

利用离子阻停对电子俘获致核激发的研究*

贾晨旭¹⁾²⁾ 丁兵^{1)2)†} 滑伟^{3)‡} 郭松¹⁾²⁾ 强赞华¹⁾²⁾
陈红星¹⁾²⁾ 韦锐⁴⁾ 周小红¹⁾²⁾

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (中国科学院大学核科学与技术学院, 北京 100049)

3) (中山大学中法核工程与技术学院, 珠海 519082)

4) (广西师范大学物理科学与技术学院, 桂林 541004)

(2024年2月19日收到; 2024年5月3日收到修改稿)

当特定能量的自由电子被原子核外电子轨道俘获时, 有可能导致原子核被共振激发, 这就是电子俘获致核激发. 该机制的一个应用愿景是通过操纵电子使同核异能态所储存的核能按照人们的需求释放出来. 如果能够实现这种技术, 有望为核能的储存和利用带来巨大变革. 本文对比了近年来基于加速器装置, 在高电荷态离子阻停过程中测量电子俘获致核激发几率的两次实验研究工作. 对于两次测量结果的不一致, 从误差水平评估这一个新的角度分析了可能的原因. 此外, 通过评估四种可能的熔合蒸发反应道, 发现⁹⁴Zr束流和氦气靶可能是利用次级束开展下一步实验工作的理想弹靶组合.

关键词: 同核异能态, 电子俘获致核激发, 诱发退激, 次级束, 伽马谱学

PACS: 23.35.+g, 23.90.+w

DOI: 10.7498/aps.73.20240276

1 引言

大多数原子核存在很多激发态, 能量较高的激发态主要通过发射 γ 光子退激到更低的激发态. 大部分激发态通过能量为几百 keV 到若干 MeV 的磁偶极或电四极 γ 跃迁退激, 因而寿命通常比较短暂, 往往小于 1 ns. 由于各种原因, 如跃迁能量太低, 或退激路线被阻碍等, 可能导致较长的能级寿命, 这些能级被称为同核异能态^[1].

同核异能态的具体标准至今仍有争议. 有一种观点是把实验上能输送到产生位置以外的另一个测量点加以测量的激发态当作同核异能态, 因而在一些工作中报道了寿命相当短的同核异能态. 但这

种定义使同核异能态的界定依赖于实验设置, 而不只是能级的内禀性质. 在归纳相关数据时, 往往约定一个寿命标准, 比如以半衰期 100 ns 或 10 ns 为限^[2,3], 将寿命更长的激发能级视为同核异能态. 大部分同核异能态的寿命短于 1 min, 但也有一些非常长, 比如¹⁸⁰Ta 中的一个同核异能态, 半衰期超过 7×10^{15} 年^[4], 远大于当前估计的宇宙年龄 1.38×10^{10} 年. 大部分同核异能态的激发能并不高, 但也有一些能超过 10 MeV. 同时具有高激发能和长寿命的同核异能态很稀有, 如^{178m2}Hf 具有约 2.5 MeV 的激发能和 31 年的半衰期^[5]. 这种同核异能态兼具高能量密度和长储存期, 是未来的理想储能材料.

不过, 如果这种储能材料只能在漫长的岁月中

* 国家自然科学基金 (批准号: 11175257, 12375128) 和广东省自然科学基金 (批准号: S2012010010306) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dbing@impcas.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: huaw@mail.sysu.edu.cn

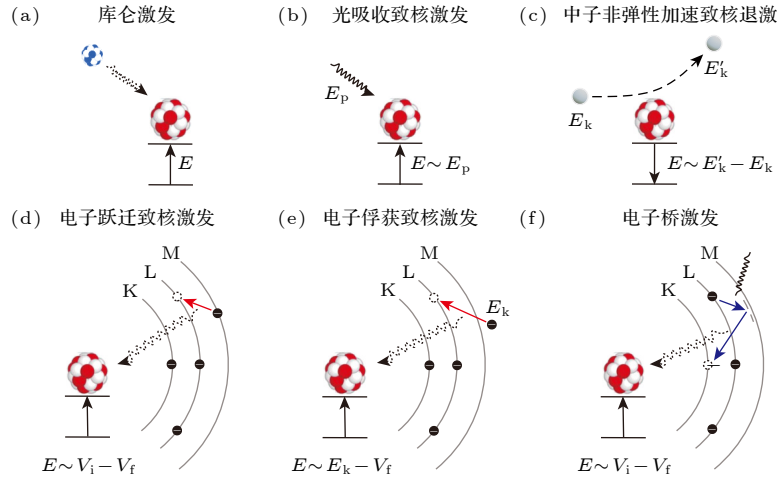


图 1 六种可能的诱发退激模式示意图

Fig. 1. Schematic diagram of six possible induced de-excitation modes.

缓慢释放能量, 它的应用无疑会受到很大的限制^[6]. 因此, 人们在寻求一种可控的方法实现能量的释放, 目前公认的途径是通过诱发退激^[7](isomer depletion). 将同核异能态激发到相邻的短寿命能级, 短寿命能级绕过同核异能态, 通过其他的途径退激到基态, 释放出所有的能量, 这个过程就称为同核异能态的诱发退激. 在理想情况下, 用较小的能量就能触发激发过程, 放出大量能量. 目前, 人们已经认识到六种可能的诱发退激的机制, 如图 1 所示, 包括光致激发^[8-10]、库仑激发^[11,12]、中子非弹性加速致核退激^[13,14]、电子跃迁致核激发^[15,16]、电子俘获致核激发 (NEEC)^[17,18] 和电子桥致核激发^[19-21].

光致激发是用特定能量的光子照射同核异能态材料, 当光子能量与核激发所需能量相当时, 有可能造成激发退激. 1999 年, Collins 等^[8] 使用 X 射线轰击 $^{178\text{m}2}\text{Hf}$ 同核异能态, 发现退激速度增加了约 2%, 这是利用光致激发诱发退激同核异能态的首次报道. 该工作使人们注意到诱发退激技术可能会带来巨大的应用潜力, 比如核能储能、伽马激光和军用伽马炸弹. 不过, 后续研究表明, X 射线的激发效率不够高^[9], 远远达不到应用的标准. 库仑激发是指入射的带电粒子通过库仑相互作用将靶核从基态激发到较高的激发态的核反应, 如图 1(a) 所示^[12]. 中子非弹性加速致核退激是指, 当中子对处于激发态的原子核进行散射时, 可能会通过强相互作用将原子核的激发能转移给中子从而增加中子的出射动能, 最终使得原子核退激^[13], 如图 1(c) 所示. 在这个过程中原子核退激的能量与

中子前后的动能差相当. 电子跃迁致核激发是指处于外壳层的轨道电子跃迁到存在电子空穴的内壳层, 通过虚光子将能量传递给原子核, 当跃迁的能量与原子核的激发能相当时, 有可能产生激发退激的现象^[15], 如图 1(d) 所示. 电子俘获致核激发与电子跃迁致核激发类似, 含有一定动能的自由电子跃迁到存在电子空穴的内壳层 (该过程也被称为电子俘获过程), 当动能与势能的差值和原子核的激发能相当时, 可能使得原子核激发退激^[17,22], 如图 1(e) 所示. 电子桥激发是使用特定能量的光子将轨道电子从初始态激发到能量高于初始态的虚粒子态, 而后向下退激到能量低于初始态的末态能级, 虚粒子态与末态的能级差和原子核的激发能相当时, 可能导致原子核激发退激^[19], 如图 1(f) 所示.

