

文章编号: 1007-4627(2008)03-0236-04

天然 Pt 和 Al 对比材料中 ${}^7\text{Be}$ 衰变率差别的测量*

李成波, 文群刚, 孟秋英, 刘志毅, 周书华, 李笑梅, 周 静,

傅元勇, 胡守扬, 周 峰, 李守平

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘 要: 将 HI-13 北京串列加速器次级束流线产生的放射性核素 ${}^7\text{Be}$ 分别注入到天然 Pt 和 Al 中, 利用两个高纯锗探测器同时测量 ${}^7\text{Be}$ 经由 ${}^7\text{Li}$ 第一激发态衰变后跃迁到基态产生的 478 keV γ 射线产额随时间的变化, 结果在实验误差范围内 ($<0.14\%$) 没有发现 ${}^7\text{Be}$ 衰变率在 Pt 与 Al 中有明显差别, 讨论了这两种材料的电子亲和势及有效电子密度与 EC 衰变率的关系。

关键词: 电子俘获; 衰变率; 电子亲和势; 有效电子密度

中图分类号: O571.32⁺2 **文献标识码:** A

1 引言

放射性核素的衰变率特别是发生轨道电子俘获 (EC) 的衰变率与核外电子密度密切相关, 改变核外的物理、化学环境就可能改变核外电子密度, 从而影响这些核素的衰变率^[1-4]。精确测量这些核素的衰变率以及研究它们在不同核外环境中衰变率的变化在许多领域, 例如核物理、凝聚态物理、核天体物理、地球化学、地质年代学、核废物处理等有着重要的应用。近年来, 由于受太阳中微子丢失问题、地质断代问题及衰变率变化势垒应用等研究热点的刺激, 加上探测手段和测量技术的不断进步, 该研究课题再次受到关注^[5-16]。 ${}^7\text{Be}$ 是最轻的 EC 衰变核素, 电子壳层结构简单, 其半衰期约为 53.3 d, 长短比较适中, ${}^7\text{Be}$ 的衰变过程约有分支比 10% 经由 ${}^7\text{Li}$ 的第一激发态跃迁到基态, 伴随产生约 478 keV 的 γ 射线, 可以通过探测这一特征射线来研究其衰变率的变化。基于以上原因, ${}^7\text{Be}$ 成为研究核 EC 衰变率变化的最佳候选者。Huh^[5] 报道了不同化合态 ${}^7\text{Be}$ 衰变率的变化, 随后 Liu 等^[6] 的实验结果证明, 在不同压强下, ${}^7\text{Be}$ 衰变率变化达到 1.5%。Ray 等^[7] 做了注入在不同材料中 ${}^7\text{Be}$ 衰变率变化的实验, 测量到了 0.7% 的差别 (在 Au 和 Al_2O_3 中), 他们还将凝聚态物理中常用的 TB-LMTO 方法引入这一交叉问题, 对其实验结果给出了较好的解

释^[7, 8, 13]。刘志毅等^[11] 测量了 ${}^7\text{Be}$ 注入到对比样品 Au 和 Be 中的电子俘获衰变率的相对变化, 在误差范围内没有看到差别, 说明 ${}^7\text{Be}$ 在不同材料中的衰变率不仅与材料的电子亲和势有关, 还受到材料晶格结构的影响。周书华等^[15] 测量到 ${}^7\text{Be}$ 在 Pd 中的电子俘获衰变率比 Au 中高出 0.8%, 提出金属材料中的准自由电子有效密度也可能是影响 ${}^7\text{Be}$ 衰变的一个重要因素。Wang 等^[16] 测量了低温下 ${}^7\text{Be}$ 在金属 Pd 和 In 等材料中衰变率的变化, 发现半衰期分别增加了 0.9% 和 0.7%。

本实验测量了 ${}^7\text{Be}$ 注入到对比样品 Pt 和 Al 中的电子俘获衰变率的相对变化, 并讨论了这两种材料的电子亲和势及有效自由电子密度与 EC 衰变率的关系。

