

# 600MeV $^{18}\text{O} + \text{natPb}$ (厚靶) 系统生成 Hg 同位素独立产额测量(I) 实验和技术\*

张立 赵进华 郑继文 秦芝 杨永峰  
张纯 王积成 郭天瑞 靳根明 胡青元

(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

**摘要** 采用在束气相热色谱的 Hg 元素分离方法和特殊的探测技术, 测量了 600MeV  $^{18}\text{O}$  束轰击厚天然铅靶生成的  $^{180}\text{Hg}$  至  $^{209}\text{Hg}$  计 20 余种放射性 Hg 同位素产物的独立截面. 描写了实验装置、探测技术、 $\gamma$  谱分析以及从递次衰变子体的  $\gamma$  活性来提取 Hg 同位素生成截面的方法.

**关键词** 独立产额 生成截面 放射性同位素 递次衰变

## 1 引言

低能中能乃至相对论能量的重离子或质子轰击各种靶核生成的靶(或炮弹)余核的质量和电荷分布、产物的反冲动量分布及角分布的测量和研究, 一直是近二十余年间十分活跃的研究方向<sup>[1-10]</sup>. 这些研究为人们理解核相互作用和核反应机制提供了丰富的实验基础. 近年来这一方面研究的很大兴趣集中到质量数非常靠近靶的重类靶(或弹)产物上来<sup>[2,4-6]</sup>. 这一研究热点的形成来自以下几个方面: (1) 对核-核周边碰撞过程研究的兴趣. 随着轰击能提高至每核子几十 MeV 的中能区, 与中心碰撞相联系的全融合产物变得不那么重要了, 而包括准弹、深部非弹及非完全融合等的周边碰撞过程逐渐占据了重要的比份<sup>[11]</sup>. 对类靶产物研究, 便成为研究核核碰撞周边过程, 特别是周边反应与融合反应之间竞争的重要手段; (2) 逆运动学研究的兴起及放射性次级束流强度预言的要求. 随着一些相对论重离子加速器装置投入运行, 相对论重离子碎裂产物的研究开始活跃<sup>[4,12]</sup>. 这一系统性的实验研究还可为放射性次级束流强度的预言提供依据.

在低、中能区, 对类靶碎片的测量主要是采用放射化学技术. 而相对论能区的弹碎片则主要用物理探测手段, 如同在 GSI 的碎片分离器上所做的那样<sup>[4,12]</sup>. 放射化学技术中传统的做法是对束流辐照过的靶箔和反冲物吸收片做  $\gamma$  谱学分析. 在进一步的技术发展中,

1997-10-21收稿, 1998-04-10收修改稿

\* 国家自然科学基金(19575056)和中科院重大项目资助

则引入产物的元素分离以提高探测核素的灵敏度<sup>[2]</sup>. 迄今为止, 放射化学方法所提供的实验结果一直存在两个方面的问题: 其一是常规的放射化学方法只能对每个质量链上的少数核素给出独立产额, 对大部分核素则只能给出累积产额. 其二, 由于测量灵敏度的限制, 截面较低的质量数邻近靶核的产物的详细数据尚十分缺乏.

本工作研究了 600MeV  $^{18}\text{O}$  束轰击厚天然铅靶, 从靶核转移出二个质子相对应生成的汞同位素. 发展了一种可以从正在被辐照的铅靶中瞬即分离汞元素产物的特殊的在束气相热色谱式的分离技术, 它具有快速、高选择性、高效的特点. 此技术的采用使在本工作中可探测核素的寿命缩短至数秒的量级. 为提高在丰中子一侧产物的探测灵敏度, 发展了一种特殊的探测安排. 实验总计探测到生成截面从几微巴至几千微巴之间 20 余种汞同位素产物, 且对全部的缺中子和大部分丰中子的汞同位素都能得到独立产额. 本文 (I) 主要描写实验技术和独立截面提取方法, 实验结果和分析将在续文 (II) 中给出.

## 2 实验装置

本工作是在兰州重离子加速器 (HIRFL) 上完成的. 实验装置如图 1 所示.