近 10 年来, 电子俘获致核激发成为最受关注的诱发退激机制^[22-25]. 本文将介绍这方面的研究现状, 重点分析基于加速器装置开展的两项实验工作, 并讨论下一步实验工作的设计.

2 电子俘获致核激发机制的研究

原子核激发态除了发射 γ 射线之外, 有时也可以通过内转换效应退激: 原子核将能量转移给一个核外电子, 使该电子脱离束缚, 并通过动能形式带走余下的能量, 从原子内飞出. 1976 年, Goldanskii 和 Namiot^[17] 预言了内转换的逆过程, 也就是一个外界的自由电子被原子的空轨道俘获, 放出的动能与轨道束缚能之和恰好使原子核激发到更高能量的能级, 这就是电子俘获致核激发. 假如共振

条件得以满足,有可能达到很高的激发效率^[26].考虑到电子便于操纵,这种机制有望满足应用层面的需求.

在实验室中研究电子俘获致核激发,首先要实现自由电子和存在电子轨道空位的原子共存.为此主要有两种实验思路:一是制造等离子体状态^[24,27-29],二是利用高速带来的高电荷态离子.理论预测,在一定条件下电子俘获致核激发是等离子体中发生诱发退激的重要机制.2022年,冯杰等^[30]通过飞秒激光技术制造等离子体环境,观察到了⁸³Kr原子核的激发.不过,理论研究表明主要物理机制是库仑激发,而电子俘获致核激发可能是次要的机制.总体来看,等离子体中材料密度大、反应效率高,但是多种机制同时起作用,深入的讨论需要借助模拟工作.

另一个思路则是用加速器产生高电荷态的离子束,与富含电子的材料反应,也有使用电子束将原子剥离成高电荷的离子而后再与电子反应的思路^[18].其中值得一提的是,利用离子在材料中阻停的方法是由Karamian和Carroll^[25]在2012年提出的.利用离子束与电子束的碰撞,可以精确控制反应能量.通过改变反应能量,预期能观测到电子俘获致核激发几率的共振峰,这将提供不依赖模型计算的直接实验证据.然而,以束流形式存在的电子团密度相对很低,怎么利用这种实验方案得到足够的统计量,以及怎么寻找共振能量,是相关实验工作面临的挑战.如果不使用电子束,而是将加速器产生的离子束直接注入到固体材料中,在阻停过程中也可能触发电子俘获致核激发.由于固体材料中电子密度高,可能更容易得到足够的统计量.高速运动的离子进入材料后,速度会连续降低,如图2所示.在此过程中,离子会俘获材料中的电子,或失去电子,造成电荷态的动态变化,总体上电荷态随着离子速度的降低而减小.以离子为参考系,外界的自由电子相对它的速度和动能在阻停过程中连续降低.对于某个固定的电子空位,电子俘获致核激发要求的能量共振条件是电子轨道结合能与自由电子动能之和与原子核激发所需能量相当.一般认为共振宽度由原子核和电子共同贡献,通常电子贡献的占主要部分,不同轨道的电子不同的核,带来的共振宽度不同,但通常小于1 eV^[22].具体关于共振截面随电子能量的变化可以参看文献

[31]中的图3.2.这个共振条件会在离子持续减速过程中的某一点得到满足.如果能量不匹配,或者轨道已被电子占据,则不能发生电子俘获致核激发,如图2中红色箭头表示的情况.

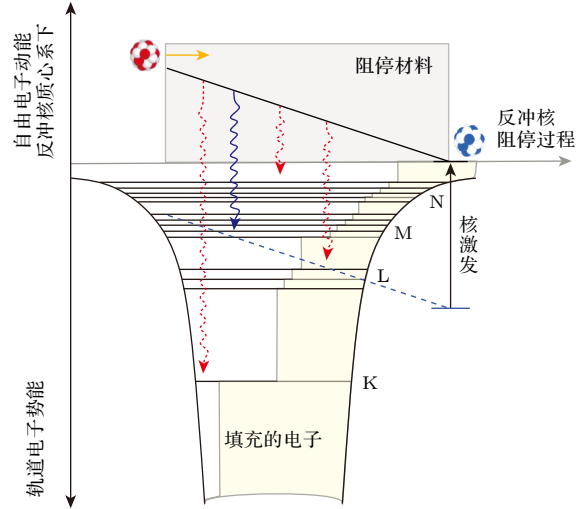


图2 阻停过程中电子俘获致核激发的示意图
Fig. 2. Schematic diagram of nuclear excitation by electron capture in ion-stopping process.

选择适当的目标核素,对这方面的研究非常重要.人们讨论了一些可能的核素,其中较为理想的目标是^{93m}Mo^[32,33],即⁹³Mo中激发能为2.4 MeV,自旋宇称为21/2⁺,半衰期 $T_{1/2} = 6.85$ h的同核异能态^[34].基于激光等离子体或高电荷态离子阻停这两种不同的实验路线,都有一些工作把^{93m}Mo当作特别的研究目标设计实验方案^[22-25].如图3所示,有一个自旋宇称为17/2⁺的能级,半衰期为3.5 ns,比^{93m}Mo的激发能高4.8 keV,主要通过一条能量为268 keV的 γ 射线退激到13/2⁺态.在诱发退激过程中,该能级被称为触发能级,如果提供4.8 keV的能量,将^{93m}Mo激发到这个能级,就可以在很短的时间内退激到基态,释放约2.4 MeV能量.该触发能级与^{93m}Mo之间的跃迁以电四极(E2)为主,内转换系数高达约 4×10^5 .因此,在适当的实验条件下,作为内转换逆过程的电子俘获致核激发有可能成为主导机制.针对^{93m}Mo,已经开展过两件实验工作,分别在美国阿贡实验室和中国兰州重离子加速器实验室开展.这两件工作的实验结果并不一致,接下来将介绍它们的设计思路,并评估其优缺点和实验结果的可靠性.