2 实验

实验采用中国原子能科学研究院 HI-13 串列加速器的次级束流线上产生的能量约 28 MeV 的 ${}^7\text{Be}$ 放射性束注入到宿主材料 Pt 和 Al 中制成实验所需的 ${}^7\text{Be}$ 源样品。每个宿主靶片辐照约 35 h。宿主材料由天然 Pt 和 Al 碾压而成, 厚度分别为 50 μm 和 2 mm。因为核外电子密度与金属晶格结构密切相关, 为消除制靶过程中造成的晶格损伤, 将靶片在真空中做了退火处理。为了消除辐照过程中可能造

* 收稿日期: 2007 - 11 - 20; 修改日期: 2008 - 06 - 20

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (10305020)

作者简介: 李成波 (1974 -), 男 (汉族), 河北东光人, 博士, 副研究员, 从事实验核物理研究; E-mail: lcb@ciae.ac.cn

成的晶格损伤，将辐照后的样品再次进行退火处理。

将辐照制作的 ^7Be 源样品冷却 120 d，以尽可能地消除辐照过程中产生的短寿命核素的影响。然后，用两套高纯锗探测器同时测量 ^7Be 在 Pt 和 Al 中 EC 衰变伴随的 478 keV γ 射线。在测量过程中，样品被牢固地安置在 HPGe 探测器探头上方，不会因几何位置的变动而造成探测效率的变化。样品和探头放置于 107 mm 后的铅屏蔽体内，以减小小环境本底的影响。另外，为使谱仪和电子学仪器工作稳定，室内温度保持在 18—22 $^{\circ}\text{C}$ 之间。用 KODAQ 数据获取系统每小时自动记录 γ 谱。实验测量持续了 70 d，然后交换两个 ^7Be 源样品的位置继续测量 125 d，由此可减小两套探测器和电子学系统的差别引起的系统误差。

图 1 给出了一个典型的实验 γ 能谱。将每小时获取的数据按天累加，利用平滑的阶梯函数扣除本

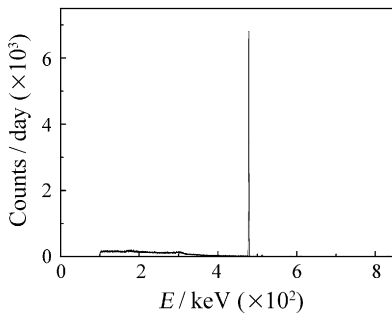


图 1 一个典型的实验 γ 能谱

底得到 478 keV γ 射线的净峰面积。峰面积统计误差约 0.04%，本底大约占峰面积的 1.4%，不同本底扣除方法造成的本底扣除误差小于 0.05%。利用脉冲产生器测量电子学和数据获取系统的死时间，利用非扩展死时间公式对测量计数率进行死时间修正。数据分析中为了尽量减小系统误差，采用了对比法，测量两种材料中衰变率的相对变化而不是每个衰变率的绝对数值。用 A_{Pt} 和 A_{Al} 分别表示相应的探测器从 t 到 $(t+1)$ 天测量到的 478 keV γ 粒子数，由指数衰减律可得：

$$\ln\left(\frac{A_{\text{Al}}}{A_{\text{Pt}}}\right) = \ln\left(\frac{A_{\text{Al}}^0}{A_{\text{Pt}}^0}\right) + \Delta\lambda t, \quad (1)$$

其中 $\Delta\lambda = \lambda_{\text{Pt}} - \lambda_{\text{Al}}$ 表示 ^7Be 在 Pt 和 Al 中衰变率之差。它可以由实验数据 $\ln(A_{\text{Al}}/A_{\text{Pt}})$ 随时间 t 变化

的线性拟合斜率值得到。图 2 给出了 ^7Be 在对比样品中 $\ln(A_{\text{Al}}/A_{\text{Pt}})$ 随时间 t 的变化图。

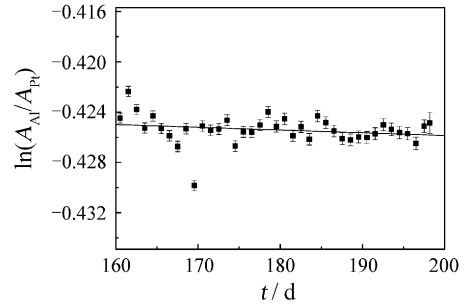


图 2 ^7Be 在对比样品中 $\ln(A_{\text{Al}}/A_{\text{Pt}})$ 随时间 t 的变化图

3 结果讨论

对图 2 数据进行拟合，得到样品交换前后 $\Delta\lambda/\lambda$ 分别为 $(-0.035 \pm 0.055)\%$ 和 $(0.04 \pm 0.14)\%$ 。该结果显示，在实验误差范围内，没有看到 ^7Be 在 Pt 与 Al 中衰变率的相对变化。

