

# 新丰中子同位素 $^{186}\text{Hf}$ 的分离与鉴别\*

李宗伟 杨维凡 袁双贵 何建军 马桃桃

方克明 沈水法 甘再国 徐岩冰

(中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

利用入射能量为  $60\text{ MeV/u}$  的丰中子 $^{18}\text{O}$  轰击天然钨样品, 通过快速放射化学分离 ( $\text{BaHfF}_6$  沉淀) 和  $\gamma$  谱测量技术首次合成并鉴别了新丰中子核素 $^{186}\text{Hf}$ 。使用递次衰变分析程度对测得的母子体生长-衰变曲线进行拟合, 得到了新丰中子同位素 $^{186}\text{Hf}$  的半衰期为  $(2.6 \pm 1.2)\text{ min}$ 。本流程中, 元素  $\text{Hf}$  的化学产额大于  $60\%$ , 对元素  $\text{Ta}$  的去污因子大于  $10^2$ 。

关键词 多核子转移反应 快速化学分离  $\text{BaHfF}_6$  沉淀 合成与鉴别

中图分类号 O · 571.421

靶核和炮弹间的多核子转移反应是产生质量数  $A > 170$  区新丰中子核素的有效方法之一。文献[1]利用中能丰中子炮弹同重靶核的多核子转移反应并结合快速化学分离技术合成和鉴别了数个  $A > 170$  区的新丰中子核素。由于质量数  $A > 170$  区的一些贵金属元素属于高温难熔元素, 利用物理测量技术与快速化学分离方法的有效结合适宜于这一区域新同位素的研究工作。对它们的研究, 可以加深对这些核素核结构的认识, 从而为改进核理论模型提供重要的实验依据。文献[2~4]报道了分离元素钨的方法, 如沉淀法、溶剂萃取法和离子交换法等, 但它们的分离时间比较长 ( $10\sim 20\text{ min}$ )。鉴于理论估算新丰中子同位素 $^{186}\text{Hf}$  的半衰期为  $0.5\sim 10\text{ min}$  [5], 因此必须在较短的时间内将目标核从靶物质和大量的干扰元素中分离出来。本实验采用  $\text{BaHfF}_6$  沉淀法 [2] 作为元素钨的分离方法, 并结合  $\gamma$  谱测量技术进行新丰中子同位素 $^{186}\text{Hf}$  的分离和鉴别。

## 1 实验部分

### 1.1 化学试剂及仪器

$\text{HNO}_3$ , AR, 质量分数为  $63\%\sim 68\%$ ;  $\text{HF}$ , AR, 质量分数为  $40\%$ ; 天然钨粉, 质量分数为  $99.85\%$ , AR;  $\text{La}(\text{NO}_3)_3$  和  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , AR; 金属钨粒,  $w(\text{Hf}$  和  $\text{Zr}) > 99.92\%$ , 其中  $w(\text{Zr}) = 1.7\%$ ; 甲基异丁基酮 (MIBK), 使用前用浓盐酸平衡。

\* 国家自然科学基金和中国科学院资助项目

收稿日期: 1997-12-23 收到修改稿日期: 1998-04-23

李宗伟: 男, 34 岁, 核化学专业, 助理研究员

LXJ64-1 型离心机, PC-CAMAC 多参数数据获取系统, 平面型 GM X 探测器等。

## 1.2 样品的照射及化学分离

在中国科学院近代物理研究所的重离子回旋加速器(HRFL)上, 用入射能量为 60 MeV/u 的丰中子  $^{18}\text{O}$  束流轰击 2 g 天然钨样品。实验中的束流强度为 20~40 enA, 每个样品照射 10 min。照射结束后, 用气动“跑兔”传输装置<sup>[6]</sup>将辐照后的样品快速传送到化学实验室进行化学分离。Hf 的分离和纯化流程如下:

(1) 将辐照后的样品放入含 4 mL 浓 HF 的聚乙烯烧杯中, 滴加 3 mL 浓  $\text{HNO}_3$  溶液。待靶样品溶解后, 在搅拌下加 2 mg  $\text{La}^{3+}$  载体, 用蒸馏水稀释至 15 mL。将溶解液转入 20 mL 聚乙烯离心试管中, 离心 30 s, 以除去氟化物沉淀(稀土元素)。