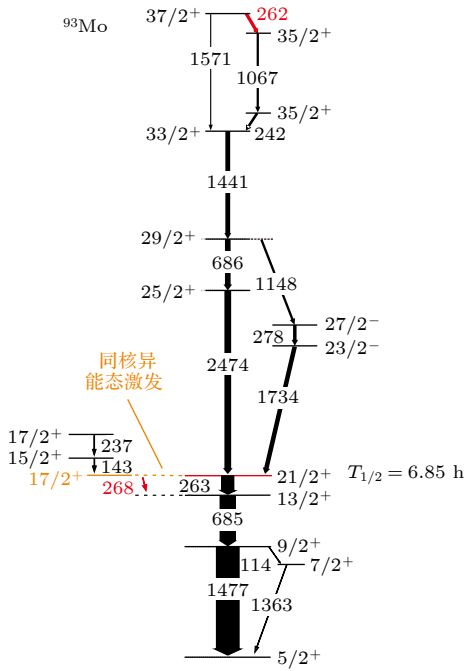


图 3 ^{93m}Mo 能级纲图

Fig. 3. Partial level scheme of ^{93m}Mo .

3 阿贡实验室的工作

2018 年, Chiara 等 [35] 首次报道了 ^{93m}Mo 通过电子俘获被激发的实验现象, 并测得一个出人意料的大激发几率 (1.0(3)%). 该实验在美国阿贡实验室的大型伽马探测阵列 Gammasphere 开展. 实验中使用 ^{90}Zr 束流轰击锂靶产生 ^{93m}Mo 同核异能态, 并与其他产物一同冲进另一块碳靶中 (见图 4(a)). 实验中测量到的 γ 射线主要来源于束流和靶的融合蒸发反应, 由于 ^{93m}Mo 的寿命比较长, 其上和其下的 γ 射线之间不存在瞬时符合关系. 但如果阻停过程中出现了电子俘获致核激发, 在 ^{93m}Mo 产生之后数纳秒之内, 就会在阻停过程中激发到触发能级, 并退激到基态, 放出 268, 685, 1477 keV 的三条 γ 射线 (见图 3). 由于整个过程只有几纳秒, 远小于高纯锗探测器的符合时间窗 (80 ns), 所以触发能级以下的三条 γ 射线就与 ^{93m}Mo 以上的 γ 射线出现了瞬时符合关系. 该实验以这种瞬时符合关系作为出现电子俘获致核激发的实验特征, 并基于这种事件的数量提取了激发几率. 在该工作中, ^{93m}Mo 在锂靶中产生, 之后经过碳膜减速 (减速时发生 NEEC 过程), 最终阻停在碳膜之后的铅衬中. 在靶和碳膜之间有一个约 3 mm 的空隙, ^{93m}Mo 穿过这个空隙约需经过 1 ns 的时间. 因此, 大部分 ^{93m}Mo

与触发能级退激的 γ 射线是在阻停之后放出的, 而融合蒸发产生的大量瞬发的在束 γ 射线则在飞行过程中放出, 由于产物反冲速度高, 这些瞬发的在束 γ 射线受到了强烈的多普勒效应影响. 利用产物的平均反冲速度和 γ 射线的发射角度, 可以将测量到的 γ 中心值修正到跃迁能量处, 但由于反冲速度和发射角度都存在展宽, 修正后的能谱上峰形被显著拓宽, 多普勒带来的展宽约为能量的 2%.

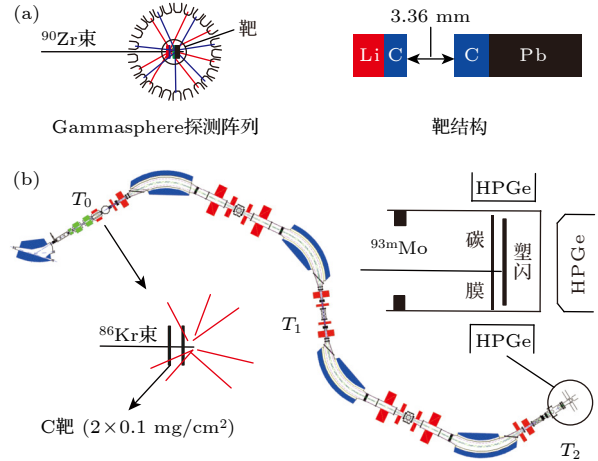


图 4 两次实验设置的对比 (a) 美国阿贡实验室开展实验的设置示意图; (b) 兰州重离子加速器装置开展实验的设置示意图

Fig. 4. Comparison of two experimental Settings: (a) The setting diagram of the experiment carried out at Argonne Laboratory in the United States; (b) schematic diagram of the experiment based on the Heavy Ion Research Facility in Lanzhou.

得益于 Gammasphere 阵列对多重 γ 符合事件的高探测效率, 该工作观测到了 268 keV γ 射线与 ^{93m}Mo 以上的 241, 1441, 686, 2474 keV 等 γ 射线的符合. 文献 [35] 将其解释为诱发退激的证据, 并得到激发几率为 1.0(3)%. 该值远大于库仑激发的期望值 (10^{-6}), 且在文献 [25] 中, 电子俘获致核激发的几率预测值可达 10^{-4} , 超过其他各种机制. 因此, 电子俘获致核激发被认为是造成这个大激发几率的主导机制.

随后吴远彬等 [36] 利用先进的原子结构以及离子阻停模型计算了 ^{93m}Mo 阻停过程中的电子俘获致核激发几率, 发现该几率只有 10^{-11} . 这使得理论和实验之间出现了 9 个数量级的巨大差异. 为解释该差异, Rzaekiewicz 等 [37] 考虑了阻停材料 (碳) 中电子动量分布的影响, 将激发几率的上限值提高了约 3 倍.

