

高能 α 粒子轰击 Yb 箔制备 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的初步研究

杨天丽¹⁾ 杨朝文²⁾ 连仁德^{1)†} 熊宗华¹⁾ 郝樊华¹⁾

1) (中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

2) (四川大学物理科学与技术学院, 辐射物理与技术教育部重点实验室, 成都 610045)

(2009 年 11 月 3 日收到; 2010 年 5 月 21 日收到修改稿)

在 CS30 回旋加速器上利用 27 MeV 的 α 粒子束轰击天然金属 Yb 箔. 对辐照样进行了分析, 确定产生的 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素约 1.5×10^{11} 个, 辨识出样品中主要的长寿命核素, 并推断产生这些核素可能的核反应通道. 基于对样品放射性剂量率跟踪监测结果, 初步确定了样品的冷却时间. 这些研究结果一方面验证了所选择的制备途径是可行的, 另一方面也为进一步开展该核素制备技术研究提供了参考依据.

关键词: $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素, α 粒子, 金属 Yb

PACC: 2890

1. 引 言

同质异能核 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 具有 2.446 MeV (约 1.3 GJ/g) 的高激发能和 31 a 的半衰期等特性, 如果使其储备的能量释放出来, 将会在民用、军用等方面具有巨大的应用价值. 因此, 它是目前研究者感兴趣的研究对象之一. 该核素的自然衰变经历一个复杂的级联跃迁后回落到稳定的基态^[1]. 由于该同质异能核寿命较长, 当它受到一个低能量 (如 X 射线) 的激发后可以跃迁到一个寿命很短的中间态, 再由中间态快速跃迁至基态放出 γ 射线, 这样, $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 很可能成为一个超短波长的 γ 射线源. 从 20 世纪末至今, 美国、罗马尼亚等国的一些研究机构一直在进行 X 射线诱发 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素 γ 辐射衰变特性的研究, 但仅有德克萨斯大学 Collins 研究组^[2,3] 称已经观察到 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 的某些 γ 特征峰的强度有增加. 由于该核素制备极其困难, 限制了诱发释能的研究, 到目前还没有其他研究机构对该核素是否存在加速释能作出定性的回答^[4,5]. 因此, 通过研究 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 的制备方法获得一定量该核素后, 再采用韧致辐射 X 射线或同步辐射 X 射线^[6] 照射含 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 样品, 进一步研究该核素的诱发 γ 衰变特性, 对澄清 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 是否存在加速释能的物理现象非常必要.

美国德克萨斯 Collins 研究组采用的 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核

素是从美国 Huntsville 市的 SRS 系统技术公司购买的. 这是该公司于 20 世纪 90 年代从 Los Alamos 国家实验室 LAMPF 加速器 800 MeV 质子轰击 Ta 靶实验后的废靶材料中提取出来的, 提取量仅为 100 μg , 却是世界上最大的提取量^[7]. 尽管目前还未见俄罗斯在 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 诱发衰变研究方面的报道, 但 Dubna 核物理研究所一直致力于该核素的制备技术研究. 除此之外, 尚未见有其他国家在对 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素进行制备研究的报道^[8-11]. Yu 等^[12] 为研究 Hf 对可控热聚变反应堆材料性质的影响程度, 于 1989 年测量了快中子俘获生成 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素反应截面, 是我国在 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素相关特性研究上报道为数不多的工作. 本实验组利用四川大学 CS30 回旋加速器提供的高能 α 粒子束轰击天然金属 Yb 靶, 开展 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素制备技术的探索研究, 获得了约 10^{-9} g 量级的 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素.

