

简报

^{229}Ra 的衰变*

方克明 杨维凡 袁双贵 沈水法 牟万统 张学谦
李宗伟 钟纪泉 郭天瑞 陈展图

(中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

用 14 MeV 中子轰击钍靶, 通过 $^{232}\text{Th}(n, \alpha)^{229}\text{Ra}$ 反应产生 ^{229}Ra , 用放射化学方法从被照靶物质中分离出 ^{229}Ra 。利用 $\gamma(X)$ 谱学方法, 首次观测到了能量分别为 14.5, 15.6, 18.8, 21.8, 22.5, 44.0, 47.5, 55.0, 63.0, 69.6, 93.6, 94.1, 98.5, 102.2, 104.5, 106.1, 161.1, 171.5 keV 的 ^{229}Ra 衰变的 18 条新 γ 射线, 建立了 ^{229}Ra 的部分衰变纲图。

关键词 ^{229}Ra 符合测量 衰变纲图

自 1951 年 Depocas 等^[1]用 $^{228}\text{Ra}(n, \gamma)$ 反应首次合成 ^{229}Ra 之后, Ravn 等^[2]应用同位素分离器从 $^{232}\text{Th}(p, X)$ 反应产物中分离 ^{229}Ra , 根据 β 计数测得它的半衰期为 $(4.0 \pm 0.2)\text{min}$, 随后 Westgaard 等^[3]应用相同的合成及分离方法, 结合 β 单谱和 $\beta\gamma$ 符合测量技术测得 ^{229}Ra 的 β 端点能量为 $(1.76 \pm 0.04)\text{MeV}$, 给出其衰变能的下限为 $(1.76 \pm 0.04)\text{MeV}$, 指出 ^{229}Ra 的 β 衰变 95% 以上直接跃迁到 ^{229}Ac 的低能级态, 很可能大部分落到基态, 从而导致对 ^{229}Ra 衰变 γ 射线观测的困难。Gilat 和 Katcoff^[4]用共沉淀法和离子交换法较好地将镭从 $^{232}\text{Th}(n, X)$ 反应产物中分离出来, 但因化学分离所需时间过长, 没有得到关于 ^{229}Ra 衰变性质的更多信息, 到目前为止, 仍未得到 ^{229}Ra β 衰变的任何 γ 射线的数据。本文试图通过 $^{232}\text{Th}(n, \alpha)^{229}\text{Ra}$ 反应产生 ^{229}Ra , 应用化学分离技术并结合 γ 谱学方法测定 ^{229}Ra β 衰变的 γ 射线并给出它的部分衰变纲图。

1 实验

1.1 示踪剂制备

1.1.1 ^{234}Th 的提取 (1) 称取 2 g 老化 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 溶于 15 mL 1 mol/L HCl 中, 所

* 中国科学院八五重大项目和国家自然科学基金资助项目

收稿日期: 1996-09-12 收到修改稿日期: 1996-11-30

得溶液用 15 mL 0.1 mol/L PMBP-苯溶液萃取 1 min。分相后的有机相用相同体积的 1 mol/L HCl 洗涤一次。这一步中, ^{234}Th 被定量萃取, 铀留在水溶液中。(2) 含钍有机相用 15 mL 6 mol/L HCl 反萃两次, 合并水相, 弃去有机相。(3) 将合并后的反萃水相蒸至近干, 制成 1 mol/L HCl 溶液备用。

1.1.2 ^{228}Ra 的提取 (1) 称取 5 g 老化 $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 溶于 15 mL 6 mol/L HCl 中, 所得溶液用 30 mL 50% P_{204} -煤油溶液连续萃取 3 次, 每次萃取 1 min, 分相后弃去有机相。(2) 将含镭水溶液蒸至近干, 制成所需浓度的 HCl 溶液, 备用。

1.2 照射用硝酸钍的纯化

(1) 将 12 g 老化 $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 溶于 30 mL 7.5 mol/L HNO_3 , 所得溶液用 30 mL 40% TBP-煤油连续萃取 3 次。钍进入有机相, 镭留在水溶液中。合并有机相, 用 30 mL 7.5 mol/L HNO_3 洗涤一次。

(2) 有机相用 30 mL 0.1 mol/L HNO_3 连续反萃 5 次, 合并含钍水相。

(3) 按(1)和(2)处理 500 g $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 将处理好的含钍水溶液合并, 在电炉上蒸至近干, 然后在红外灯下烤干, 得到不含镭的 $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ 作靶材料。

