

从递次衰变子体的 γ 放射性 提取同位素独立截面*

郑继文 张 立 赵进华 胡青元

(中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

研究了从放射性产物或其递次衰变子体的 γ 放射性测量来提取第一代产物独立截面的技术。它适用于在束快化学元素分离样品中同位素独立截面的确定。运用这套技术进行了 600 MeV ^{18}O 轰击厚天然铅靶后分离出来的汞同位素分布的测量, 共得到从 ^{180}Hg 至 ^{209}Hg (20) 余种同位素的独立截面。

关键词 Hg 同位素 独立截面 递次衰变子体 γ 放射性

中图分类号 O · 571.41

在 600 MeV ^{18}O 束流轰击熔融的天然铅靶的实验中, 用在束气相热色谱分离方法实现了汞同位素产物的快速、高效和高灵敏度的分离, 共探测到 20 余种生成的放射性汞同位素^[1,2]。在此过程中尤其考虑到对大量产物的独立截面的提取, 这是由于独立截面可直接联系到核碰撞、激发及随后的粒子蒸发后的产物分布, 这对核反应机制的了解是非常重要的^[3,4]。

对放射性产物独立截面的提取, 可通过对其 γ 放射性的测量来进行。而对 γ 放射性的观察, 往往遇到以下几方面的困难: (1) 第一代产物寿命太短, 从辐照结束到测量开始有一段必不可少的时间延迟, 导致其放射性测量的困难; (2) 第一代产物的 γ 衰变纲图未建立或特征 γ 线的绝对强度未知; (3) 第一代或第二、三代产物没有适宜观测的 γ 线, 特征 γ 线均太弱或重叠严重且无法分解。本文旨在研究从递次衰变子体的 γ 放射性提取同位素产物独立截面的技术。

1 实验部分

实验中采用 600 MeV 的 ^{18}O 束流照射天然铅靶, 束流的平均强度为 2.2 μA 。为了尽早地截断 β 衰变链, 采用在束气相热色谱的分离方法从正在被辐照的铅靶中瞬即分离出汞元素产物。它具有快速、高效、高选择性的特点。这一技术的运用使 Hg 产物的脱出、传输及到达收集器的

* 国家自然科学基金和中国科学院八五重大项目资助。

收稿日期: 1997-11-03 收到修改稿日期: 1998-06-15

郑继文: 男, 61 岁, 原子核物理专业, 本科, 研究员

时间缩短到了数秒的量级。通过对热色谱传输管尾端温度的控制,使反应中产生的易挥发性产物 Tl, At, Po 等沉积在管壁的不同部分而仅有 Hg 能到达置于传输管后面的收集器, Hg 同位素的收集总效率平均约为 80%。这样既屏蔽掉了来自 Tl 以上元素沿 β 衰变链向缺中子 Hg 同位素的馈送,又避开了直接生成的 Tl 对丰中子 Hg 同位素 β 衰变子体 Tl 的干扰^[5,6],从而使得由 Hg 同位素及其递次衰变子体的 γ 放射性提取大量独立截面成为可能。对缺中子 Hg 同位素,其母体 Tl 的半衰期均在十多秒至数十秒以上,远大于与 Hg 同位素的分离时间,因而可忽略它对缺中子 Hg 同位素的馈送;对丰中子 Hg 同位素,其母体 Au 滞留在靶中不挥发出来,可不断地通过 β 衰变向 Hg 同位素馈送,只有当 Au 的半衰期远大于辐照时间时,才可忽略其贡献。

根据待测 Hg 同位素寿命分布,采用 2 组不同的辐照-测量方案。第一组辐照时间为 120 s,测量时间 420 s,时间序列谱的计谱时间单元为 20 s,共完成了 143 个循环;第二组辐照时间为 92 min,跟踪测量时间约 40 h,计谱时间单元依次为 5、20、120 min 不等,进行了 3 个循环。