2. 辐照实验

2.1. 选择制备途径

核反应截面数据显示, $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素制备主要途径有中子引起反应、 α 粒子引起反应、光核反应和质子核散裂 (见表 1). 分析表 1 中的数据可以看出, 热中子俘获反应截面太小, 反应“副产物”较多, 冷却

† 通讯联系人. E-mail: 130wolf@sohu.com

时间长,首先被淘汰. 14 MeV 中子反应截面相对较大,但国内现有加速器或反应堆可提供的高能中子通量较小. 800 MeV 质子的 $^{181}\text{Ta}+p$ 核散裂反应截面可接近 100 mb,且可充分利用天然高纯度 Ta 材料(^{181}Ta 丰度极高),不过国内很难得到强束流的高能质子,并且反应“副产物”丰富,放射性极强,冷却时

间很长. 就 $\alpha+^{176}\text{Yb}\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+2n$ 反应而言,反应截面约为 10 mb,四川大学 CS30 回旋加速器能提供能量约为 30 MeV、束流强度可达到 80 μA 的 α 粒子流,同时兼顾辐照靶冷却时间以及靶中相关元素化学处理的难易程度,在此研究中选择该反应作为 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的制备途径.

表 1 制备 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的主要途径

反应道	入射粒子	反应截面/mb	数据来源
$n+^{177}\text{Hf}\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+\gamma$	热中子	10^{-4}	文献[4]
$n+^{179}\text{Hf}\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+2n$	14 MeV 中子	7	文献[12]
$\alpha+^{176}\text{Yb}\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+2n$	30—36 MeV α 粒子	10	文献[8]
$^{181}\text{Ta}+\gamma\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+2n+p$	—	<5	文献[11]
$^{181}\text{Ta}+p\rightarrow^{178}\text{Hf}^{m2}+2p+2n$	800 MeV 质子	<100	文献[7]

2.2. 制备辐照靶

辐照靶的制备是 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 同质异能核制备技术研究的一个关键环节. 由于实验中 Yb 靶上承受的功率较大,因此有效散热非常关键. 最好的辐照靶制备方法是金属 Yb 镀在 Cu 基材上,再利用 CS30 加速器专用的高压冷却水进行散热. 然而,国内相关机构较少开展稀土金属材料镀靶技术的研究,无成熟的镀靶工艺完成实验靶的制备. 贴靶是制靶的方法之一. 考虑到采用贴靶可减少制靶时间、能及时验证核素制备途径的可行性、有利于辐照样品与靶底衬分离等因素,先期选用贴靶方式进行照射,即商业购买的 Yb 金属箔通过粘结剂紧贴在 Cu 基材形成一个辐照靶整体.

辐照过程对 Yb 片形状提出的要求是面密度大于 100 mg/cm^2 、线性厚度小于 1 mm. 计算表明,厚度为 0.1 mm 的天然 Yb 薄片,其面密度约为 689 mg/cm^2 . 商业购买到厚度为 0.1 mm 的天然金属 Yb 箔,满足上述质量厚度和线性厚度的要求.

辐照时 α 束流轰击靶的功率为 900 W,要求靶材与 Cu 基材间的粘接剂必须满足耐高温、良好的传热和导电等条件. DB5015 型耐高温银粉导电胶不仅能耐水、耐酸、耐有机溶剂,而且耐高温可达 1200 $^{\circ}\text{C}$,导电性能好(体积电阻率为 10^{-3} — $10^{-1}\Omega\cdot\text{cm}$). 实验中采用该银粉导电胶将 0.1 mm 厚度的 Yb 片紧贴于 Cu 衬底表面.

2.3. 实验安排

2008 年 7 月 11 日 19 时在 CS30 加速器内靶室

接受辐照,次日 7 时停止辐照. 实验中 α 束流的能量为 27 MeV、束流强度为 30 μA .

3. 辐照样品分析

3.1. 辐照样品 γ 谱测量

辐照后第 9 天从靶室中取下辐照靶,用 NaI 探测器测量其放射性,估算辐照靶的活度为 10^8 Bq 量级. 经过连续多次对其放射性衰变规律跟踪后,取下含金属 Yb 辐照样品的 Cu 底衬. 在此过程前仔细观察辐照靶,发现金属 Yb 箔边缘与 Cu 靶片脱离、弯曲. 由于不知道粘结剂基本成分,辐照后粘结性能发生了变化,使得剥离 Yb 箔时较困难,仅有约 1/3 的辐照样品从 Cu 底衬上分离. 因此仅对这 1/3 的样品进行分析,剩余样品继续冷却. 辐照后第 52 天用高纯锗探测器测量其 γ 谱,测量时间 70000 s; 辐照后第 57 天采用 Ortec 公司生产的 GEX-40190 型高纯锗探测器(相对效率为 30%, ^{60}Co 的 1332.5 keV 能峰处能量分辨率为 1.8 keV)测量其 γ 谱^[12],测量时间为 23817 s. 测量过程在铅屏蔽室内完成,探头距样品 30 cm. 采用 ^{60}Co 和 ^{137}Cs 源进行能量刻度^[13]. 基于测量得到的 γ 谱,对这 1/3 辐照样品进行了分析.