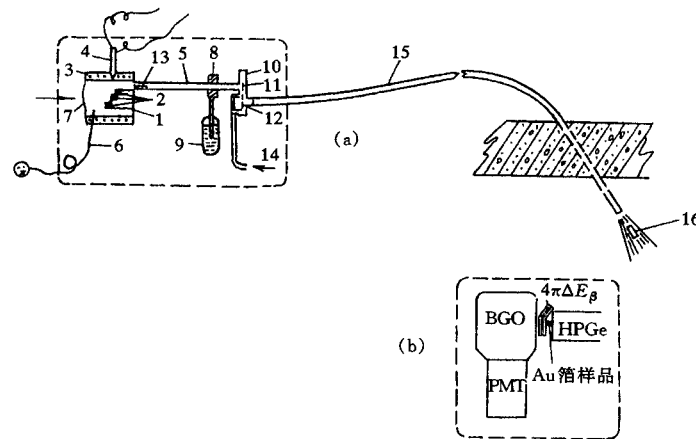


图 1 实验装置示意图

- (a) 靶和分离传输系统; (1) 石墨靶箱, (2) 溶化态铅金属靶; (3) 钨丝加速器, (4) 热偶温度计, (5) 热色谱管, (6) 氮载气导入毛细管, (7) 靶室入射窗, (8) 冷却铜棒, (9) 液氮瓶, (10) 收集室, (11) Au 箔收集器, (12) 收集器出口, (13) 石英毛填料, (14) 高压氮气入口, (15) 跑兔管, (16) 在喷出状态下的兔子, (b) 探测系统.

### 2.1 靶系统

图 1 (a) 区为熔化铅靶气相热色谱式 Hg 元素分离、收集和样品传输系统. 来自 HIRFL 中能加速器 SSC 的能量为 50MeV/u 的  $^{18}\text{O}$  束流穿过降能片和靶室入射窗及石墨靶箱的前壁后, 降至实验室系总动能为 600MeV. 石墨靶箱为五阶梯式, 每梯宽度为 5mm, 每梯层深度亦为 5mm, 但层间有 1mm 的折叠. 因而在垂直于束流平面上靶材料投影为  $\phi 20\text{mm}$  的

圆.设计这种特殊的靶箱既保证了全部有效束流的充分利用,又将产物最大可能的扩散深度限制到 5mm 以下,大大降低了产物脱出可能的时间延迟.整个实验中,石墨靶箱温度控制在 650—700°C 之间.靶箱内的高纯天然铅靶材料处于熔融状态.靶加热前,靶室用涡轮分子泵机组抽至高真空,并持续通以作为载带气体的高纯氦气流,因而避免了铅表面的氧化.

$^{18}\text{O}$  轰击中产生的易挥发性(如 Tl、Hg、At、Po 等)元素的产物,立即挥发脱出熔融态铅靶的表面,并由氦气载带沿直径 6mm,长 40cm 的热色谱管传输.热色谱管的尾端连到伸进液氮瓶的紫铜冷却棒上,用以形成温度在  $-10$ — $-30$ °C 的深冷点,并沿管形成负的温度梯度分布.挥发出的各种产物沿管传输过程中依其凝积温度的不同而沉积到传输管内壁的不同段上.只有凝结温度最低的汞产物可以穿过整个管,被吸附在正对管尾的金箔收集器上.金箔的厚度约为  $10\text{mg}/\text{cm}^2$ .仿照离线装置<sup>[13]</sup>中曾使用的  $^{203}\text{Hg}$  同位素示踪法,标定了 Hg 的脱出、传输至吸收的总效率.最终收集总效率可达  $80 \pm 5\%$ .图 2 给出一典型的被在束收集的 Hg 样品的部分  $\gamma$  射线谱.谱中未发现任何来自除 Hg 以外其它元素同位素的特征  $\gamma$  射线.例如最容易引起沾污的 At 以及 Tl,在测得的  $\gamma$  谱上没有发现其主要特征  $\gamma$  射线(图中“?”所示位置).对分离的 Hg 产物的元素沾污水平在 1% 以下.