传统的 γ 解谱、分析程序^[7,8]适宜进行大批量 γ 谱的处理,只能给出少数产物的独立截面。本工作中根据实验要求和目的,发展了一套解谱程序,它适于进行强度很弱、 γ 峰能量位置已知、且有严重重叠的 γ 谱的分解。

2 基本原理

要由递次衰变子体的 γ 放射性提取直接生成核的独立产额,首先要了解实验条件下生成核生长、衰变的整个过程。

首先讨论辐照过程(对本实验的情况就是 Hg 产物及其子体的生长、衰变过程)。忽略照射束流强度的涨落,在辐照期间 t 时刻生成的第一代放射性原子核数 $N_1(t)$ 随时间的变化为^[9]:

$$N_1(t) = \frac{P}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}), \quad (1)$$

P 为该同位素生成率, λ 为其衰变常数。

对第二代产物,一方面以速率 λN_1 从第一代产生,另一方面又以 λN_2 衰变到第三代,解有关微分方程,得第二代产物随时间的变化为:

$$N_2(t) = \frac{P}{\lambda} \left[1 + \frac{\lambda}{\lambda - \lambda} e^{-\lambda t} + \frac{\lambda}{\lambda - \lambda} e^{-\lambda t} \right], \quad (2)$$

λ 为第二代产物的衰变常数。

与以上推导相似,求得第 I 代产物随时间的变化为:

$$N_I(t) = \frac{P}{\lambda} \left[1 + (-1)^I \prod_{i=1}^{I-1} \left[\frac{\lambda}{(\lambda - \lambda_i)} e^{-\lambda_i t} \right] \right], \quad (3)$$

辐照结束后,蜕变过程即开始。此时各核素的衰变及其 β 衰变链的贡献均可按核衰变及递次衰变规律来处理。考虑一条 β 衰变链,设辐照结束时第一代产物的核数为 N_1^0 ,则第 I 代产物随时间的变化为:^[9]

$$N_I(t_d) = (-1)^{I-1} \prod_{i=1}^{I-1} \lambda_i N_1^0 \left[\prod_{j=1}^I e^{-\lambda_j t_d} / \prod_{j=i}^I (\lambda - \lambda_j) \right]. \quad (4)$$

综合从辐照结束计起的以不同代产物为起点的各 β 衰变链, t_d 时刻第 I 代产物的原子核总数 $N_I(t_d)$ 可表示为:



$$N_I(t_d) = \prod_{k=1}^I (-1)^{I-k} \left[\prod_{i=k}^{I-1} \lambda_i \right] N_k^0 \times \left[\prod_{i=k}^I e^{-\lambda_i t_d} / \prod_{j=i}^I (\lambda_j - \lambda_i) \right]. \quad (5)$$

(5) 式中的 $N_I(t_d)$ 可通过实验测得的相应的 γ 放射性(考虑效率修正及分支比)来计算, N_k^0 为第 k 代到辐照结束时的总积累量。将(3)、(5)式结合, 我们可看出, 只要得出 t_d 时刻的 $N_I(t_d)$, 就可求出第一代同位素(Hg)的生成率 P , 再由式^[9]

$$P = nI\sigma \quad (6)$$

求出独立截面 σ 来。式中 n 为单位面积有效靶核数, I 为辐照束流强度。

3 应用举例

第一代产物的独立截面, 可通过对任一适于观察的子体的 γ 放射性的测量来求得。运用此技术对 Hg 同位素逐个进行了分析处理。下面仅就几种有代表性的例子具体阐述对独立截面的推算过程。