3.2. $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的辨识

$^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素主要特征峰位于 213.434, 216.668, 325.557, 426.36, 495.013, 574.215 keV 处. 对比前后两次测量的 γ 谱,分别在这 6 个特征峰位上寻找

γ 谱峰, 以判断辐照样品中是否存在 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素.

对于第一次测量得到的 γ 谱, 强度很大的能峰表明 ^{172}Lu 和 ^{175}Hf 的含量较多. 而就 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素特征峰而言, 仅在高能端 574.215 keV 位置观测到有微小的峰形(图 1), 在其他峰位处未见有明显的峰形. 由于样品中 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素含量太少, 其他放射性核素含量较多, $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素低能端特征峰因其他放射性核素强峰掩盖而未能观察到. 另外, 采用的高纯锗探测器分辨率较差也影响核素的辨别. 因此, 排除本底和叠加峰的可能性后认为 574.215 keV 处的能峰属于 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的高能端特征峰.

第二次测量改用分辨率较高、工作性能稳定的另一台探测器. 明显的大峰分别对应 ^{172}Lu 和 ^{175}Hf 核素. 受 ^{172}Lu 核素低能端特征谱康谱顿平台的限制, 在能量小于 325.557 keV (即 213.434, 216.668, 257.646 keV 等) 的特征峰位处未能观察到有峰形, 但在高能端的 426.36, 495.013, 574.215 keV 处均观察到有小峰(图 2). 继续测量实验室本底, 在 6 个

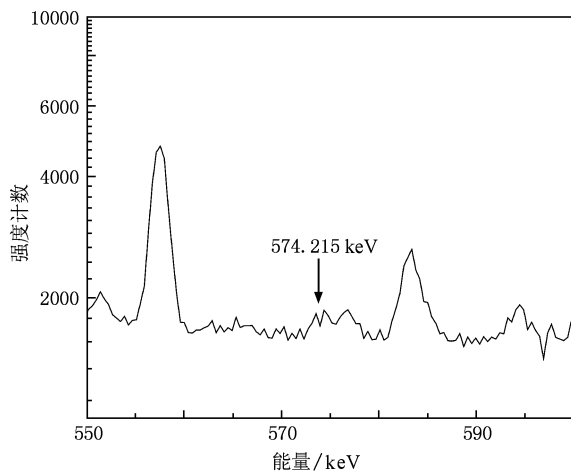


图 1 第一次测量的 γ 谱中位于 574.215 keV 处的能峰

特征峰的位置均未见有效计数, 排除实验本底干扰后判定高能端 3 个峰为 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素的特征峰.

因此, 结合两次测量结果分析, 由高能端 3 个 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素特征峰位的微小峰形判定辐照样品已含