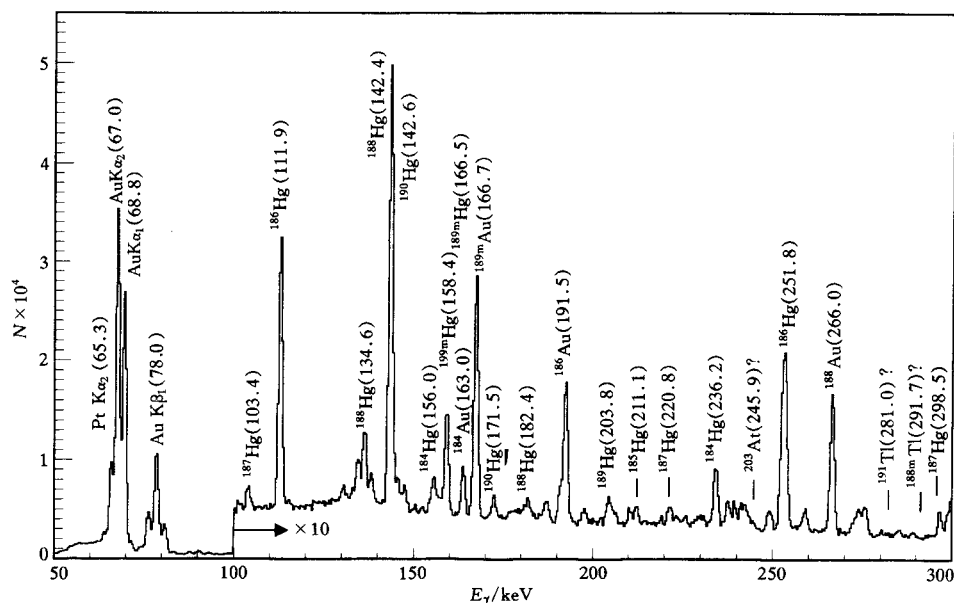


图 2 一典型样品的部分  $\gamma$  射线谱

样品辐照条件: 18nA, 持续 120s; 传输时间 38s, 谱获取时间 420s. 其余见正文.

热色谱分离系统的尾端和跑兔系统相连.该系统有类似机械手的结构,可以在不破坏真空的条件下,将收集好的样品转移至处于大气条件下的出口处,而后由高压氮气将之传输到 50m 以外的测量区.整个过程需 18—25s.辐照束流通过在靶室前束流路径上的气动伸拉式法拉第筒进行测量.靶和热色谱分离部分工作参数的控制与监测,传输部分的功能,测束法拉第筒的伸、拉和控制以及束流记录等均由测试室的控制系统遥控.整个靶系

统及其控制部分参见文献 [14].

## 2.2 探测系统

基于元素分离样品的  $\gamma$  谱分析对中能重离子反应产物作核素指定和产额测量时, 一个主要的困难在于同位素分布太宽, 产物有时多达 20 余种, 生成截面之差常跨越 4 个量级. 通常采取调节辐照和测量时间的方法来优化某些核素的探测条件. 本工作则增加了一种新的探测安排, 其目的在于提高对质量数接近靶核的丰中子产物的探测灵敏度. 如图 1(b) 所示, 这一探测系统由高纯锗 (HPGe)  $\gamma$  射线探测器的能量信号  $E_\gamma$  与  $4\pi\Delta E_\beta$  塑料闪烁体的  $\beta$  射线能损信号  $\Delta E_\beta$  的符合输出再与从大的锗酸铋 (BGO)  $\gamma$  射线探测器输出中提取的 511keV  $\gamma$  射线的时间逻辑信号作反符合构成.  $E_\gamma$  与  $\Delta E_\beta$  的符合可强烈抑制尾随电子俘获 EC 蜕变的缺中子核素  $\gamma$  射线的探测, 而随后的反符合则抑制尾随  $\beta^+$  蜕变的  $\gamma$  线的探测. 经过符合与反符合过滤后的  $\gamma$  谱的康普顿本底与单谱相比降低了大约一个数量级. 同时 EC 蜕变跟随  $\gamma$  射线的强度减弱大约 15 倍,  $\beta^+$  跟随  $\gamma$  减弱约 3 倍. 而与丰中子同位素  $\beta^-$  衰变相关的  $\gamma$  线却能以相对于直接  $\gamma$  谱为  $(46 \pm 3)\%$  的效率被探测. 关于探测系统在参考文献 [15] 中有详尽描写, 在此只作简单概述. 实验数据按时间序列记录方式, 分别记下时间序列的直接  $\gamma$  谱和符合反符合过滤后的结果  $\gamma$  谱.