3.1 ^{183}Hg 独立截面的提取

^{183}Hg 的截面可通过其第五代子体 ^{183}Os 的 γ 放射性来提取。 ^{183}Hg 与其子体的衰变关系示于图 1^[11]。半衰期为 9.4 s 的 ^{183}Hg 自身的 γ 放射性, 在本实验条件下无法观察到, 这是因为辐照停止到测量开始有 45 s 的平均间隔时间。另一方面, 由于 ^{183}Hg 的产额在整个 Hg 同位素分布中是较低的, 它的短寿命子体的观察亦较为困难。第四代子体 ^{183}Ir 虽有较长的半衰期, 但主要的能量为 228.5 keV 和 282.4 keV 的两条 γ 线均存在复杂干扰。第五代子体 ^{183}Os 的基态及同质异能态均有较长的半衰期(图 1), 可在长时间辐照后积累起较高的放射性, 因此选择 $^{183}\text{Os}^g$ 和 $^{183}\text{Os}^m$ (第二组辐照条件下的谱) 作为观测目标。 $^{183}\text{Os}^m$ 的情况比较简单, 它的最强的一条是分支比为 50.0% 的 1102 keV γ 线。可能的干扰有: 半衰期为 53.0 s、分支比为 0.6% 的 1100.5 keV 的 ^{183}Au 的一条弱 γ 线及半衰期为 3.02 h、分支比为 0.90%、能量为 1103.5 keV 的另一条 ^{184}Ir 弱 γ 线^[2,10]。 ^{183}Au 对此 γ 峰的干扰随时间急剧衰减, 而 ^{184}Ir 在测量开始一段时间后也可忽略不计。因此只需将 1102 keV γ 峰的强度的测量点按(5)式作 $^{183}\text{Os}^m$ 的生长衰变拟合, 拟合曲线示于图 2(a)。

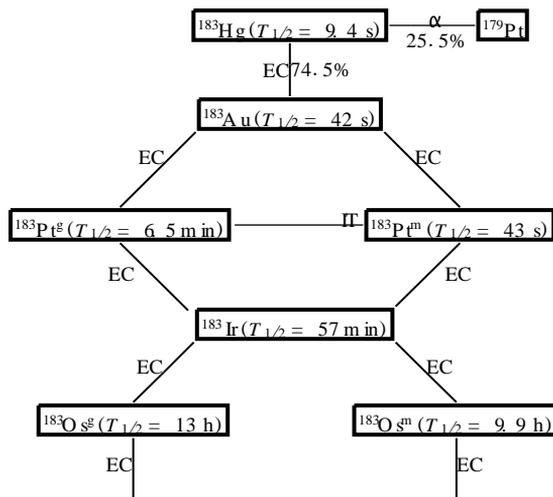


图 1 ^{183}Hg 的递次衰变

Fig 1 Successive decay of ^{183}Hg

$^{183}\text{Os}^g$ 分支比最高的 γ 线是 381.1 keV, 此能量的 γ 线附近可能混有的其它成分为^[2]: (1) 能量为 381.4 keV, 半衰期为 10.2 d, 分支比为 7.47% 的 ^{188}Pt 的 γ 线; (2) 能量为 381.6 keV, 半衰期为 3.80 h, 分支比为 11% 的 $^{193}\text{Hg}^g$ 的 γ 线; (3) 能量为 381.6 keV, 半衰期为 11.8 h, 分支比为 3.1% 的 $^{193}\text{Hg}^m$ 的 γ 线。我们采用如下步骤提取 381.1 keV γ 线中的 $^{183}\text{Os}^g$ 部分。 $^{193}\text{Hg}^m$ 根据其截面进行了扣除。而 ^{188}Pt 截面远低于 ^{193}Hg , 且半衰期远大于 $^{193}\text{Hg}^g$ 和 $^{183}\text{Os}^g$, 忽略其贡献不致造成太大的误差。将所剩的 381.1 keV γ 放射性测量点作已知为 $^{193}\text{Hg}^g$ 和 $^{183}\text{Os}^g$ 二组份的最小二乘法拟合, 拟合结果与分别的组份形式在图 2(b) 中给出。将所得的 $^{183}\text{Os}^g$ 的 γ 放射性代入前面的公式, 即可求得母体 ^{183}Hg 的独立截面。