(2) 将上层清液转入盛有经浓盐酸平衡后的 15 mL M BK 的分液漏斗中, 萃取 20 s, 弃去有机相, 保留水相。这一步主要除去元素 Ta<sup>[7]</sup>。

(3) 将水相转入含有 2 mL 饱和  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  和 1 mg Hf 的聚乙烯离心试管中, 用聚乙烯棒搅拌, 离心 30 s, 弃去上清液。

(4) 用 10 mL 1 mol/L  $\text{HNO}_3$ -浓 HF 的混合液洗涤沉淀一次, 并用内径为 24 mm 的可拆卸过滤器(自加工)过滤  $\text{BaHfF}_6$  固体源, 并立即开始  $\gamma$  测量。

上述分离流程的化学产额大于 60%, 整个流程的化学分离时间为 5~6 min。

## 1.3 数据获取

将化学分离后的 Hf 源( $\text{BaHfF}_6$ )放入一屏蔽铅室中, 用一台探测效率为 25% 的 GM X-HPGe 探测器(在  $^{60}\text{Co}$  源的 1332 keV 处, 其能量分辨率为 2.0 keV)和 PC-CAMAC 多参数数据获取系统<sup>[8]</sup>进行测量和数据获取, 测量的  $\gamma$  射线时间序列谱记录在磁盘上。新丰中子核素  $^{186}\text{Hf}$  的指定主要是根据其子体  $^{186}\text{Ta}$   $\gamma$  射线的活度随时间的变化。由于子体核素  $^{186}\text{Ta}$  的半衰期为 10.5 min<sup>[9]</sup>, 因此, 每个 Hf 样品源的测量时间持续 25 min, 以期获得  $^{186}\text{Hf}$  的子体核  $^{186}\text{Ta}$  的生长-衰变曲线, 从而确定母体核  $^{186}\text{Hf}$  的半衰期。

## 2 结果与讨论

### 2.1 化学回收率及去污因子的确定

使用  $^{179}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 25.1$  d) 和  $^{181}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 42.4$  d) (天然 Hf 样品在中国原子能科学研究院的反应堆上照射) 作 Hf 的示踪剂, 用 454 keV ( $^{179}\text{Hf}$ , 分支比为 65%) 和 482 keV ( $^{181}\text{Hf}$ , 分支比为 81%) 能量的  $\gamma$  射线作确定化学回收率的监测峰。取适量示踪剂和 1 mg Hf, 利用上述分离流程对 Hf 进行分离, 得到  $\text{BaHfF}_6$  固体源, 将该源置于高纯锗探测器前进行测量。同时在一聚乙烯试管中, 加入同样量的示踪剂和 Hf 以及饱和  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2 + 3$  mL 浓 HF 溶液, 用聚乙烯棒搅拌, 用内径为 24 mm 的可拆卸过滤器过滤  $\text{BaHfF}_6$  沉淀, 得到固体源, 并放在探测器的同一位置测量相同时间, 这样两个样品对应能量的峰下面积之比, 即为所需的化学回收率。

在近代物理研究所的高压倍加器上, 用能量为 14 MeV 的中子轰击一定量的天然钨样品, 使用注量率为  $1 \times 10^{14} / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$  的中子持续照射靶样品 6 h, 将照射后的样品用浓 HF 和  $\text{HNO}_3$  混合液溶解。按照上述化学回收率确定的方法, 利用  $^{184}\text{Ta}$  核 ( $T_{1/2} = 8.7$  h) 的最强  $\gamma$  射线的 414 keV (分支比为 74%) 作示踪核来确定元素 Ta 的去污因子。其结果为 Ta 的去污因子大于  $10^2$ 。