## 3 实验程序

根据待测 Hg 同位素半寿命分布的不同, 实验采用了两种不同的辐照和测量条件. 一种是辐照时间为 120s, 测量时间为 420s, 时间序列谱的记谱时间单元为 20s; 另一种辐照时间为 100min, 跟踪测量时间约 40h, 记谱时间单元依次为 5min, 20min, 2h. 对前一种辐照条件, 共完成了 143 个循环, 后一种仅进行了 3 个循环.

本实验使用的轰击束流为  $7^+$  电荷态的  $^{18}\text{O}$  束, 强度平均为 2.2pA. 用气动法拉第筒插入靶室来测量束流. 对短辐照时间组, 每样品辐照前后各测一次, 取其平均. 对长辐照时间组, 则每间隔大约 5min 令法拉第筒插入一次. 气动法拉第筒测量的瞬时束流可自动记录. 束流变化借助于最靠近靶位的加速器多丝室和靶附近的中子剂量仪监察. 由于无积分束流的记录, 对短辐照时间组束流强度漂移超过 20% 的辐照认为是无效的.

用已经绝对强度标定过的  $^{152}\text{Eu}$  准  $\gamma$  源进行探测系统的能量和探测效率刻度<sup>[15]</sup>.

## 4 数据处理

同位素的指定基于其特征  $\gamma$  射线能量及活性随时间变化的观察. 在有条件的情况下对一种同位素的指定使用了 2 条或更多的  $\gamma$  射线. 由于在线气相热色谱分离方法的使用, 作为缺中子 Hg 同位素  $\beta$  衰变母体, 同时也是丰中子 Hg 同位素衰变子体的挥发性的 Tl 同位素产物, 在脱离靶材料沿热色谱管传输过程中即与 Hg 分离开了. 这一分离既屏蔽掉了来自 Tl 以上元素沿  $\beta$  衰变链向缺中子 Hg 同位素的馈送, 又避开了直接生成的 Tl 产物对从丰中子 Hg 同位素  $\beta^-$  衰变中生长起来的子体 Tl 同位素观察的干扰. 因此, 在本工作中同位素

的指定不仅可以通过 Hg 同位素的直接  $\gamma$  观察来进行, 而且可以通过沿其  $\beta$  衰变链的子体的  $\gamma$  射线观察来确认. 这在特别短寿命 Hg 同位素的观察时显得非常重要. 有时同位素的指定需要借助于不仅第二代而且更下一代子体的单独或同时观察.

为此我们推导出适用于本实验特定条件的解析表达式, 来描写 Hg 同位素及其子体在辐照过程中的积累及辐照结束后的衰变. 若某 Hg 同位素的平均生成截面为  $\sigma$ , 轰击束流强度为  $I_B$ , 有效靶核数为  $n_A$ , 则在辐照开始后的某一时刻  $t_a$  该同位素的放射性核积累量  $N_1(t_a)$  为<sup>[16]</sup>

$$N_1(t_a) = \frac{M}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t_a}), \quad (1)$$

其中,  $\lambda_1$  为该同位素的衰变常数,  $M$  为该 Hg 同位素生成率:

$$M = I_B n_A \sigma. \quad (2)$$

辐照期间 (也就是在束分离和收集过程中) 来自直接生成的第一代产物  $N_1$  的衰变形成的该同位素第二代子体的放射性核量  $N_2$  的生长可通过解关于  $N_2$  的方程推出

$$N_2(t_a) = \frac{M}{\lambda_2} \left( 1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_1 t_a} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t_a} \right), \quad (3)$$

$\lambda_2$  为其第二代子体核的衰变常数. 依次又可得第三代子体核  $N_3$  为

$$N_3(t_a) = \frac{M}{\lambda_3} \left( 1 - \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_3)} e^{-\lambda_1 t_a} - \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_2 t_a} - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_2)} e^{-\lambda_3 t_a} \right), \quad (4)$$