1.3 照射

实验在本所 Cockcroft-Walton 加速器上进行。用 14 MeV 中子照射硝酸钍, 平均中子注量率为 $1 \times 10^{14} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 每次照射 5 g $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$, 持续照射 10 min。照射结束后, 用“跑兔”装置将靶传送到化学实验室。共照射 81 个靶。

1.4 化学分离

(1) 将照射过的 5 g $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ 靶溶于 6 mL 含 Zr, Cs, La 载体的沸腾的 7.5 mol/L HNO_3 中, 转入 50 mL 离心试管后, 在冰浴中冷却。加入 1 mL 饱和 BaCl_2 溶液, 搅匀。再加入 15 mL 体积比为 5:1 的 HCl-乙醚溶液, 在冰浴中不断搅拌下冷却。镭与 BaCl_2 共沉淀, 离心分离, 弃去上层清液。

(2) BaCl_2 沉淀用 3 mL 热蒸馏水溶解后, 加入 15 mL 5:1 HCl-乙醚溶液, 在冰浴中冷却, 再次使 BaCl_2 沉淀, 离心分离, 弃去上层清液。

(3) 重复(2), BaCl_2 沉淀用可拆卸漏斗过滤, 制成固体测量源。全程化学分离时间为 6-8 min。

1.5 测量

照射结束后约 8 min 可开始 γ 活度测量, 用一台小平面 HPGe 低能 $\gamma(X)$ 探测器和一台 GMX HPGe 探测器分别对固体源进行 X、 γ 单谱的时间序列谱以及 X- γ γ - γ 符合测量, 每个样品持续测量 12 min。小平面 HPGe 低能 $\gamma(X)$ 探测器对 ^{57}Co 的 122 keV 能量的分辨率为 580 eV, GMX HPGe 探测器对 ^{60}Co 的 1332 keV 能量的分辨率为 2.0 keV。用本所研制的 PC-CAMAC 多参数数据获取系统记录单谱和符合事件, 测量数据储存在磁盘上。

2 结果与讨论

市售钍试剂中存在 ^{232}Th 的衰变子体 ^{228}Ra 和 ^{224}Ra , 这两种镭同位素又有一系列的 γ 放射性子体。它们的存在将干扰实验中 ^{229}Ra 衰变产生的 X 和 γ 射线的测量, 必须预先将它们除去。用 ^{234}Th 和 ^{228}Ra 的示踪实验显示, 在本文给出的钍靶纯化过程中, 测得钍的每一步的萃取效率

约为 90%, 反萃效率约为 80%。钍的损失主要在用 7.5 mol/L HNO_3 洗涤这一步。纯化后的硝酸钍中镭的去污系数为 430。

$\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ 在照射中除了含有产生的镭同位素外, 主要还有 $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ 和 $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$ 反应产生的 ^{231}Th 和 ^{233}Th 以及钍的裂变产物。这些产物有很强的 γ 放射性, 而预期 ^{229}Ra 的 γ 活度可能非常弱。为了更好地观测 ^{229}Ra 衰变的 γ 射线, 必须尽可能地将镭与干扰核素杂质分离。其中最困难的是与同族元素钡和锶的分离。用离子交换法可将镭与钡和锶完全分离, 但是这种方法比较费时, 而 ^{229}Ra 的半衰期只有 4 min。本文采用 BaCl_2 沉淀载带镭, 测得的 γ 射线单谱显示除钡和锶的 γ 射线外, 未发现其他核素的 γ 射线。用 ^{228}Ra 做示踪剂, 测得从照射过的钍靶中提取镭的收率为 $73\% \pm 5\%$ 。