从表 1 可以看到，Pt 与 Al 的晶格结构参数是相似的，而 Pt 的电子亲和势 (2.128 eV) 比 Al (0.441 eV) 的大得多，因此，按 A. Ray 的观点，对晶格结构相似的宿主材料，电子亲和势是影响 EC 衰变率的主要因素。电子亲和势越大，材料吸引电子能力越强，相应的 ^7Be 越难以俘获电子因而衰变率变小。因此电子亲和势的差别使得 ^7Be 在 Pt 中的衰变率应该小于在 Al 中的值。表 2 给出了 TB-LMTO 方法计算的预期值与实验测量结果的比较。从表 2 可以看到，不考虑金属准自由电子影响的 TB-LMTO 方法预测，由于 Pd, Au, Al 和 Pt 的晶格结构相似而 Al 和 Pd 的电子亲和势都显著大于 Pt 和 Au 的值 (见表 1)，因此 Pd-Au 与 Al-Pt 两组材料中的衰变率变化 ($\Delta\lambda/\lambda$) 具有相似的理论预测值，分别为 0.30% 和 0.38%。然而我们的实验测量结果却显示：Pd-Au 组材料中的衰变率变化比预期值明显偏高 (0.8%)，而 Al-Pt 组材料中却明显偏低 ($<0.14\%$)。

如何解释这种差别呢？我们不得不考虑其他因素可能产生的影响。我们先前的实验^[15]中提出一个重要的可能影响因素就是金属中准自由电子在衰变核附近的有效密度 (德拜模型)： ^7Be 核周围准自由电子密度越大，它越容易俘获电子，因而 EC 衰变越快。从表 1 中可以看到 Pd 中的有效电子密度

(6.3)要比 Au 中(0.9)的大得多,有效电子密度的差别使得注入到 Pd 中的 ^7Be 比 Au 中衰变加快,它增强了电子亲和势差别对 ^7Be 衰变率的影响趋势,使得实验测量值比不考虑金属准自由电子的 TB-LMTO 预期值要高。相反地,由于 Al 中的有效电子密度(3.0)要比 Pt 中(4.6)的小,有效电子密度的差别使得注入到 Al 中的 ^7Be 比 Pt 中衰变变慢,它的作用与电子亲和势差别的影响恰好相互消弱,从而使得实验中观察不到这两种材料中 ^7Be 衰变率的明显差别。本次实验结果进一步支持了不同金属中准自由电子有效密度对 EC 衰变率的影响。

除 Pd-Au 和 Al-Pt 两组对比材料外,本课题组还测量了 ^7Be 注入到 Au 和 Be 对比材料中衰变率的相对差别^[11],材料的相关性质参见表 1,测量结果参见表 2。所有这些研究结果显示:材料的电子亲和势、晶格结构参数以及金属材料中准自由电子的有效电子密度都会对 ^7Be 衰变率产生影响。对晶格结构相似的材料,电子亲和势越大, ^7Be 衰变越慢,而准自由电子密度越大, ^7Be 衰变越快。理论上,材料的电子亲和势及晶格结构参数对 ^7Be 衰变的影响可以用 TB-LMTO 模型^[7, 8, 13]较好地描述,而准自由电子有效电子密度的影响还需作进一步的研究。

表 1 几种不同注入材料与 ^7Be 衰变率的相关性质^[17-20]

材料	电子亲和势 V_{EA}/eV	有效电子数 n_{eff}	晶系	晶胞参数					
				a/pm	b/pm	c/pm	$\alpha/(\text{^\circ})$	$\beta/(\text{^\circ})$	$\gamma/(\text{^\circ})$
Be	-0.19	0.2	hcp	228.58	228.58	358.43	90	90	120
Au	2.309	0.9	ccp	407.82	407.82	407.82	90	90	90
Pd	0.562	6.3	ccp	389.07	389.07	389.07	90	90	90
Al	0.441	3.0	ccp	404.95	404.95	404.95	90	90	90
Pt	2.128	4.6	ccp	392.42	392.42	392.42	90	90	90