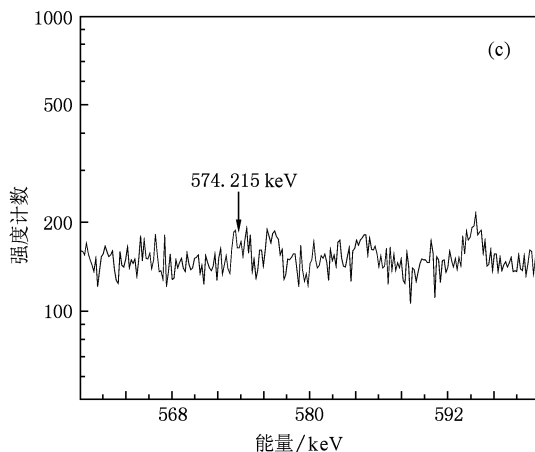
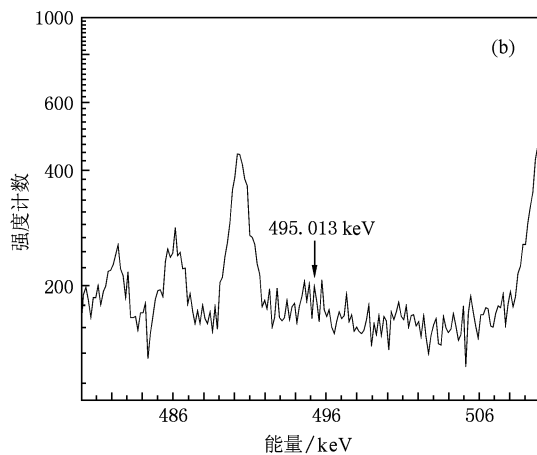
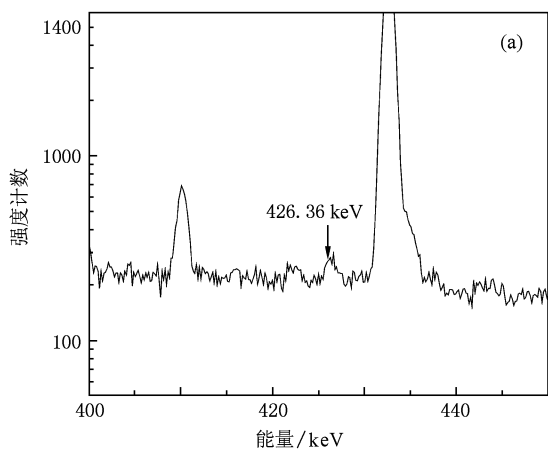


图 2 第二次测量的 γ 谱 (a) 位于 426.36 keV 处的能峰, (b) 位于 495.013 keV 处的能峰, (c) 位于 574.215 keV 处的能峰

有 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素.

3.3. $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素含量的确定

由于 495.013 keV 峰形较差,峰面积可能会受到前面强峰拖尾影响,因此计算 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 含量时选择受影响较小的峰进行,即选择 426.36 和 574.215 keV 两峰来确定 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素含量.计算时所使用的公式为

$$N = \frac{nT}{0.693\varepsilon I} \quad (1)$$

其中 N 为核素数, n 为 γ 光子的计数率, I 为分支比, ε 为测量效率, T 为 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 的半衰期.

计算时使用的相关参数列于表 2. 计算结果显示:由 426.36 keV 峰定出被测样品中的核素数 $N \approx 1.0 \times 10^{11}$, 通过 574.215 keV 峰定出被测样品中的核素数 $N \approx 0.5 \times 10^{11}$, 取下限后认为被测样品中的核素数 $N \approx 0.5 \times 10^{11}$. 由于所测量的样品数量为辐照样品总数的 1/3, 由此可推断辐照已产生约 1.5×10^{11} 个 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$.

表 2 计算辐照样品中 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素含量时的相关参数

峰位/keV	n/s^{-1}	I	$\varepsilon/10^{-4}$	$N/10^{11}$
426.360	0.030	0.970	4.36	1.0
574.215	0.023	0.879	7.70	0.5

3.4. 主要长寿命核素的辨识

实验采用的是天然 Yb, Yb 的同位素分布为 ^{168}Yb (0.14%), ^{170}Yb (3.03%), ^{171}Yb (14.31%), ^{172}Yb (21.82%), ^{173}Yb (16.13%), ^{174}Yb (31.84%), ^{176}Yb (12.73%). 在高能 α 粒子轰击下, 这些同位素均参与反应. 由于 Yb 同位素的反应数据极少, 因而很难估计辐照样品中“副产物”的组分和样品的冷却时间. 通过对第二次测量的谱图作进一步辨识后发现, 辐照样品中主要长寿命核素有 ^{172}Lu ($T=6.7$ d), ^{175}Hf ($T=70$ d), ^{170}Lu ($T=2.0$ d), ^{173}Lu ($T=500$ d), ^{171}Hf ($T=11$ h) 和 ^{169}Yb ($T=32$ d). 根据这些结果初步推测出产生这些核素可能的反应道, 结果如表 3 所列.