3.2 ^{190}Hg 独立截面提取

对 ^{190}Hg 独立截面进行提取时, 由于 γ 线附近大多存在着干扰, 增大了截面提取的实验误差。对某些 Hg 同位素, 通过同时使用其自身或子体的几条 γ 射线分别给出独立截面取其算术均根值的方法以减小误差。

^{190}Hg 的半衰期为 20 min, 选其 142.7 keV 的 γ 线来观察(第二套辐照条件), 可能的干扰有: (1) $E = 142.4$ keV, $T_{1/2} = 3.25$ min, 分支比为 20% 的 ^{188}Hg 的一条 γ 线; (2) $E = 141.6$ keV, $T_{1/2} = 31.5$ s, 分支比为 1.9% 的 ^{184}Hg 的 γ 线; (3) $E = 142.5$ keV, $T_{1/2} = 4.9$ h, 分支比为 0.59% 的 ^{192}Hg 的 γ 线; (4) $E = 143.0$ keV, $T_{1/2} = 2.2$ min, 分支比为 2.7% 的 ^{187}Hg 的 γ 线; (5) $E = 141.1$ keV, $T_{1/2} = 10.9$ h, 分支比为 2.62% 的 ^{189}Pt 的 γ 线。对 $^{184}, ^{187}, ^{188}\text{Hg}$, 由于半衰期短, 在开始测量时其活性贡献已不大, 而 ^{192}Hg γ 强度很低, 因此测量时最有

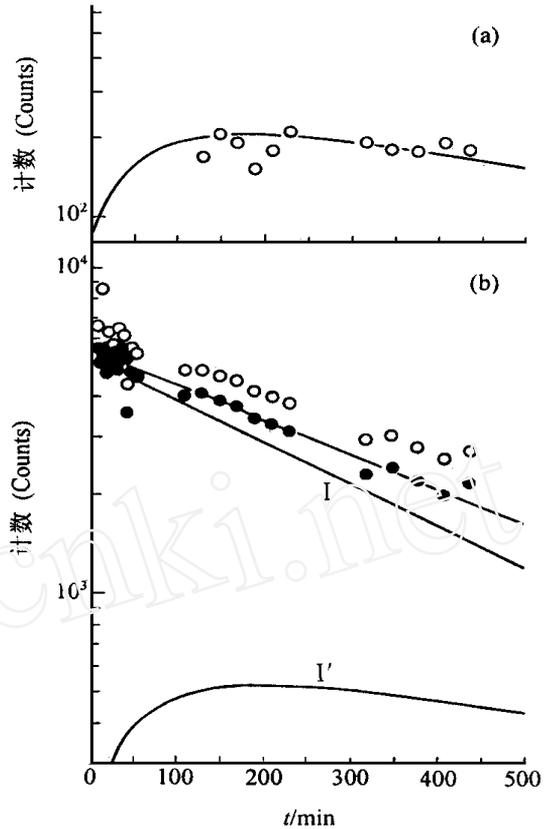


图 2 1102 keV 的 γ 放射性实验点的拟合曲线(a) 和 381.1 keV 的 γ 放射性拟合曲线(b)

Fig 2 The fitting curve for experimental data of 1102 keV γ activities (a) and The fitting curve for experimental data of 381.1 keV γ activities (b)

(b): — 实验测得的 381.1 keV 的 γ 放射性 (Experimental data of 381.1 keV γ activities), — 扣除 $^{193}\text{Hg}^m$ 后的 381.1 keV 的 γ 放射性 (Experimental data of 381.1 keV γ activities excluding contribution of $^{193}\text{Hg}^m$), I — 381.1 keV 的 γ 放射性中的 $^{193}\text{Hg}^g$ 组份 (Contribution of $^{193}\text{Hg}^g$, one component of 381.1 keV γ activities), I' — 381.1 keV 的 γ 放射性中的 $^{183}\text{Os}^g$ 组份 (Contribution of $^{183}\text{Os}^g$, another main component of 381.1 keV γ activities)