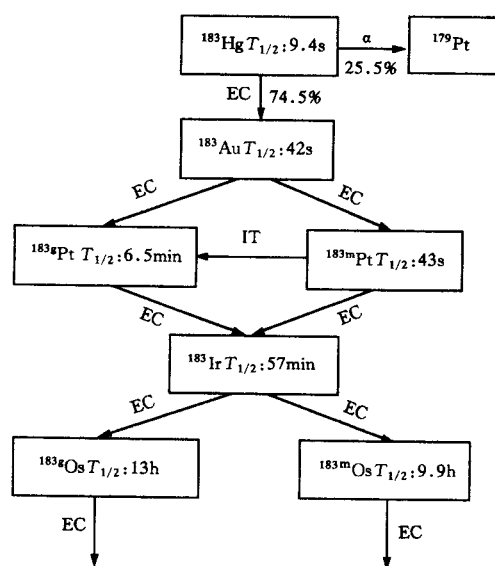
$\lambda_3$  为第三代子体核的衰变常数. 通过微分方程求解, 第四代子体  $N_4(t_a)$  亦可推出. 对第  $I$  代子体的放射性核  $N_I$  可归纳出:

$$N_I(t_a) = \frac{M}{\lambda_I} \left( 1 + (-1)^I \sum_{i=1}^I e^{-\lambda_i t_a} \prod_{j=i+1}^I \frac{\lambda_j}{(\lambda_i - \lambda_j)} \right). \quad (5)$$

辐照结束后, 样品内所包含的各核素的衰变以及对各自  $\beta$  衰变链子体的贡献均可按放射性衰变和递次衰变规律<sup>[16]</sup>来处理. 对于特定某 Hg 同位素的第  $I$  代子体, 在从辐照结束计起的某一时刻  $t_d$  的核数  $N_I^d$  可表示为

$$N_I^d(t_d) = \sum_{k=1}^I (-1)^{I-k} \left( \prod_{i=k}^{I-1} \lambda_i \right) N_k^0 \times \left[ \sum_{i=k}^I e^{-\lambda_i t_d} / \prod_{\substack{j=i \\ j \neq k}}^I (\lambda_i - \lambda_j) \right], \quad (6)$$

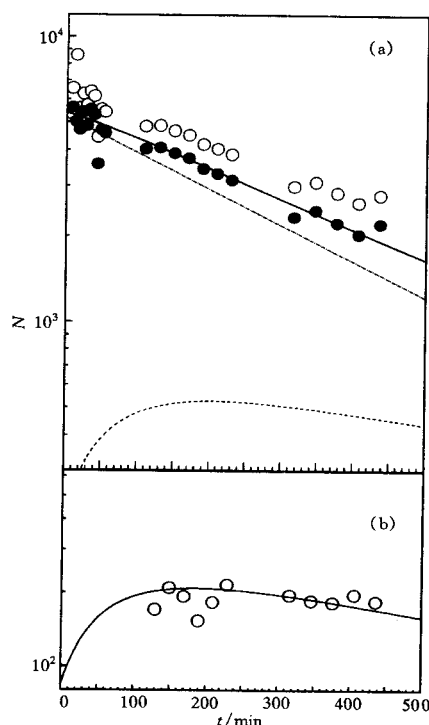
(6) 式中  $t_d$  时刻某放射性成分  $N_I(t_d)$  可通过相应的  $\gamma$  放射性活度测量来推出.  $N_k^0$  为第  $k$  代核到辐射结束时总积累量. 当  $t_d = 0$  时,  $N_k^d = N_k^0$ . 将所推出的值代入方程 (5), 在其它各