3.5. 冷却时间的确定

通过采用 BH3103A 型便携式 X/ γ 剂量率监测仪对 1/3 的辐照样品进行放射性剂量跟踪监测来确定辐照样品的冷却时间. 监测依据是 EJ381-1989, 仪器校正因子为 0.9. 第一次监测时间为 9 月 16

日, 15—20 d 监测一次, 共进行 3 次监测, 监测数据见表 4.

表 3 Yb 同位素与 α 粒子反应生成主要长寿命核素的反应道

核素	可能的核反应道
^{172}Lu	$^{170}\text{Yb}(\alpha, \text{pn})^{172}\text{Lu}$, $^{171}\text{Yb}(\alpha, \text{p}2\text{n})^{172}\text{Lu}$
^{175}Hf	$^{173}\text{Yb}(\alpha, 2\text{n})^{175}\text{Hf}$, $^{172}\text{Yb}(\alpha, \text{n})^{175}\text{Hf}$
^{170}Lu	$^{168}\text{Yb}(\alpha, \text{pn})^{170}\text{Lu}$
^{173}Lu	$^{172}\text{Yb}(\alpha, \text{p}2\text{n})^{173}\text{Lu}$, $^{171}\text{Yb}(\alpha, \text{pn})^{173}\text{Lu}$, $^{170}\text{Yb}(\alpha, \text{p})^{173}\text{Lu}$
^{169}Yb	$^{168}\text{Yb}(\alpha, 2\text{pn})^{169}\text{Yb}$

表 4 含 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素辐照样品的 γ 放射性剂量率监测数据

探测器的 测量位置	实验室 本底值 $/10^{-8}\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$	样品的测 量平均值 $/10^{-8}\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$	测量 时间
距放射物 20 cm	93	420	
距放射物 50 cm	93	181	冷却 65 d
铅 室	93	86	
距放射物 20 cm	125	374	
距放射物 50 cm	125	251	冷却 88 d
铅 室	125	135	
距放射物 20 cm	101	284	
距放射物 50 cm	101	109	冷却 112 d
铅 室	101	86	

分析放射性剂量测量数据后认为: 辐照样品冷却 65 d 后, 距探测器 20 cm 处剂量率约为 4.0×10^{-6} Gy/h (约为实验室本底的 4 倍); 辐照样品冷却 112 d 后, 距探测器 50 cm 处剂量率与实验室本底一致, 若要对其进行化学纯化操作时, 作常规放射性防护措施可达到安全要求. 由此可推断采用高能 α 粒子束轰击金属天然 Yb 制备 $N \approx 1.5 \times 10^{11}$ 的 $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素的辐照样品冷却周期约为 112 d.

4. 制备过程中的难点分析

$^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ 核素制备难度极大, 国内外无详细的资料可作参考, 因此整个工作处于摸索阶段. 目前, 辐照过程涉及许多技术难点需要解决, 其中最突出的问题是制靶技术. 在贴靶实验中, 为了防止非 Yb 靶材料参与反应, 要求 Yb 箔与 Cu 底衬粘结剂同时具备导电、传热和耐高温等性能. 实际购买的耐高温导电橡胶粘结金属 Yb 箔和 Cu 靶, 观察辐照样品发现金属 Yb 箔的边缘与 Cu 靶片发生脱离, 并有弯曲现象. Yb 箔大面积熔化, 有一微区可见铜基材. 分析

认为: 在 高能 α 束流轰击下靶面上承受的功率高达 900 W, 同时 Yb 同位素与 α 粒子的许多核反应通道打开, 核反应释放出许多能量. 而耐高温导电银胶传热性能不佳, 难以快速均匀地将热量传递给 Cu 底衬, 与底衬后面的高压冷却水进行热交换. 这样致使大量能量沉积在 Yb 箔上, 使得某些微区温度急剧升高, 超过金属 Yb 的熔点, Yb 箔熔化而露出 Cu 材质. 如果采用镀靶方式, 有效散热可能会有所改善. 下一步研究拟通过摸索磁控溅射实验条件, 将 Yb 镀在 Cu 基材上, 以获得镀层厚度为 100—150 μm 且镀层致密性较好的镀靶, 为开展下一轮制备技术研究作准备.