可能的干扰是 ^{189}Pt , 将它和 ^{190}Hg 与实验数据点作 2 组份拟合, 结果示于图 3。图中 ^{189}Pt 可由衰变链 $^{189}\text{Hg}^{\text{g.m}} \xrightarrow{7.6, 8.7 \text{ min}} ^{189}\text{Au} \xrightarrow{28.7 \text{ min}} ^{189}\text{Pt} \xrightarrow{10.9 \text{ h}} ^{189}\text{Ir}$ 确定^[2]。

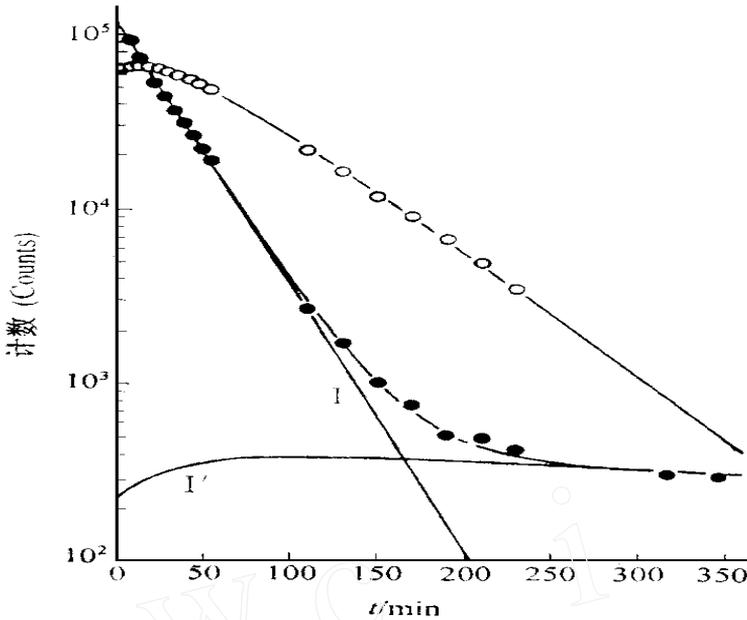


图 3 142.7 keV, 301.8 keV γ 放射性的实验点及其分别的拟合曲线

Fig 3 Experimental points of 142.7 keV, 301.8 keV γ activities and their fitting curves
 ——实验测得的 301.8 keV 的 γ 放射性 (Experimental data of 301.8 keV γ activities), ——实验测得的 142.7 keV 的 γ 放射性 (Experimental data of 142.7 keV γ activities), I ——142.7 keV γ 放射性中的 ^{190}Hg 组份 (Contribution of ^{190}Hg , one component of 142.7 keV γ activities), I' ——142.7 keV γ 放射性中的 ^{189}Pt 组份 (Contribution of ^{189}Pt , another component of 142.7 keV γ activities)

用半衰期为 42.8 min 的 ^{190}Au 的 γ 放射性来提取其母体 ^{190}Hg 的独立截面时, 我们使用它的 301.8 keV 的 γ 线, 可能的干扰成分有: (1) 能量为 301.6 keV, 半衰期为 50.8 min, 分支比为 0.9% 的 $^{191}\text{Hg}^{\text{m}}$ 的 γ 线; (2) 301.9 keV, 半衰期为 1.75 h, 分支比为 0.78 的 ^{186}Ir 的 γ 线; (3) 302.4 keV, 半衰期为 28.7 min, 分支比为 0.6% 的 ^{189}Au 的 γ 线^[2]。这些干扰的 γ 线强度都很弱, 忽略其影响, 则将 301.8 keV 的 γ 活性实验数据直接作 ^{190}Au 的单组分拟合 (图 3)。此外对 ^{190}Hg 的截面提取我们还使用了 ^{190}Hg 的 171.5 keV γ 线及 ^{190}Au 的 296 keV γ 线。取 4 条 γ 线所得结果之平均值作为 ^{190}Hg 的截面值, 这样不仅可以由于统计的加大而减少测量误差, 而且由于 γ 射线分支比不准而带来的系统误差也可得到部分消除。