图3  $^{183}\text{Hg}$ 及其Beta衰变子体

量为已知的情况下即可算出第一代核生成截面 $\sigma$ 。

依据方程(1—6),可将 Hg 同位素截面的提取过渡到对其任一子体放射性活度的测量,核素的鉴别和辐照结束时刻放射性活度的计算.我们可以选择 Hg 同位素衰变链上某一代或同时几代子体,只要它具有一适于观察的特征 $\gamma$ 射线.以下将以 $^{183}\text{Hg}$ 为例来说明这一过程.在本实验条件下无法观察到半寿命为 9.4s 的 $^{183}\text{Hg}$ 自身的 $\gamma$ 活性.这是由于从辐照停止到测量开始有 45s 的平均间隔时间.另一方面, $^{183}\text{Hg}$ 的生成截面在整个 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.图 3 给出了 $^{183}\text{Hg}$ 与其子体的衰变关系及可能观察的 $\gamma$ 射线<sup>[17,18]</sup>.第四代子体 $^{183}\text{Ir}$ 有 57min 的半寿命,但其主要的能量 228.5keV 和 282.4 keV 2条 $\gamma$ 射线均存在复杂的干扰成份.它的第五代子体 Os 的两个态均有较长的半寿命.可在长时间辐照中累积起较高的 $\gamma$ 活性.因此本实验选择 $^{183g}\text{Os}$ 和 $^{183m}\text{Os}$ 作为观测目标.

$^{183g}\text{Os}$ 分支比最高(77%)的特征 $\gamma$ 射线的能量为 381.1keV.除 $^{183g}\text{Os}$ 外,381.1keV  $\gamma$ 峰内可能包含的另外三种成份:(1)381.4keV 半衰期为 10.2d,分支比为 7.47% 的 $^{188}\text{Pt}$ 的 $\gamma$ 射线;(2)381.6keV 半衰期为 3.80h,分支比为 11% 的 $^{193g}\text{Hg}$ 的 $\gamma$ 射线;(3)381.6keV 半衰期为 11.8h,分支比为 3.1% 的 $^{193m}\text{Hg}$ 的 $\gamma$ 射线<sup>[17]</sup>.我们采用如下步骤提取 381.1keV 中的 $^{183g}\text{Os}$ 组份.由于长寿命低分支比的 $^{188}\text{Pt}$ 衰变组份非常弱,远低于测量误差范围,忽略这部分贡献不致造成太大的误差.而 $^{193m}\text{Hg}$ 的贡献在已知其生成截面后可以扣除.扣除 $^{193m}\text{Hg}$ 后的剩余 $\gamma$ 活性按 $^{183g}\text{Os}$ ,  $^{193g}\text{Hg}$ 做二组份的最小二乘法拟和,拟和结果及分别的二组份的形式见

图4  $^{183}\text{Os}$   $\gamma$ 活性的提取

(a)  $^{183g}\text{Os}$  381.1keV  $\gamma$ 射线活性的多组份分解:

空圆点为从 $\gamma$ 谱分解所得的 381.1keV  $\gamma$ 射线活性随时间变化,实圆点是扣除 $^{193m}\text{Hg}$ 贡献后的剩余活性,实线是

最小二乘法拟合, $^{193g}\text{Hg}$ 和 $^{183g}\text{Os}$ 二组份;

---  $^{193g}\text{Hg}$ ; - - -  $^{183g}\text{Os}$ ;

(b)  $^{183m}\text{Os}$  1102keV 射线活性的生长衰变拟合。

图 4(a).

1102keV 是  $^{183\text{m}}\text{Os}$  最强一条  $\gamma$  线. 对它的干扰可能有半寿命为 53.0s、分支比为 0.6%、能量为 1100.5keV 的  $^{184}\text{Au}$  的弱  $\gamma$  射线, 以及半寿命为 3.02h、分支比为 0.9%、能量为 1101.5keV 的另一条  $^{184}\text{Ir}$  弱  $\gamma$  射线<sup>[17]</sup>.  $^{184}\text{Au}$  对此  $\gamma$  峰的干扰随时间急剧衰减, 而  $^{184}\text{Ir}$  在测量开始一段时间后可忽略不计. 因此可将测量开始 1.5h 后的 1102keV  $\gamma$  活性依照方程 (6) 所给出的生长衰变形式做  $^{183\text{m}}\text{Os}$  单组份拟合. 结果如图 4(b) 所示.

## 5 讨论

与常规放射化学方法研究生成截面的辐照过程相比, 本实验有如下特点:

(1) 对缺中子汞同位素: 当它的  $\beta$  衰变母体 Tl 同位素的半寿命短到可以与产物脱出加传输时间之和相比是很短时, 必须考虑辐照过程中从 Tl 向 Hg 同位素的馈入. 本工作中缺中子 Hg 同位素截面均按独立截面看待. 但应指出, 凝结在传输管上的 Tl 同位素的  $\beta$  衰变反冲也可能对 Hg 同位素截面有微小贡献.