从化学分离后和未分离的  $\gamma$  谱对比可知: 由于中能重离子核反应具有十分复杂的反应产

物, 未分离样品的  $\gamma$  谱的本底比化学分离后的  $\gamma$  谱的本底要高一百多倍, 在直接测量谱中根本看不到<sup>186</sup>Ta 的  $\gamma$  射线峰, 而将化学分离后的 50 个样品的时间序列谱进行累加, 可以明显地看到核素<sup>186</sup>Ta 的 737.5 keV  $\gamma$  峰(图 1)。从图 1 看出, 元素 Ta 在化学分离中(用 M BK 萃取)绝大部分已被分离掉。由于核素<sup>186</sup>Ta 可以通过靶核(<sup>186</sup>W)的(- p+ 1 n)反应产生, 而<sup>186</sup>Hf 是通过靶核的(- 2p+ 2n)反应产生, 其反应截面约为  $10 \times 10^{-30} \text{ m}^2$ , 比核素<sup>186</sup>Ta 的产生截面要小 1 ~ 2 个数量级, 如果分离的 Hf 样品中有过多直接产生的<sup>186</sup>Ta, 它将对<sup>186</sup>Hf 的鉴别产生严重干扰, 以致于无法将新丰中子同位素<sup>186</sup>Hf 鉴别出来。因此, 在化学分离过程中, 元素 Ta 的去污是本实验的关键。