表 2 ^7Be 在不同对比材料中衰变率的差别与理论预测值的比较

编号	对比材料	$\Delta\lambda/\lambda$	$\Delta\lambda/\lambda$ TB-LMTO
		实验测量值	理论预测值
1	Be, Au	$<0.12\%$	0.04%
2	Pd, Au	$(0.8 \pm 0.2)\%$	0.30%
3	Al, Pt	$<0.14\%$	0.38%

致谢 作者感谢中国原子能科学研究院制靶组提供实验用的靶片,感谢中国原子能科学研究院 HI-13 串列加速器运行人员和 RNB 实验组提供实验所需的 ^7Be 放射性束流,特别感谢 A. Ray 教授关于 TB-LMTO 计算的讨论和帮助。

参考文献 (References):

[1] Emery G T. Ann Rev Nucl Sci, 1972, **22**: 165.
 [2] Dostal K P, Nagel M, Pabst D. Z Naturforsch, 1977, **32a**: 345.
 [3] Daudel R. Rev Sci, 1947, **85**: 162.
 [4] Segre E. Phys Rev, 1947, **71**: 274.
 [5] Huh C A. Earth and Planetaty Sci Lett, 1999, **171**: 325.

[6] Liu L G, Huh C A. Earth and Planetary Sci Lett, 2000, **180**: 163.
 [7] Ray A, Das P, Saha S K, *et al.* Phys Lerr, 1999, **B455**: 69.
 [8] Ray A, Das P, Saha S K, *et al.* Phys Lett, 2002, **B531**: 187.
 [9] Norman E B, Rech G A, Browne E, *et al.* Phys Lett, 2001, **B519**: 15.
 [10] Souza D J, Kegel G H R, Egan J J, *et al.* J Nucl Sci Technol, 2002, **2**(Suppl 1): 470.
 [11] Liu Z Y, Li C B, Wang S G, *et al.* Chin Phys Lett, 2003, **20**: 829.
 [12] Ohtsuki T, Yuki H, Muto M, *et al.* Phys Rev Lett, 2004, **93**: 112 501-1.
 [13] Das P, Ray A. Phys Rev, 2005, **C71**: 025 801.
 [14] Limata B N, Fulop Z, Schurmann D, *et al.* Eur Phys J, 2006, **A27**: 193.
 [15] Zhou Shuhua, Liu Zhiyi, Zhou Jing, *et al.* Chin Phys Lett, 2005, **22**: 565.
 [16] Wang B, Yan S, Limata B, *et al.* Eur Phys J, 2006, **A28**: 375.
 [17] Lide D R. CRC Handbook of Chemistry and Physics, 2002, **83**: 10.
 [18] Raiola F, Gang L, Bonomo C, *et al.* Eur Phys J, 2004, **A19**: 283.
 [19] Maeland A, Flanagan T B. Can J Phys, 1964, **42**: 2 364.
 [20] Rao C N, Rao K K. Can J Phys, 1964, **42**: 1 336.

Measurement of Decay Rate Variation of ^7Be in Pt and Al*

LI Cheng-bo¹⁾, WEN Qun-gang, MENG Qiu-ying, LIU Zhi-yi, ZHOU Shu-hua, LI Xiao-mei,
ZHOU Jing, FU Yuan-yong, HU Shou-yang, ZHOU Feng, LI Shou-ping
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: We measured the variation of the decay rate of ^7Be implanted in Pt and Al host materials by detecting the 478 keV γ -ray emitted from the first excited state of ^7Li which is produced by EC decay of ^7Be with two HPGe detectors simultaneously, and found no difference of ^7Be decay rate in Pt from that in Al within our experimental error ($<0.14\%$). We discussed the relation of the decay rate variation with the electronic affinities and effective electron densities near the implanted ions in the two different host materials.

Key words: EC; decay rate; electronic affinity; effective electron density

* Received date: 20 Nov. 2007; Revised date: 20 Jun. 2008

* Foundation item: National Natural Science Foundation of China(10305020)

1) E-mail: lcb@ciae.ac.cn