(2) 对丰中子汞同位素: 由于其  $\beta$  衰变母体 Au 同位素滞留在熔化铅靶内不能脱出, 形成不断地向 Hg 同位素馈送源. 只有当某种 Au 同位素的半衰期非常长, 或其生成截面与对应的 Hg 同位素生成截面相比非常小的情况下, 才可忽略来自直接生成的 Au 同位素向丰中子 Hg 同位素的馈入. 本工作对比  $^{206}\text{Hg}$  更丰中子的同位素忽略了 Au 产物向 Hg 的馈送.

## 参 考 文 献

- [ 1 ] Loveland W et al. Phys. Rev., 1990, **C41**:973—987
- [ 2 ] Summner K et al. Phys. Rev., 1990, **C42**:2546—2561
- [ 3 ] Casey C et al. Phys. Rev., 1989, **C40**:1244—1253
- [ 4 ] Schmidt K H et al. Phys. Lett., 1993, **B300**:313—316
- [ 5 ] Rehm K E et al. Phys. Rev., 1990, **C42**:2497—2507
- [ 6 ] Yanez R et al. Phys. Rev., 1995, **C52**:203—218
- [ 7 ] Dufour J P et al. Nucl. Phys., 1982, **A387**:157c—175c
- [ 8 ] de Boer F W N et al. Z. Phys., 1986, **A325**:457—466
- [ 9 ] Aleklett K et al. Phys. Rev., 1981, **C23**:1044—1046
- [10] Hufnez J Phys. Rep., 1985, **125**:129—185
- [11] Daniel Guerreau. Nucl. Phys., 1985, **A447**:37c—66c
- [12] Schmidt K H et al. Nucl. Phys., 1992, **A542**:699—714
- [13] Zhang Li et al. Phys. Rev., 1994, **C49**:R592—596
- [14] Zhao Jinhua et al. Atomic Energy Science and Technique, 1997, **31**(6):528—534
- [15] Zhang Li et al. High Energy Phys. and Nucl. Phys.(in Chinese), 1997, **21**(10):891—896  
(张立等, 高能物理与核物理, 1997, **21**(10):891—896)
- [16] Lu Xiting. NUCLEAR PHYSICS, Beijing, Atomic Energy Publishing House(in Chinese), 1981:22—31  
(卢希庭, 原子核物理, 北京, 原子能出版社, 1981:22~31)
- [17] Reus U, Westmeich W. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1983, **29**:1—406
- [18] Nuclear Wallet Cards (Fifth edition) ed. by Jagdish K. Tuli, National Nuclear Data Center for The U.S. Nuclear Data Network

**Independent Yield Measurement for the Hg-Isotope  
Products From 600 MeV  $^{18}\text{O} + ^{\text{nat}}\text{Pb}$ (thick target)  
System \* (I) Experiment and Technique**

Zhang Li   Zhao Jinhua   Zheng Jiwen   Qin Zhi   Yang Yongfeng  
Zhang Chu   Wang Jicheng   Guo Tianrui   Jin Genming   Hu Qingyuan

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

**Abstract** With an on-line, gas-thermochromatographic Hg element separation as well as a special detection technique, the independent cross sections of the radioactive Hg-isotopes produced from a 600MeV  $^{18}\text{O} + ^{\text{nat}}\text{Pb}$ (thick target) reaction system were determined. The independent cross sections of 22 Hg-isotope nuclides in the mass range from  $^{180}\text{Hg}$  to  $^{209}\text{Hg}$  were measured. The experimental set-up, the detection technique, the  $\gamma$ -spectrum analyses and the extraction method of production cross sections based on the  $\gamma$  activities from the successively decaying daughter nuclei were described.

**Key words** independent yield, production cross section, radioactive isotope, sequential decay

---

Received 21 October 1997, Revised 10 April 1998

\* Supported by the National Natural Science Foundation of China (10575056) and The Chinese Academy of Sciences