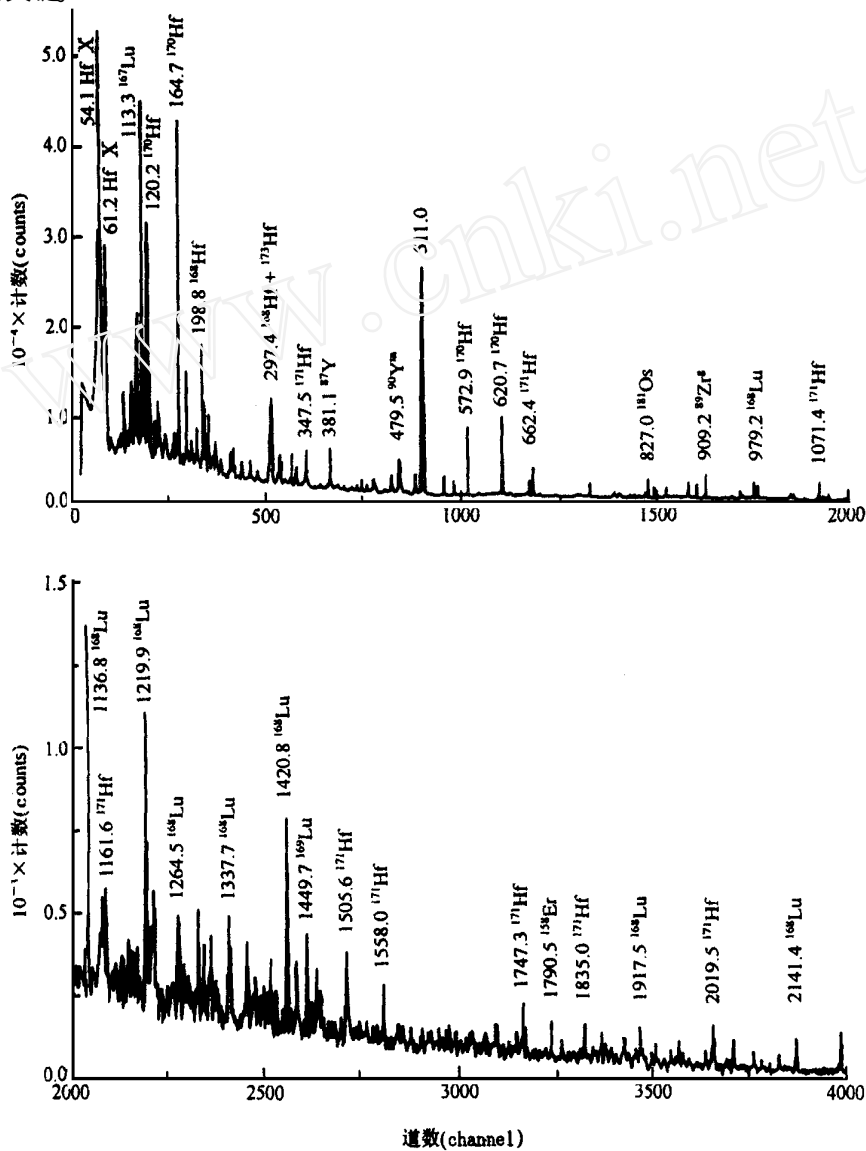


图 1 化学分离的 Hf 源的  $\gamma$  射线谱

Fig 1 The  $\gamma$ ray spectrum of hafnium from chemically separated fraction

## 2.2 $^{186}\text{Hf}$ 的鉴定

通过对 50 个时间序列单谱进行累加, 获得了总的  $\gamma$  谱。由能量、半衰期和分支比的关系, 指定能量为 737.5 keV 和 739.2 keV 的两条  $\gamma$  射线属于  $^{186}\text{Ta}$  的衰变(图 2)。由于元素 Hf 的丰中子核素具有很小的反应截面, 而其缺中子同位素的反应截面又很大, 它们通过  $\beta$  衰变至子体 Lu 的各同位素(从核素图可知: 在稳定线上的核素为稳定核, 即自然界中存在的稳定元素各同位素; 在稳定线以上的为不稳定核素(缺中子同位素), 经过一系列  $\beta$  衰变而成稳定核; 同理, 在稳定线以下的不稳定核素(丰中子同位素)将经过一系列  $\beta$  衰变而成稳定核)。在测量的  $\gamma$  时间序列谱中, 核素  $^{186}\text{Ta}$  的许多强  $\gamma$  射线被元素 Lu 的缺中子同位素峰所掩盖, 因此只能使用  $^{186}\text{Ta}$  的较强  $\gamma$  峰(737.5 和 739.2 keV)来鉴定新丰中子同位素  $^{186}\text{Hf}$  的存在, 这两条能量峰在  $\gamma$  单谱中清晰可见。仔细分析能量为 737.5 keV  $\gamma$  线的峰下面积, 并利用递次衰变分析程序进行拟合, 得到的  $^{186}\text{Ta}$  的生长-衰变曲线并示于图 3。从该曲线可知: 核素  $^{186}\text{Ta}$  确实有母体核  $^{186}\text{Hf}$  存在, 并且获得了新丰中子同位素  $^{186}\text{Hf}$ (母体核)的半衰期为  $(2.6 \pm 1.2) \text{ min}$  和  $^{186}\text{Ta}$ (子体核)的半衰期为  $(10.9 \pm 1.0) \text{ min}$ 。前者与 Staudt<sup>[5]</sup> 等的预言值相符合, 后者与文献[10]值 10.5 min 相一致。由于这一核区的丰中子核素几乎都是 100% 的  $\beta$  衰变, 而核素  $^{186}\text{Ta}$  的母体一定是  $^{186}\text{Hf}$  核。因此, 可以肯定地说  $^{186}\text{Hf}$  已经被分离和鉴别。

## 3 结 论

(1) 利用中能重离子  $^{18}\text{O}$  束流轰击天然钨样品, 靶核通过多核子转移反应  $^{186}\text{W} (^{18}\text{O}, -2\text{p} + 2\text{n}) ^{186}\text{Hf}$  首次合成并鉴别了新丰中子同位素  $^{186}\text{Hf}$ , 并测得它的半衰期为  $(2.6 \pm 1.2) \text{ min}$ 。