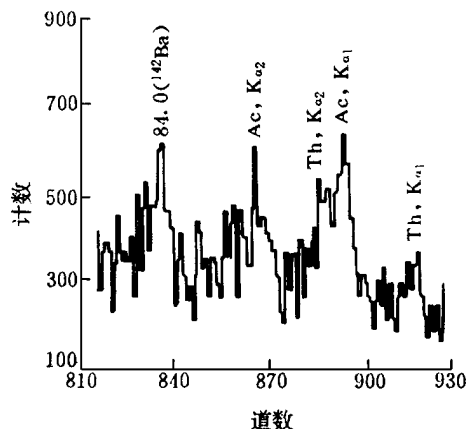


图 1 Ac X 射线谱

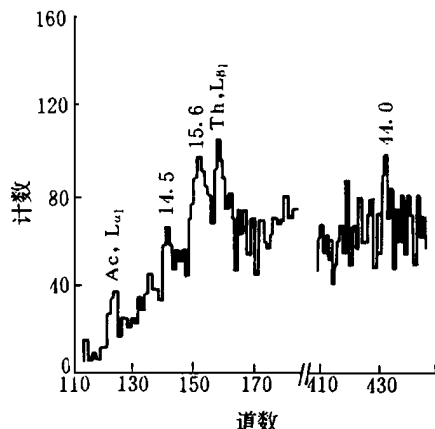
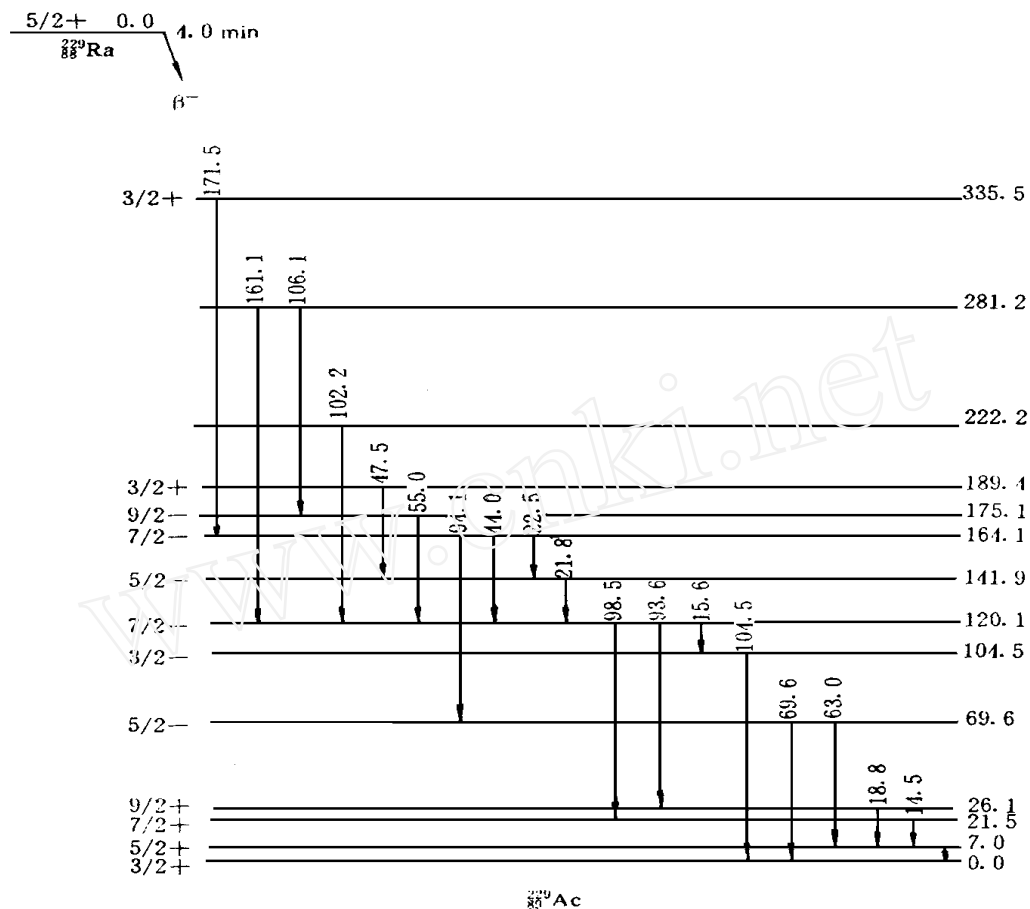


图 2 与 Ac $K\alpha$ X 射线符合的部分 γ 射线谱

从 $\gamma(X)$ 射线单谱(图 1)中观测到了 $\text{Ac } K\alpha_1$ 和 $\text{Ac } K\alpha_2$ 的 X 射线, 测得它们的半衰期约为 4 min, 这表明上述两条 X 射线主要来源于 ^{229}Ra 的 β 衰变。在用 $\text{Ac } K\alpha_1$ X 射线峰开门所得到的符合 γ 射线谱(图 2)中, 我们观测到了 3 条 γ 射线(14.5, 15.6 和 44.0 keV)。在此基础上, 分别用这 3 条 γ 射线开门, 又发现了与它们有符合关系的另外 15 条 γ 射线, 它们的能量分别为 18.8, 21.8, 22.5, 47.5, 55.0, 63.0, 69.6, 93.6, 94.1, 98.5, 102.2, 104.5, 106.1, 161.1 和 171.5 keV。上述 18 条 γ 射线均是首次观测到的。在这些 γ 射线的能量、符合关系以及能量总合关系的基础上, 我们推荐了一个 ^{229}Ra 的部分衰变纲图(图 3), 图中的大部分能级与 Thompson 等^[5]在 $^{230}\text{Th}(t, \alpha)^{229}\text{Ac}$ 反应的在束 γ 研究获得的 ^{229}Ac 的能级基本一致, 实验还发现了 ^{229}Ac 的 4 条新能级, 其能量分别为 21.5, 141.9, 175.1 和 222.2 keV。