另一方面,郭松等^[38]注意到该实验可能在处理数据本底时过于理想化,没有考虑偶然符合与本底不平滑带来的影响,以致于高估了激发几率值.另外,文献^[35]的图3(b)中,用^{93m}Mo之上的241, 1442和686 keV的 γ 能量开门,得到的开门谱上不仅有268 keV的能量峰,也有计数更多的263 keV的能量峰.由于被长寿命的^{93m}Mo分隔,这个峰本来不应存在.这被认为是本底没被恰当处理的佐证. Chiara等^[39]指出偶然符合带来的影响约为0.0008,远小于报道值.对于263 keV峰的存在,他们解释为⁹³Mo中未报道的另一条能量为262 keV的 γ 射线,在⁹³Mo阻停后放出.然而,这个解释仍然存在问题,因为241 keV以下的退激路线中没有262 keV的跃迁;如果这条 γ 射线存在,只能存在于241 keV以上(或许是文献^[34]报道的从8597 keV激发态退激的262 keV γ 射线,见图3中37/2⁺到35/2⁺的红线).这条 γ 射线如果在阻停后发射,那么241, 1441和686 keV的几条 γ 射线也应当在阻停后发射.那么这条 γ 射线就应当在没有多普勒修正的能量开门谱中存在,而不是文献^[35]中展示的多普勒修正后的能量开门谱中.

针对上述问题本文从误差分析这一新的角度,评估其结果的可靠性.实验测量 γ 射线时,会因为康普顿光子逃逸,只有一部分 γ 射线形成全能峰,另一部分只沉积部分能量,形成康普顿本底.同时,在熔合蒸发反应中,除了固定能量的 γ 射线以外,从入口态退激时还会放出一些能量连续的 γ 射线,因此实验测量到的伽马谱通常表现为连续本底以上的一些能量峰.在 γ 符合测量的实验中,会将符合事件放进2维,3维,甚至4维的矩阵进行分析.对于3维对称矩阵,如果一个三重符合 γ 事件中包含(时间差在80 ns以内)能量分别为100, 200, 300 keV的三条 γ 射线,就会为对应(100, 200, 300)这个组合的六个矩阵元各加一个计数.真实的符合关系使得对应能量组合的矩阵元处计数更高,而没有符合关系的一些能量值之间也会有一些较小的计数.在数据处理时,需要将要分析的矩阵元与附近矩阵元比较,基于本底通常具有的平滑性,用它们之间的差值寻找真实符合的强度.为了直观表示,一般限定三维矩阵中两个维度上的能量窗口,向剩余的一个维度投影,得到开门谱.对于通常的实验,由于高纯锗探测器的能量分辨很好,能量峰通常是半高全宽为3—4 keV的高斯分布,一组真

实的符合关系在三维矩阵中表现为一个小球体范围内的若干矩阵元有较高的计数.不过,对于这个实验,瞬时 γ 射线的多普勒展宽很宽,从文献^[35]的图3(a)可以看到,修正后的2474 keV γ 射线仍然有50 keV以上的宽度.因此在部分维度不做多普勒修正,部分维度做多普勒修正的矩阵中,真实事件就能影响到范围更广的条状或饼状区域.从文献^[35]的图2(a)和图3(b)可以看到,电子俘获致核激发导致的符合事件在矩阵中只有300左右的计数.如果将这些计数所在的矩阵元向多普勒修正的能量轴上投影,它们将分布在很广的范围上.例如对于2474 keV来说,在50 keV范围内,每keV的计数只有平均6个左右.而在文献^[35]的图3(a)中,能够看到在本底区域,扣除本底带来的统计涨落每keV就有50—100计数.因此,这个实验结果的误差很可能远大于测量的中心值,导致文章中报道的误差被低估了.低估的原因可能在于用不同的本底谱相减时带来的误差未被考虑,这是 γ 符合测量实验工作中的常见问题.两个能谱相减时,计数应当相减,但误差应该增加.由于操作的复杂,通常不是直接在相减过程中传递误差,而是通过其他办法对这部分误差进行补偿,比如通过多人多次操作提取多个结果之间的误差.但也有一些工作完全忽略了这一部分误差,这种情况下强线的误差受影响较小,但弱线的误差会被严重低估.这个实验报道的符合关系是强度很弱的一组符合关系,它的误差可能因为对这一部分误差的忽略而被严重低估了.在误差水平明显高于中心值的情况下,不能认为该工作已经探测到了电子俘获致核激发现象.

4 兰州重离子加速器装置上的工作

2022年,郭松等^[40]开展了另一件^{93m}Mo电子俘获致核激发的实验工作.该实验是在兰州重离子加速器装置(HIRFL)的放射性束流线RIBLL1开展的^[41,42].如图4(b)所示,利用能量为6.5 MeV/u的⁸⁶Kr轰击两层质量厚度分别为100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的碳靶,产生^{93m}Mo.产物以次级束流的方式经过磁场选择,穿过约35 m的RIBLL1束流线,在出口处进入碳膜,并阻停在其后的塑料闪烁体探测器里.产物放出的 γ 射线由5台高纯锗探测器测量.^{93m}Mo通过束流线约需1.1 μs ,因此,除了从较长寿命同核异能态退激的 γ 射线以外,大部分初级反

应产生的 γ 射线在 RIBLL1 入口处发射, 不会影响到探测端的测量. 电子俘获致核激发预期在 $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 离子阻停的一瞬间发生, 利用塑料闪烁体优异的时间分辨能力, 可以筛选注入瞬间(约 100 ns)探测到的光子, 进一步降低了环境辐射带来的影响.

实验中 $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 的反冲能较低, 束流线上未加入飞行时间探测器、降能片、能损探测器等用于鉴别离子的探测装置, 以免反冲能进一步降低. 在此情况下, 无法判断注入离子的种类, 只能不加区分地用所有的注入信号当作符合条件. 同时, 相比于较低的 γ 射线计数率(每探头约每秒几十), 注入信号的计数高达 60000/s. 这说明注入的离子中包含了大量的 ^{86}Kr 离子. 由于它们的影响, $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 在次级束流中的占比只有约 0.6%. 分析数据时, 符合条件里包含了大量不可区分的其他离子, 减弱了抑制本底的能力. 此外, 由于注入率太高, 导致获取系统的死时间长, 约 24% 的注入事件未被记录.

经过 93 h 的束流照射, 约有 1.3×10^9 个 $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 离子进入探测区域, 但在光谱上并没有观察到电子俘获致核激发的特征能量峰. 即使计入本底的统计涨落, 电子俘获致核激发的事件数也不会超过 3000. 这样就得到了激发几率的上限值约为 2×10^{-5} , 远远低于文献 [35] 报道的 1%. 上述两次实验结果的不一致引起了理论学家的注意, Rzadkiewicz 等 [43] 分析、比较了两次实验. 考虑核外电子激发态, 他们计算两次实验条件下理论上的激发几率分别只有 4.39×10^{-10} 和 5.70×10^{-11} . 由于反冲能量不同, 激发几率有近 8 倍的差异.