(2) 本化学流程可在短时间内(6~7 min)从复杂的反应产物中分离出元素 Hf, 且有较高的化学产额(>60%), 而且元素 Ta 的去污因子大

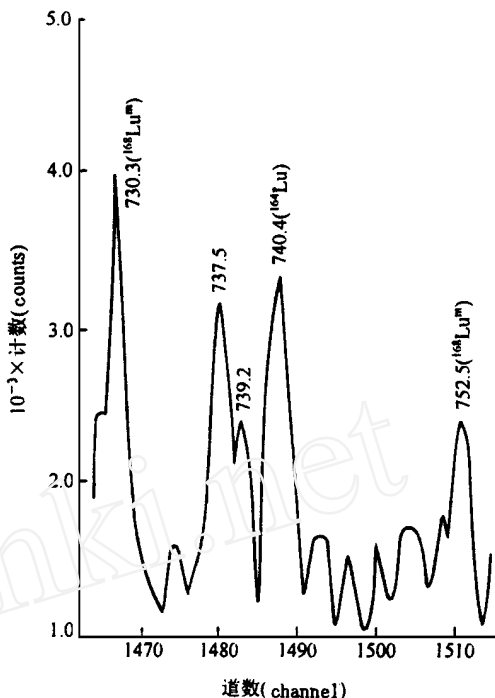


图 2 分离的 Hf 样品的部分  $\gamma$  谱

Fig 2 Part of  $\gamma$  ray spectrum of separated hafnium fraction

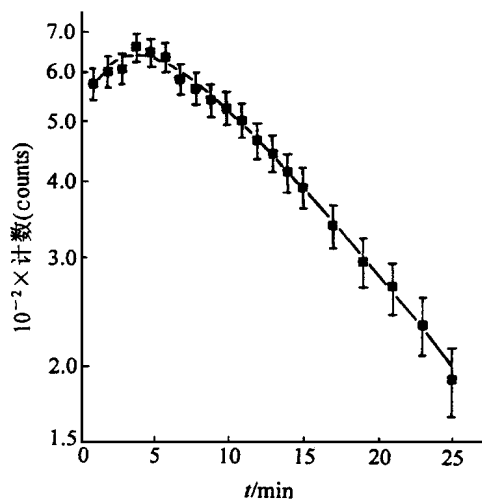


图 3  $^{186}\text{Ta}$  的 737.5 keV  $\gamma$  射线的生长-衰变曲线

Fig 3 Growth-decay curve for 737.5 keV  $\gamma$  rays of  $^{186}\text{Ta}$

于 $10^2$ 。

感谢 HIRFL 加速器运行人员对本实验提供的高品质束流和在实验过程中给予的有效合作。

### 参 考 文 献

- 1 Luo Yixiao. Synthesis and Study of Neutron-rich Nuclides. Nucl Phys, 1995, A 583: 837c
- 2 Huffman EH, Iddings GM, Osborne RN, et al. Extraction of Zirconium and Hafnium With Various Fluorinated  $\beta$ -Diketones. J Am Chem Soc, 1955, 77: 881
- 3 Rerz ER, Caretto AA. Neutron-deficient Nuclides of Hafnium and Lutetium. Phys Rev, 1961, 122: 1558
- 4 Bakhru H. The Decay of  $^{183}\text{Hf}$  and Nuclear Spectroscopy of  $^{183}\text{Ta}$ . Phys Rev, 1966, 142: 719
- 5 Staudt A, Bender E, Muto K, et al. Second-generation Microscopic Prediction of Beta-decay Half-lives of Neutron-rich Nuclei. Atom Data Nucl Data Tables, 1990, 44: 79
- 6 Yuan Shuanggui, Zhang Tianmei, Pan Qiangya, et al. A New Neutron-rich Nuclide  $^{185}\text{Hf}$ . Z Phys, 1993, A 344: 189
- 7 Zhao Zhizheng, Li Zongwei, Mou Wantong, et al. Pneumatic Conveying Plant of Target in Use. In: Wei Baowen ed. MPA Annual Report. Beijing: Atomic Energy Press, 1993. 39
- 8 李宗伟, 赵之正, 杨维凡, 等. 液-液萃取法从钨中分离钽. 核化学与放射化学, 1997, 19(2): 54
- 9 Reus U, Westmeier W. Catalog of  $\gamma$  Rays From Radioactive Decay. Atom Data Nucl Data Tables, 1983, 29: 1
- 10 Du Yifei. PC-CAMAC Multiparameter Data Acquisition System. In: Wei Baowen ed. MPA Annual Report. Beijing: Atomic Energy Press, 1990. 123

## SEPARATION AND IDENTIFICATION OF NEW NEUTRON-RICH ISOTOPE $^{186}\text{Hf}$

Li Zongwei Yang Weifan Yuan Shuanggui He Jianjun Mao Taotao  
Fang Keming Shen Shuifa Gan Zaiguo Xu Yanbing

(Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000)

### ABSTRACT

A new neutron-rich nuclide  $^{186}\text{Hf}$  is produced and identified by bombardment of natural tungsten samples with 60 MeV/u  $^{18}\text{O}$  beams using rapid radiochemical separation method and  $\gamma$  spectroscopic measurement technique for the first time. The half-life of the new neutron-rich isotope  $^{186}\text{Hf}$  is determined to be  $(2.6 \pm 1.2)\text{min}$  by a radioactive series decay analytical program to fit the growth and decay curve. The chemical yield of element hafnium is more than 60% and the decontamination factor of tantalum is higher than  $10^2$  in the chemical separation.

**Key words** Multi-nucleon transfer reaction Rapid chemical separation  
BaHfF<sub>6</sub> precipitation Production and identification