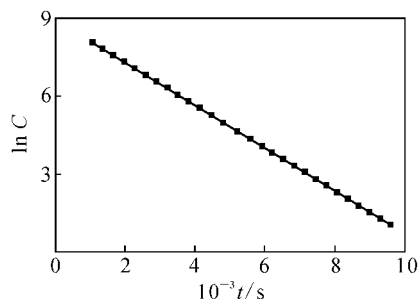


图 2  $\ln C$  与时间  $t$  的关系

Fig. 2 Relationship between  $\ln C$  and  $t$

表 1  $^{101}\text{Tc}$  半衰期的测量结果  
Table 1 Measurement results of half-life of  $^{101}\text{Tc}$

No.	处理方法 (Process method)	$\Delta t$ /min	$C_0/s^{-1}$	$T_{1/2}/\text{min}$	$\bar{T}_{1/2}/\text{min}$
1	直接平移(Translation)	94.3	3 729.11	14.006±0.006	14.02±0.01
2	直接平移(Translation)	120.3	902.94	14.017±0.012	
3	直接平移(Translation)	142.5	3 247.24	14.025±0.007	
	迭代法(Iteration)			14.021±0.007	
	R-值法(R-value)			14.013±0.011	
4	直接平移(Translation)	146.4	4 106.34	14.035±0.007	
	迭代法(Iteration)			14.035±0.007	
	R-值法(R-value)			14.037±0.010	
5	直接平移(Translation)	150.4	4 104.49	14.032±0.005	
	迭代法(Iteration)			14.027±0.005	
	R-值法(R-value)			14.007±0.007	

注(Note):  $n=5$

表 2  $^{137}\text{Cs}$  在测量过程中的计数率变化

Table 2 Variation in counting rate of  $^{137}\text{Cs}$  monitor

No.	测量时间 (Measurement time)/s	$\Delta t/s$	$\Delta C(^{137}\text{Cs})/\%$
3	8 547	300	6.7
4	8 782	300	6.7
5	9 021	300	4.9

## 2.5 与文献值的比较

将本工作的数据与已有文献值比较列于表 3。由表 3 可知,本工作与 1957 年测得的数据<sup>[4]</sup>相比,吻合很好,但测量精度更高;1990 年,Abzouzi 等<sup>[6]</sup>测得数据为(14.224±0.008) min,测量结果比本工作的结果偏大,可能是由于没有进行母子体分离而直接用 HPGe 探测器跟踪测量,虽然给出的相对不确定度为 0.5%,但是该数据值得质疑。

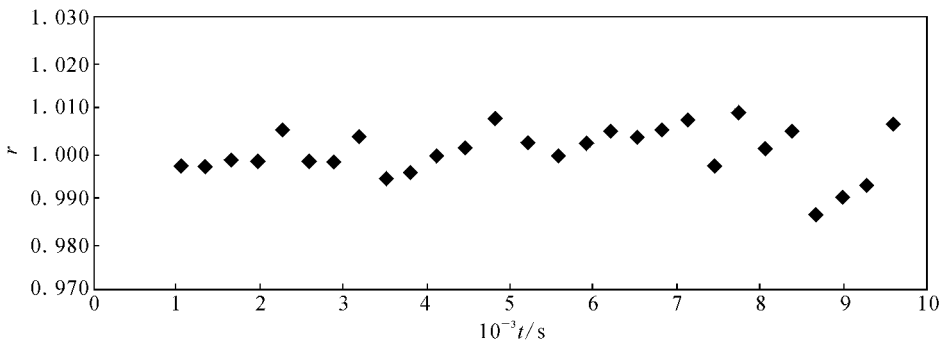


图 3 第三次测量结果的  $r$  与  $t$  的关系图

Fig. 3 Relationship of  $r$  and  $t$  of the third measurement

## 3 结论

采用位置接续的办法用 HPGe  $\gamma$  谱仪跟踪 306.8 keV 的  $\gamma$  射线,进行了 5 次独立测量。分

别采用平移法、R-值法和迭代法进行处理,得  $^{101}\text{Tc}$  的半衰期为(14.02±0.01) min。将数据点之间的差别放大检验,证明了结果的可靠性。

表 3 本工作与文献值比较

Table 3 Comparison between our work and others

年(Year)	$T_{1/2}/\text{min}$	探测器(Detector)	制备方法(Preparation method)	参考文献(References)
1948	14.5	G-M	$^{102}\text{Ru}(\gamma, p)^{101}\text{Tc}$	[1]
1948	$16.5 \pm 0.5$	G-M	$^{102}\text{Ru}(\gamma, p)^{101}\text{Tc}$	[2]
1954	$14.3 \pm 0.1$	G-M	$^{100}\text{Mo}(n, \gamma)^{101}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{101}\text{Tc}$	[3]
1957	$14.0 \pm 0.1$	NaI	$^{101}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{101}\text{Tc}$	[4]
1960	$15 \pm 3$	正比计数器 (Proportion counter)	$^{103}\text{Rh}(n, ^3\text{He})^{101}\text{Tc}$	[5]
1990	$14.224 \pm 0.008$	HPGe	$^{100}\text{Mo}(n, \gamma)^{101}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{101}\text{Tc}$	[6]
2008	$14.02 \pm 0.01$	HPGe	$^{100}\text{Mo}(n, \gamma)^{101}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{101}\text{Tc}$	本工作(Our work)

## 参考文献:

- [1] Perlman M L, Friedlander G. Relative Yields of Some X-Ray Induced Nuclear Reactions[J]. Phys Rev, 1948, 74: 442-448.
- [2] Mock D L, Waddell B C, Fagg L W, et al. Photo-Induced Reactions at 20 MeV[J]. Phys Rev, 1948, 74: 1 536.
- [3] Wiles D R. Search for the Isomeric in  $^{101}\text{Tc}$  and Identification of Energy Levels [J]. Phys Rev, 1954, 93: 181-182.
- [4] O' Kelley G D, Larson Q V, Boyd G E. Decay Chain  $^{101}\text{Mo}$ - $^{101}\text{Tc}$ [J]. Bull Am Phys Soc, 1957, 2 (1): 24.
- [5] Kumabe I, Poularikas A D, Preiss I L, et al. (n,  $^3\text{He}$ )Reaction of Medium Weight Nuclei Induced by 14.8 MeV Neutrons[J]. Phys Rev, 1960, 117(6): 1 568.
- [6] Abzouzi A, Antony M S, Ndocko Ndongue V B, et al. Redetermination of Several Half-Lives[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1990, 145: 361-364.
- [7] 毛国淑, 张生栋, 杨 磊, 等.  $^{132}\text{I}$  半衰期的测量[J]. 核化学与放射化学, 2005, 27(4): 216-219.
- [8] 王世联, 常永福, 卢嘉春, 等.  $^{138}\text{Cs}$  半衰期的测定[J]. 核电子学与探测技术, 2005, 25 (6): 795-797.
- [9] 张小林, 王世联, 凡金龙, 等.  $^{101}\text{Mo}$  半衰期的测定[J]. 核电子学与探测技术, 2006, 26 (6): 893-895.
- [10] Firestone R B, Shirley V S, Baglin C M, et al. 8th Edition of the Table of Isotopes[M]. US: John Wiley & Sons, Inc., 1996.