5 下一步实验设计

阿贡实验室的工作同时测量了 $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 的产生和阻停过程, 因而受到初级反应带来的厚重 γ 本底的影响. 虽然使用了对符合事件探测效率很高的 Gammasphere 阵列, 测量精度依然不高. 兰州重离子装置上的实验避免了初级反应的影响, 但反冲能量低, 产物占比小且无法鉴别离子, 同样影响了测量精度, 只能给出几率的上限.

结合二者的优点, 使用 Gammasphere 或相当水平的阵列测量初级反应产生的 γ 射线, 再利用次级束流线将产物传输到衰变端测量阻停时放出来的 γ 射线, 并利用次级束流线上的装置实现离子鉴别, 有望显著提高电子俘获致核激发几率测量的精

度, 可靠地观察到 $^{93\text{m}}\text{Mo}$ 的诱发退激现象.

目前, 在国内可行的实验方案, 是依托兰州重离子加速器装置, 在第一次实验的基础上增加反冲能和离子鉴别能力. 用于离子鉴别的装置会带来能损, 因此离子鉴别的前提也是增加反冲能. 增加反冲能会引入电子非弹性散射反应道, 增加 NEEC 的噪声, 由于在材料中阻停的实验场景缺乏对不同机制的鉴别手段, 如果观测到激发现象, 对于背后物理机制的分析将很困难. 不过, 即使通过限制反冲能避免了电子非弹性散射, 更重要的竞争机制库仑激发仍然存在, 而且无法通过实验手段甄别. 在阿贡的实验中, 同样无法纯粹从实验角度判断激发机制, 只是因为测量到的激发机制远大于包括库仑激发在内其他机制的预期值, 而将主导机制指认为 NEEC. 在兰州的实验中, 已经发现 ^{93}Mo 的几率并不像阿贡实验室报道的那么高, 从而只能得到一个上限值. 下一次实验工作的重点在于提高测量能量, 探测到激发现象, 大致确定激发几率的量级. 因此, 提高可能的总激发几率和测量精度是下次实验工作的侧重点, 即使增加了更多其他机制带来的贡献. 如果下一次实验中能够探测到激发现象, 如何限制其他竞争机制将是后续测量侧重考虑的内容.

假如使用两块厚度为 10 μm 的塑闪与一块厚度为 60 μm 的 Si 分别测量飞行时间(TOF)和能损, 如图 5 所示, 会给 ^{93}Mo 离子带来约 7.5 MeV/u 的能量损失. 在能量降低的过程中不可避免地会存在诱发退激, ^{93}Mo 穿过厚度约为 10 μm 的塑闪和 60 μm 的 Si 能损分别约为 0.5 与 6.5 MeV/u, 我们估计对于反冲能为 8 MeV/u 的 ^{93}Mo 粒子, 在碳材料中射程约为 58.5 μm , 因而, 在探测端被诱发的几率应为在 TOF 中诱发几率的 10 倍以上, 与在 Si 中的诱发几率处于同一量级(不同反冲能对应的诱发退激几率不同, ^{93}Mo 的 NEEC 激发几率在反冲能超过 10 MeV/u 时会显著降低). 另外, ^{93}Mo 激发到的触发能级的半衰期为 3.5 ns, 考虑到 ^{93}Mo 次级束的飞行速度在 13% 光速以内, 一个半衰期能飞过不超过 13.5 cm 的距离. 可以将 Si 探测器放置在距离探测端约 100 cm 的位置, 从已有的 T_2 靶室空间考虑, 将 TOF₂ 探测器放置在距离探测端约 60 cm 的位置. 这样 ^{93}Mo 从 Si 探测器位置到探测器端经历了 7.4 个半衰期, 从 TOF₂ 到探测端经历了 4.4 个半衰期以上. TOF₁ 离探测端的距离更远(十几米), 在 Si, TOF₁ 和 TOF₂ 上激发的

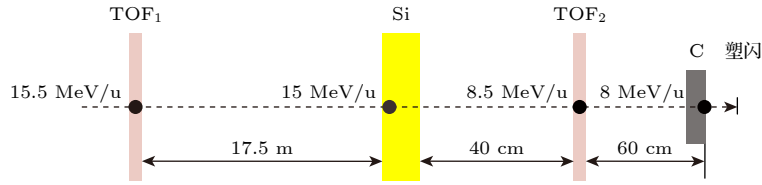


图 5 实验设置示意图

Fig. 5. Experimental setup diagram.

^{93}Mo 抵达探测端时都已退激到基态。因此，在 TOF 探测器以及 Si 上诱发退激的事例比在探测端诱发退激的事例要少 2 个数量级，带来 1% 的误差，远小于我们对整体测量误差的预期，可以忽略。为了使阻停前的反冲能不低于阿贡实验室的 8 MeV/u，初级靶之后的反冲能应该不低于 15.5 MeV/u。

图 6 中展示了利用 PACE4 代码计算的不同反应道下， ^{93}Mo 的生成截面与其反冲能之间的关系^[44]。本文考虑了 $^{86}\text{Kr} + ^{12}\text{C}$ ， $^{90}\text{Zr} + ^7\text{Li}$ ， $^{94}\text{Zr} + ^4\text{He}$ 和 $^{94}\text{Mo} + ^1\text{H}$ 四个反应道，其中前两个分别是此前在兰州重离子加速器装置和美国阿贡实验室的实验中使用过的。靶核越轻，就有越高比例的束流能量转化为体系动能，因此反冲能越高。另一方面， ^{93}Mo 的产生截面随反应能量，呈现一个峰的形状。因此，为了产生高反冲能且占比较高的 ^{93}Mo 离子，需要采用较重的 ^{94}Zr 和 ^{94}Mo 束流。

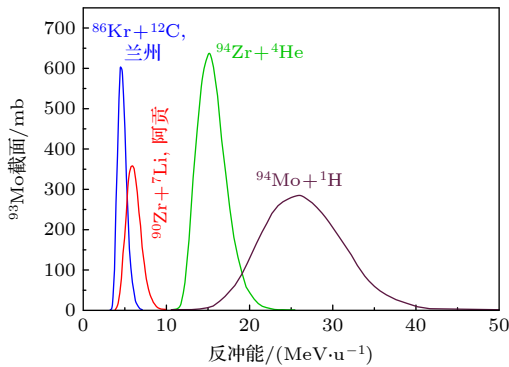


图 6 不同反应道下， ^{93}Mo 的生成截面与其反冲能的关系
Fig. 6. Relation between ^{93}Mo cross section and recoil energy of different reaction channels.