5. 结 论

在 CS30 回旋加速器上利用 27 MeV 的 α 粒子束轰击天然金属 Yb 箔. 对辐照样品进行了分析, 根据特征峰的位置判定样品中已含 $^{178}\text{Hf}^{m2}$ 核素, 核素数约为 1.5×10^{11} . 辨识出样品中主要的长寿命核素, 并推断了产生这些核素可能的核反应通道. 基于对样品放射性剂量率跟踪监测结果, 初步确定了样品的冷却时间. 这些研究结果一方面验证了所选择的制备途径是可行的, 另一方面也为进一步开展该核素制备技术研究提供了参考依据.

-
- [1] Smith M B, Walker P M, Ball G C 2003 *Phys. Rev. C* **68** 031302
- [2] Collins C B, Davanloo F, Iosif M C, Dussart R, Hicks J M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 695
- [3] Collins C B, Eberhard C D, Glesener J W, Anderson J A 1988 *Phys. Rev. C* **37** 2267
- [4] Helmer R G, Reich C W 1968 *Nucl. Phys. A* **114** 649
- [5] Ahmad I, Banar J C, Becker J A, Bredeweg T A, Cooper J R, Gemmell D S, Kraemer A, Mashayekhi A, McNabb D P, Miller G G, Moore E F, Palmer P, Pangault L N, Rundberg R S, Schiffer J P, Shastri S D, Wang T E, Wilhelmy J B 2005 *Phys. Rev. C* **71** 024311
- [6] Dong B Z, Xie L P, Lin W G, Rong L X, Wang J 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 630 (in Chinese) [董宝中、解立平、林伟刚、荣利霞、王 俊 2003 物理学报 **52** 630]
- [7] O'Brien H A 1989 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **40—41** 1126
- [8] Oganessian Y T, Hussonnois M H, Briancon C 1997 *Hyperfine. Interact.* **107** 129
- [9] Karamian S A, Carroll J J, Adam J 2004 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **530** 463
- [10] Karamian S A, Adam J, Filossofov D V 2002 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **489** 448
- [11] Farrel P J, Dudnikov V, Carroll J J 2002 *Hyperfine. Interact.* **143** 55
- [12] Yu W X, Lu H L, Zhao W R 1992 *Chin J. Nucl. Phys.* **14** 326
- [13] Gong J, Hao F H, Hu G C, Huang R L, Liu S P, Shi X M, Wu J, Xiang Y C 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3523 (in Chinese) [龚建、郝樊华、胡广春、黄瑞良、刘素萍、师学明、伍 钧、向永春 2005 物理学报 **54** 3523]

$^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ isomer prepared by the bombardment of energetic α particles on metallic Yb foil

Yang Tian-Li¹⁾ Yang Chao-Wen²⁾ Ze Ren-De^{1)†} Xiong Zong-Hua¹⁾ Hao Fan-Hua¹⁾

1) (*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

2) (*Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, School of Physical Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610045, China*)

(Received 3 November 2009; revised manuscript received 21 May 2010)

Abstract

In this paper the $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ isomer prepared through the bombardment of 27 MeV α particles on natural metallic Yb foil in the CS30 cyclotron has been studied. Analysing the γ spectrum of sample irradiated by α particles, the amount of $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ isomer can be determined to be about 1.5×10^{11} nuclei, the main long-lived isomers of sample are identified and the possible reaction paths of these isomers are deduced. By monitoring the radioactivity dose of sample, the cooling time for chemical separation is also obtained. The preliminary results are conducive to further developing the method of $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ isomer production.

Keywords: $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ isomer, α particle, metallic Yb

PACC: 2890

† Corresponding author. E-mail: 130wolf@sohu.com