3.3 ^{185}Hg 独立截面的提取

^{185}Hg 的衰变纲图虽已建立, 但特征 γ 线的绝对强度未见文献报道, 因此在进行 ^{185}Hg 的截面计算时, 我们采用核素鉴别和截面提取分开的办法。先根据特征 γ 线及半衰期鉴别 ^{185}Hg 的存在 (使用第一组辐照条件下的谱), 再由子体提取独立截面。

$^{185}\text{Hg}^{\text{g}}$ 的鉴别使用 222.8 keV 的特征 γ 线, 可能的干扰有 ^{184}Au , 222.0 keV 的一条 γ 线和另一条 $^{189}\text{Au}^{\text{g}}$, 222.0 keV 的 γ 线^[2]。 ^{184}Au 的核数可由实验测出, 将扣除 ^{184}Au 贡献后的剩余 γ

放射性做 $^{185}\text{Hg}^g$ 和 ^{189}Au 二组分的最小二乘法拟合,见图4(a)。由图中可看出,拟合曲线与实验点基本符合,从而证明了 $^{185}\text{Hg}^g$ 的存在。

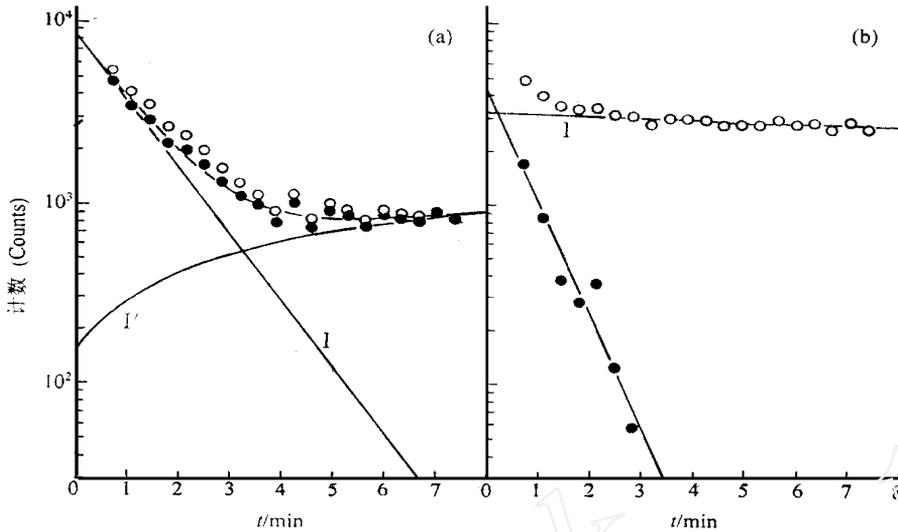


图 4 $^{185}\text{Hg}^g$ 的鉴别(a)和 $^{185}\text{Hg}^m$ 的鉴别(b)

Fig 4 Identification of $^{185}\text{Hg}^g$ (a) and $^{185}\text{Hg}^m$ (b)

- (a): — 222.8 keV 的 γ 放射性 (Experimental data of 222.8 keV γ activities), — 扣除 ^{184}Au 后的 222.8 keV γ 放射性 (Experimental data of 222.8 keV γ activities excluding contribution of ^{184}Au), I — 222.8 keV γ 放射性中的 $^{185}\text{Hg}^g$ 组份 (Contribution of $^{185}\text{Hg}^g$, one component of 222.8 keV γ activities), I' — 222.8 keV γ 放射性中的 $^{183}\text{Os}^g$ 组份 (Contribution of $^{183}\text{Os}^g$, another component of 222.8 keV γ activities)
- (b): — 包含多种成分的 211.2 keV 与 212.5 keV γ 放射性之和 (Experimental data of γ activities including both 211.2 keV and 212.5 keV), — 扣除长寿命成分贡献后的 γ 放射性 (Experimental data of γ activities excluding the contribution of long-lived isotopes), I — 长寿命成分的贡献 (The contribution of long-lived isotopes)