上述估算的截面是 ^{93}Mo 核素的总生成截面，包含布居到 ^{93}Mo 和其余核态两部分。二者的比例难以估计，但与熔合蒸发余核的入口态自旋分布有关。图 7 中展示了利用 PACE4 代码计算的反应产物入口态自旋的分布^[44]。靶核越重，布居的平均自旋越高。 $^{94}\text{Mo} + ^1\text{H}$ 的大部分入口态的自旋都在

^{93}Mo 的自旋值 (21/2) 以下，因此预期 ^{93}Mo 的占比很低。 $^{94}\text{Zr} + ^4\text{He}$ 反应道约有 2/3 高于 ^{93}Mo 的自旋值；同时这个反应道下，产物的生成截面和反冲能都较高。综合考虑以上两个因素， $^{94}\text{Zr} + ^4\text{He}$ 非常适合下一步的实验工作。不过锆元素的同位素目前只能买到氧化物形态的材料，而氧化锆和锆单质的熔点都很高，是加速器提供这种束流的一个挑战。由于电子俘获致核激发几率的理论预期值很小，一个可能的测量结果是在更高精度上测到该现象，但无法判断主要来源于电子俘获致核激发还是库仑激发。如果出现这种情况，进一步的研究就需要利用储存环和电子束技术，创造离子-电子碰撞的条件。这样可以通过固定离子和电子之间的速度差，来控制反应能量。兰州重离子加速器初步具备相关实验条件，但预期产额很低，需要进一步选取合适的目标核和实验设置。

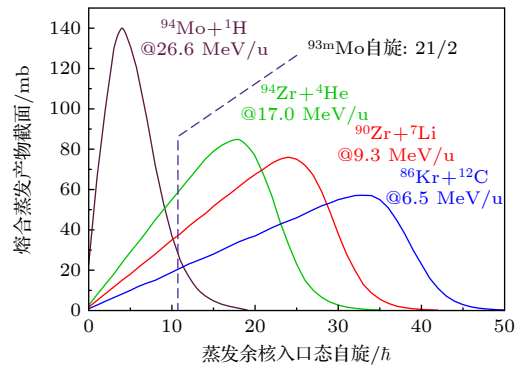


图 7 不同反应道 ^{93}Mo 截面与入口态自旋的关系，@后面表示的是计算使用的束流能量
Fig. 7. Relation between the ^{93}Mo cross section and the spin of the entry state for different reaction channels, and the values after @ are the beam energies used in the calculations.

6 结 论

本文介绍了利用高电荷态离子阻停过程，对 ^{93}Mo 电子俘获致核激发的研究现状。分析了两项

已开展的实验工作, 并评估了它们的优缺点. 对于美国阿贡实验室报道的结果, 从误差的角度展开分析, 指出其可能因为忽略扣除开门本底带来的误差, 而显著低估了误差水平. 兰州的实验反冲能较低. 在分析这两项工作的基础上, 提出了新的实验思路: 提高反冲能, 并借助次级束实现产物的筛选与鉴别, 以达到更高的测量精度. $^{94}\text{Zr} + ^4\text{He}$ 是基于该思路的最佳弹靶组合.