由于 14 MeV 中子引起 ^{232}Th 裂变时, 钡和锶有较高的裂变产额, 在含镭的氯化钡样品的 γ 射线单谱中, 钡和锶同位素的 γ 活度非常强, 它们对 ^{229}Ra γ 射线的测量产生了严重干扰。我们计划采用高压离子交换技术使镭与钡、锶分离后, 再进行 ^{229}Ra 衰变性质的研究, 预期将得到更精确的 ^{229}Ra 的衰变纲图。

图3 ^{229}Ra 的部分衰变纲图

致谢: 我们衷心感谢我所加速器人员的大力支持。

参 考 文 献

- 1 Depocas F, Harvey BG Preparation of ^{229}Ra and ^{229}Ac Phys Rev, 1952, 85: 499
- 2 Ravn HL, Sundell S, Westgaard L, et al Short-lived Isotopes of Alkali and Alkaline-earth Elements Studied by On-line Isotope Separator Techniques J Inorg Nucl Chem, 1975, 37: 383-393
- 3 Westgaard L, Aleklett K, Nyman G, et al Beta-Decay Energies and Masses of Short-lived Isotopes of Rubidium, Caesium, Francium and Radium. Z Physik A, 1975, 275: 127-144
- 4 Gilat J, Katcoff S Decay of ^{230}Ra and ^{230}Ac J Inorg Nucl Chem, 1978, 40: 369-375
- 5 Thompson RC, Wilcke W, Huizenga JR, et al Levels of Isotopes $^{233, 235, 237}\text{Pa}$ and $^{229, 231}\text{Ac}$ Studied by the (t, α) Reaction Phys Rev C, 1977, 15: 2019

THE DECAY OF ^{229}Ra

Fang K en i ng Yang W e i f a n Yuan S h u a n g g u i Shen S h u i f a M o u W a n t o n g

Zhang X u e q i a n L i Z o n g w e i Zhong J i q u a n G u o T i a n r u i C h e n Z h a n t u

(*Institute of M o d e r n P h y s i c s , t h e C h i n e s e A c a d e m y o f S c i e n c e s , L a n z h o u 7 3 0 0 0 0*)

ABSTRACT

^{229}Ra is produced in the $^{232}\text{Th}(n, \alpha)^{229}\text{Ra}$ reaction using 14 MeV neutron irradiation of natural thorium. The ^{229}Ra activities are radiochemically separated from the irradiated target material. 18 new γ rays of ^{229}Ra decay with the energies of 14.5, 15.6, 18.8, 21.8, 22.5, 44.0, 47.5, 55.0, 63.0, 69.6, 93.6, 94.1, 98.5, 102.2, 104.5, 106.1, 161.1, 171.5 keV are found for the first time. A partial decay scheme of ^{229}Ra is proposed.

Key words ^{229}Ra Coincidence measurement Decay scheme

请订阅(续订)1998 年度

《核标准计量与质量》

《核标准计量与质量》是核工业标准、计量与质量管理方面综合性技术刊物,是唯一公布新颁、修订、废止的核行业标准目录的杂志。本刊的主要内容是:宣传党和国家的标准、计量、质量管理方面的方针政策,刊登核工业总公司标准、计量、质量工作的重要文件;交流开展标准、计量、质量管理工作的经验;介绍核工业科研、设计、生产和技术管理中相应的研究成果;普及技术基础知识;报道国内外相关技术及其动态。本刊内容涉及到总公司及国内从事核行业各个系统(地质、矿冶、堆工、化工、辐射安全与环保、仪器仪表、机械制造、建筑设计、企业管理……)的标准、计量、质量工作,内容丰富、信息量大,可供标准化、计量、质量工作者、科研及工程技术人员、技术管理干部和大专院校师生阅读参考。

本刊为季刊,每年定价为 30.00 元(含邮资)。银行汇款:北京工商银行海淀分理处,户名:核工业标准化技术咨询服务中心,帐号:144161—52。邮汇请寄:北京 982 信箱 《核标准计量与质量》编辑部(邮编:100091),电话:62633542。