由于 $^{185}\text{Hg}^m$ 的2条强度较高的特征 γ 线能量太近,分别为211.2 keV和212.5 keV,分别测量容易造成较大误差,我们用它们 γ 放射性之和鉴别 $^{185}\text{Hg}^m$ 的存在。此能量附近的 γ 线还有一些,分别为:(1) 211.6 keV,半衰期17.3 min,分支比为5.4%的 ^{184}Pt 的 γ 线;(2) 212.0 keV,半衰期为3.02 h,分支比为1.85%的 ^{184}Ir 的 γ 线;(3) 212.3 keV,半衰期为4.3 min的 $^{185}\text{Au}^m$ 的 γ 线;(4) 212.6 keV,半衰期为70.9 min,分支比为12%的 ^{187}Pt 的一条 γ 线。而 $^{185}\text{Hg}^m$ 的半衰期为21 s,相比较而言,干扰成分都是些寿命较长的核素^[2,10]。我们根据实验曲线的衰变趋势减去长寿命的成分的贡献,剩下的短寿命的成分就应为 $^{185}\text{Hg}^m$ 的衰变曲线,通过测此剩余曲线的半衰期证实了 $^{185}\text{Hg}^m$ 的确存在,如图4(b)。鉴别核素后,再由递次衰变的第四代子体 ^{185}Ir 的特征 γ 线活性来推算母体的独立截面,不再赘述。

4 结果与讨论

运用这套技术对 $^{180}\text{Hg} \sim ^{209}\text{Hg}$ 全部的缺中子的和大部分丰中子的共20余种同位素的独

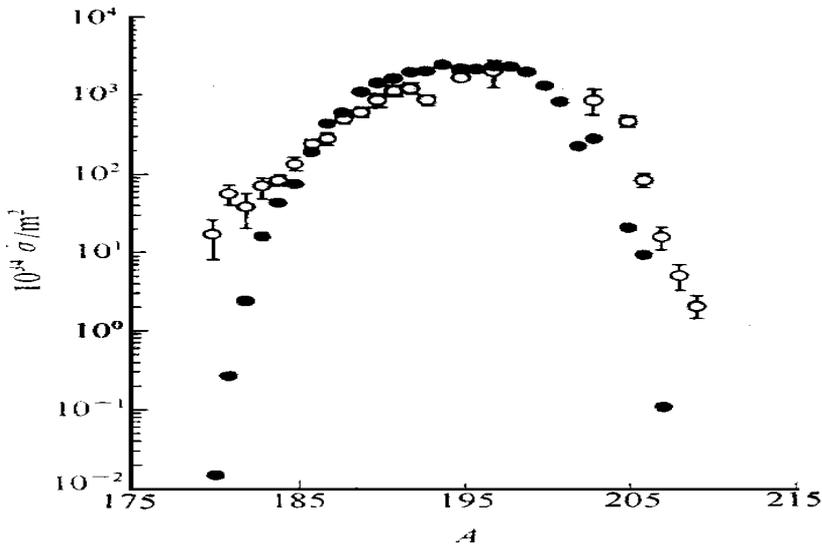


图 5 $600\text{ M eV }^{18}\text{O} + {}^{\text{nat}}\text{Pb}(\)$ 与 $600\text{ M eV } \text{P} + {}^{\text{nat}}\text{Pb}(\)$ 所得 Hg 同位素分布

Fig 5 The distribution of Hg isotopes from the reactions $600\text{ M eV }^{18}\text{O} + {}^{\text{nat}}\text{Pb}(\)$ and $600\text{ M eV } \text{P} + {}^{\text{nat}}\text{Pb}(\)$

立截面进行了提取(图 5)。截面值的误差主要包括元素分离和收集总效率的涨落,束流漂移以及计数统计误差。图中同时还给出了欧洲核子研究所(CERN)所做的 600 M eV 的质子轰击厚铅靶产生的 Hg 同位素的独立截面^[11],通过比较可以看出:

(1) 两实验观察到的同位素质量范围大致相同。所不同的是本工作采用核化学方法,故对无 γ 放射性的生成核不能给出测量截面值。而 CERN 使用的是分离器引出离子流的方法。

(2) 在质量分布峰附近,本工作所得截面系统地比 CERN 所得截面略低一些,这可归因于本实验使用的 ^{18}O 投弹平均总能量(对 $600\sim 70\text{ M eV}$ 范围平均)比质子束($600\sim 335\text{ M eV}$)低所致。

(3) 质量数在 $A = 187$ 以下的产物,质子引起的反应截面反低于 ^{18}O 引起的截面,可能的解释是 $600\sim 335\text{ M eV}$ 的质子与靶核相互作用形成全融合系统的几率比 $33.3\text{ M eV/u}\sim 4\text{ M eV/u}$ 的 ^{18}O 投弹的平均几率小得多。

(4) ^{18}O 束流所得截面的分布在丰中子一侧明显地拓宽,显示了重离子束在生成丰中子重类靶余核方面有明显的优势。

参 考 文 献

- 1 戴光曦. 核素图册. 重庆: 科学技术文献出版社重庆分社, 1987. 23
- 2 Reus U, Westmeier W. Catalog of Gamma Rays From Radioactive Decay. Atomic Data and Nuclear Data Tables, Sep. 1983, 29(2): 347~ 381
- 3 Summerer K, Bruchle W, Morrissey DJ, et al Target Fragmentation of Au and Th by 2.6 GeV Protons Phys Rev, 1990, C42: 2546

- 4 Loveland W, Aleklett K, Sihver L, et al Change in Target Fragmentation Mechanisms With Increasing Projectile Energy in Intermediate Energy Nuclear Collisions Phys Rev, 1990, C41: 973
- 5 Zhao Jinhua, Zhang Li, Zheng Jiwen, et al On-line Melten Target Rabbit System. MP & NLH IAL Annual Report, 1995, 150
- 6 Zhang Li, Zhao Jinhua, Zheng Jiwen, et al Detection of Weak β^- -Delayed γ Activities in Element-separated Source MP & NLH IAL Annual Report, 1995, 133
- 7 李文新, 孙彤玉. 核化学研究中 γ 能谱测量和分析. 原子能科学技术, 1990, 24(2): 60
- 8 Morrissey DJ, Lee D, Otto RJ, et al Measurement of the Product Mass Distributions From Heavy-Ion-Induced Nuclear Reactions Nucl Instrum Meth, 1979, C158: 499
- 9 卢希庭. 原子核物理. 北京: 原子能出版社, 1982. 27~ 36
- 10 Jagdish KT. Nuclear Wallet Cards (fifth edition) Network: National Nuclear Data Center for The US Nuclear Data, 1995
- 11 Jonson BO, Nielson B, Westgaard L, et al The Decay $^{207}_{80}\text{Hg} + ^{207}_{81}\text{Tl}$ CERN Report, 1981, 81(9): 640

THE ABSTRACTION OF INDEPENDENT CROSS-SECTIONS FROM THE γ ACTIVITIES OF SUCCESSIVELY DECAYED DAUGHTER NUCLEI

Zheng Jiwen Zhang Li Zhao Jinhua Hu Qingyuan

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

ABSTRACT

A technique for abstracting independent cross section on the basis of the γ activities from the observed isotope itself or its successively decayed daughter nuclei was developed. It is specially applicable for determining the independent cross sections of the isotope products involved in quick, element-separated samples. We have used it in the isotope-distribution measurement for Hg element produced in the reaction of 600-MeV ^{18}O beam bombarding on thick natural lead target, and a total of Hg-isotope independent cross sections more than twenty were obtained in the mass range of 180~ 209. Some representative examples showing how we deduced these independent cross sections are given in this paper.

Key words Hg isotopes Independent cross section
Successively decayed daughter nuclei γ activities