参考文献

- [1] Walker P, Podolyák Z 2020 *Phys. Scr.* **95** 044004
- [2] Audi G, Kondev F G, Wang M, Huang W J, Naimi S 2017 *Chin. Phys. C* **41** 030001
- [3] Elekes Z, Timar J 2015 *Nucl. Data Sheets* **129** 191
- [4] Hult M, Gasparro J, Marissens G, Lindahl P, Wätjen U, Johnston P N, Wagemans C, Köhler M 2006 *Phys. Rev. C* **74** 054311
- [5] Smith M B, Walker P M, Ball G C, Carroll J J, Garrett P E, Hackman G, Propri R, Sarazin F, Scraggs H C 2003 *Phys. Rev. C* **68** 031302
- [6] Zheng R Z, Lu J B, Wang Y, Li X Y, Zhang X, Chen Z Y, Liang L, Liu Y M 2023 *Nuclear Physics Review* **40** 385 (in Chinese) [郑人洲, 陆景彬, 王宇, 李潇祎, 张雪, 陈子怡, 梁磊, 刘玉敏 2023 *原子核物理评论* **40** 385]
- [7] Matinyan S 1998 *Phys. Rep.* **298** 199
- [8] Collins C B, Davanloo F, Iosif M C, Dussart R, Hicks J M, Karamian S A, Ur C A, Popescu I I, Kirischuk V I, Carroll J J, Roberts H E, McDaniel P, Crist C E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 695
- [9] Kirischuk V, Ageev V, Dovbnaya A, Kandybei S, Ranyuk Y 2015 *Phys. Lett. B* **750** 89
- [10] Carroll J J, Karamian S A, Rivlin L A, Zadernovsky A A 2001 *Hyperfine Interact.* **135** 3
- [11] Hayes A B, Cline D, Wu C Y, Ai H, Amro H, Beausang C, Casten R F, Gerl J, Hecht A A, Heinz A, Hua H, Hughes R, Janssens R V F, Lister C J, Macchiavelli A O, Meyer D A, Moore E F, Napiorkowski P, Pardo R C, Schlegel C, Seweryniak D, Simon M W, Srebrny J, Teng R, Vetter K, Wollersheim H J 2007 *Phys. Rev. C* **75** 034308
- [12] Karamian S A, Carroll J J 2007 *Laser Phys.* **17** 80
- [13] Roig O, Méot V, Rossé B, Béliet G, Daugas J M, Letourneau A, Menelle A, Morel P 2011 *Phys. Rev. C* **83** 064617
- [14] Karamian S A, Carroll J J 2011 *Phys. Rev. C* **83** 024604
- [15] Kishimoto S, Yoda Y, Seto M, Kobayashi Y, Kitao S, Haruki R, Kawauchi T, Fukutani K, Okano T 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 1831
- [16] Morita M 1973 *Prog. Theor. Phys.* **49** 1574
- [17] Goldanskii V, Namiot V 1976 *Phys. Lett. B* **62** 393
- [18] Wang Y, Ma Z, Yang Y, Fu C, He W, Ma Y 2023 *Front. Phys.* **11** 1203401
- [19] Bilous P V, Bekker H, Berengut J C, Seiferle B, von der Wense L, Thirof P G, Pfeifer T, López-Urrutia J R C, Pálffy A 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 192502
- [20] Krutov V, Fomenko V 1968 *Ann. Phys.* **476** 291
- [21] Porsev S G, Flambaum V V, Peik E, Tamm C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 182501
- [22] Polasik M, Ślabkowska K, Carroll J J, Chiara C J, Syrocki L, Weffder E, Rządkiwicz J 2017 *Phys. Rev. C* **95** 034312
- [23] Wu Y, Gunst J, Keitel C H, Pálffy A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 052504
- [24] Gunst J, Litvinov Y A, Keitel C H, Pálffy A 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 082501
- [25] Karamian S A, Carroll J J 2012 *Phys. At. Nucl.* **75** 1362
- [26] Pálffy A, Evers J, Keitel C H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 172502
- [27] Wu Y, Keitel C H, Pálffy A 2019 *Phys. Rev. A* **100** 063420
- [28] Vinko S M, Ciricosta O, Cho B I, Engelhorn K, Chung H K, Brown C R D, Burian T, Chalupský J, Falcone R W, Graves C, Hájková V, Higginbotham A, Juha L, Krzywinski J, Lee H J, Messerschmidt M, Murphy C D, Ping Y, Scherz A, Schlotter W, Toleikis S, Turner J J, Vysin L, Wang T, Wu B, Zastrau U, Zhu D, Lee R W, Heimann P A, Nagler B, Wark J S 2012 *Nature* **482** 59
- [29] Gunst J, Wu Y, Kumar N, Keitel C H, Pálffy A 2015 *Phys. Plasmas* **22** 112706
- [30] Feng J, Wang W, Fu C, Chen L, Tan J, Li Y, Wang J, Li Y, Zhang G, Ma Y, Zhang J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 052501
- [31] Gagyi-Pálffy A 2006 *Ph. D. Dissertation* (Hessian: Giessen University)
- [32] Fan W, Qi W, Zhang J, Cao Z, Lan H, Li X, Xu Y, Gu Y, Deng Z, Zhang Z, Tan C, Luo W, Yuan Y, Zhou W 2023 *Phys. Rev. Res.* **5** 043120
- [33] Wu Y H, Lu J B, Ren Z 2023 *Nucl. Phys. Rev.* **40** 519526 (in Chinese) [吴义恒, 陆景彬, 任臻 2023 *原子核物理评论* **40** 519526]
- [34] Fukuchi T, Gono Y, Odahara A, Tanaka S, Inoue M, Wakabayashi Y, Sasaki T, Kibe M, Hokoikiwa N, Shinozuka T, Fujita M, Yamazaki A, Sonoda T, Lee C S, Kwon Y K, Moon J Y, Lee J H 2005 *Eur. Phys. J. A* **24** 249
- [35] Chiara C J, Carroll J J, Carpenter M P, Greene J P, Hartley D J, Janssens R V F, Lane G J, Marsh J C, Matters D A, Polasik M, Rządkiwicz J, Seweryniak D, Zhu S, Bottoni S, Hayes A B, Karamian S A 2018 *Nature* **554** 216
- [36] Wu Y, Keitel C H, Pálffy A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 212501
- [37] Rządkiwicz J, Polasik M, Ślabkowska K, Syrocki L, Carroll J J, Chiara C J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 042501
- [38] Guo S, Fang Y, Zhou X, Petrache C M 2021 *Nature* **594** E1
- [39] Chiara C J, Carroll J J, Carpenter M P, Greene J P, Hartley D J, Janssens R V F, Lane G J, Marsh J C, Matters D A, Polasik M, Rządkiwicz J, Seweryniak D, Zhu S, Bottoni S, Hayes A B 2021 *Nature* **594** E3
- [40] Guo S, Ding B, Zhou X H, Wu Y B, Wang J G, Xu S W, Fang Y D, Petrache C M, Lawrie E A, Qiang Y H, Yang Y Y, Ong H J, Ma J B, Chen J L, Fang F, Yu Y H, Lv B F, Zeng F F, Zeng Q B, Huang H, Jia Z H, Jia C X, Liang W, Li Y, Huang N W, Liu L J, Zheng Y, Zhang W Q, Rohilla A, Bai Z, Jin S L, Wang K, Duan F F, Yang G, Li J H, Xu J H, Li G S, Liu M L, Liu Z, Gan Z G, Wang M, Zhang Y H 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 242502
- [41] Sun Z Y, Zhan W, Guo Z Y, Xiao G Q, Li J 2023 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **503** 496503
- [42] Wang X X, Song H S, Yang G, Duan F F, Wang K, Yang Y Y 2023 *Nucl. Phys. Rev.* **40** 244250 (in Chinese) [王莹轩, 宋海声, 杨过, 段芳芳, 王康, 杨彦云 2023 *原子核物理评论* **40** 244250]
- [43] Rządkiwicz J, Ślabkowska K, Polasik M, Syrocki L, Carroll J J, Chiara C J 2023 *Phys. Rev. C* **108** L031302
- [44] Tarasov O, Bazin D 2003 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **204** 174

Study of nuclear excitation by electron capture via the stopping of highly charged ions*

Jia Chen-Xu ¹⁾²⁾ Ding Bing ^{1)2)†} Hua Wei ^{3)‡} Guo Song ¹⁾²⁾
 Qiang Yun-Hua ¹⁾²⁾ Chen Hong-Xing ¹⁾²⁾ Wei Rui ⁴⁾ Zhou Xiao-Hong ¹⁾²⁾

1) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

2) (*School of Nuclear Science and Technology, University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China*)

3) (*Sino-French Institute of Nuclear Engineering and Technology, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519082, China*)

4) (*College of Physical Science and Technology, Guangxi Normal University, Guilin 541004, China*)

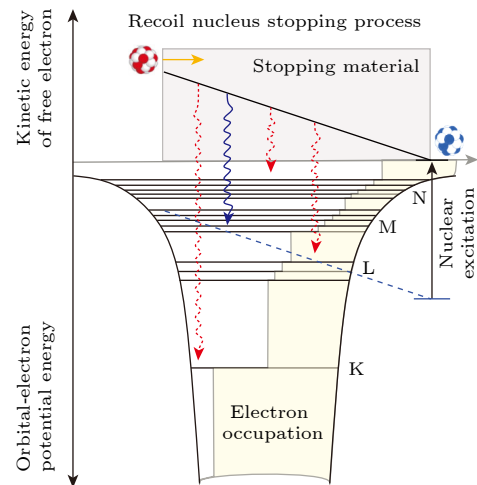
(Received 19 February 2024; revised manuscript received 3 May 2024)

Abstract

The long-lived isomer is a potential energy-storage material with good energy storage density and storage period. However, releasing the stored energy from such an isomer is challenging. A recognized method is isomer depletion: the isomer is excited to an adjacent short-lived energy level, followed by de-excitation to the ground state, releasing all the stored energy. Six possible mechanisms for isomer depletion have been proposed, i.e. photoabsorption, coulomb excitation, inelastic scattering, nuclear excitation by electron transition, nuclear excitation by electron capture (NEEC), and electronic bridge. Among them, NEEC has attracted significant attention in recent years.

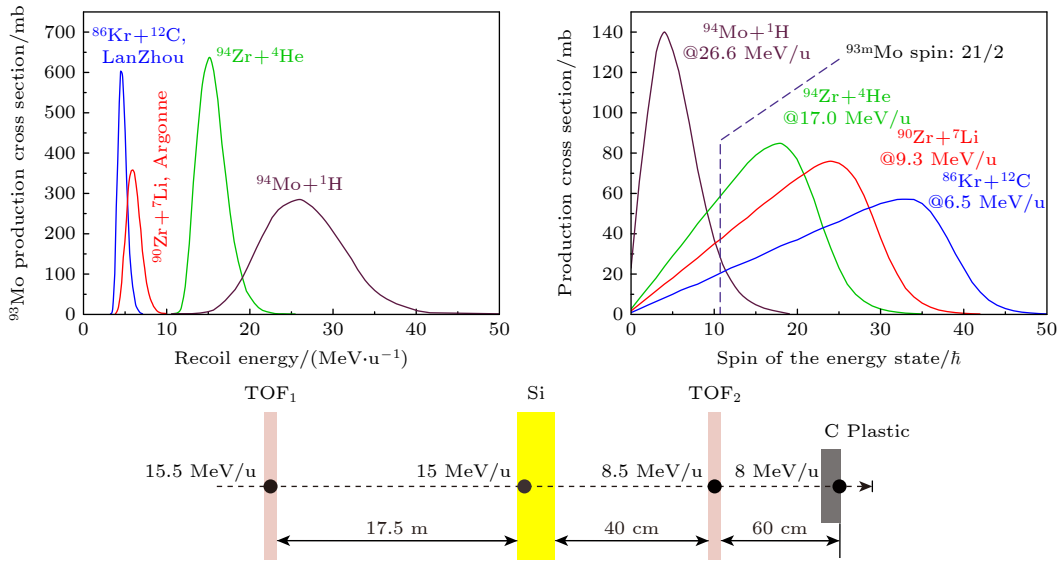
The NEEC occurs when a free electron is captured into an empty atomic orbital, with the nucleus excited simultaneously. To observe the NEEC, one can utilize the stopping process of high-velocity, high-charge-state ions in solid materials. As injected into a stopping material, the ions will be decelerated and capture electrons in the material. In the resonant process of NEEC, the sum of the binding energy and the kinetic energy of the free electron matches the energy required for nuclear excitation. If they do not match, or if the orbitals are already occupied by electrons, the NEEC cannot occur, as indicated by the red arrows in the figure. ^{93m}Mo is an ideal candidate for NEEC measurements. It is an isomeric state with an excitation energy of 2.4 MeV, a spin-parity of $21/2^+$, and a half-life of 6.85 h. In addition, there is an energy level with a spin-parity of $17/2^+$ and half-life of 3.5 ns; its excitation energy is 4.8-keV higher than that of ^{93m}Mo and primarily de-excites to the $13/2^+$ state through a 268-keV gamma ray. This level is referred to as the triggering level in the NEEC process. Once excited to the triggering level, the nucleus decays immediately to the ground state, releasing energy of about 2.4 MeV.

In 2018, Chiara et al. reported the first experimental observation of ^{93m}Mo isomer depletion with a probability of 1.0(3)%, which was attributed to the NEEC mechanism. However, the following theoretical calculations fail to reproduce such a high probability. In 2022, another experiment was devoted to measuring the depletion of ^{93m}Mo in the stopping process. The measurements were performed at the



Heavy Ion Research Facility in Lanzhou. However, no characteristic 268-keV transition caused by isomer depletion was observed, and it was inferred that the upper limit of the excitation probability was about 2×10^{-5} , which is different from the previously reported value of 1%. The beam energy in the Lanzhou experiment is lower than that of the previous data, which can lead to different depletion probabilities. Thus, further experiments are required to clarify this issue.

In this study, two experiments related to NEEC are conducted, the reliability of the experimental results is evaluated from a new perspective of error analysis, and a design scheme is provided for implementing further experiments. According to the proposed experimental setup, the recoil energy is considerably increased and particle-identification devices are added. The detectors for particle identification can cause energy loss, thus the increasing of the recoil energy is also a prerequisite for particle identification. Considering the recoil energy, production cross-section, and the population of high-spin states that can decay to ^{93m}Mo , we recommend the $^{94}\text{Zr} + ^4\text{He}$ as the beam-target candidate for future experiments based on the secondary beam line. In addition, a simple design for particle identification is also introduced in this study.



Keywords: isomer, nuclear excitation by electron capture, isomer depletion, secondary beam, gamma spectroscopy

PACS: 23.35.+g, 23.90.+w

DOI: 10.7498/aps.73.20240276

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11175257, 12375128) and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. S2012010010306).

† Corresponding author. E-mail: dbing@impcas.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: huaw@mail.sysu.edu.cn



利用离子阻停对电子俘获致核激发的研究

贾晨旭 丁兵 滑伟 郭松 强赞华 陈红星 韦锐 周小红

Study of nuclear excitation by electron capture via the stopping of highly charged ions

Jia Chen-Xu Ding Bing Hua Wei Guo Song Qiang Yun-Hua Chen Hong-Xing Wei Rui Zhou Xiao-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 132301 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240276

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240276>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

天体环境下⁶⁶Fe的电子俘获几率计算

Calculations of electron capture rates of ⁶⁶Fe in astrophysical environment

物理学报. 2022, 71(19): 192101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220929>

类氢O、N离子入射Al表面俘获电子布居几率的理论与实验研究

Theoretical and experimental studies on the captured electron population probability of hydrogen-like O and N ions in collision with Al surface

物理学报. 2022, 71(13): 133201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20212434>

中子诱发伽马产生截面测量中的谱分析技术

Spectral analysis techniques in measuring neutron-induced gamma production cross-section

物理学报. 2024, 73(7): 072901 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231980>

激发态丰质子核的双质子发射

Two-proton emission from excited states of proton-rich nuclei

物理学报. 2022, 71(6): 062301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211839>

中高Z元素原子、离子的电子碰撞电离与激发截面快速计算方法

Fast computation approach of electron-impact ionization and excitation cross-sections for atoms and ions with medium- and high-Z elements

物理学报. 2024, 73(10): 103104 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240213>

高电荷态离子阿秒激光光谱研究展望

Prospect for attosecond laser spectra of highly charged ions

物理学报. 2023, 72(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230986>