文章编号：1007－4627(2007)03－0200－04

^{7}Be在 Pd 和 Au 中衰变率变化的相对测量*

李成波，刘志毅，周书华，周　静，孟秋英
（中国原子能科学研究院，北京 102413）

摘　要：将 HI-13 串列加速器次级束流线产生的放射性核素^{7}Be分别注入到 Pd 和 Au 中，利用两个高纯锗探测器同时测量^{7}Be EC 衰变核素^{7}Li 第一激发态放出的 478 keV γ 射线产额随时间的变化，发现^{7}Be在 Pd 中的衰变率比在 Au 中大(0.8±0.2)%，并讨论了衰变率差别与这两种材料的电子亲合势及有效电子密度的关系。

关 键 词：电子俘获；衰变率；电子亲合势；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、地质年代学和核废物处理等，有着重要的应用。放射性核素衰变率变化的研究很早就已开始，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，这一课题又重新引发起人们的研究兴趣[5—15]。Huh 等[5]报道了不同化合态^{7}Be衰变率变化，随后 Liu 等[6]的实验结果证明，在不同压强下，^{7}Be衰变率变化达到 1.5%。Ray 等[7]做了注入到不同材料中^{7}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 TBLMTO 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]。Wang 等[15]测量了低温下^{7}Be在金属 Pd 和 In 等材料中衰变率的变化。

^{7}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。^{7}Be的衰变过程约有 10%经由^{7}Li的第一激发态退激到基态，伴随放出约 478 keV 的 γ 射线。由于以上原因，^{7}Be成为研究核 EC 衰变率变化的最佳候选者。轨道电子俘获衰变率的变化是由于衰变核附近电子密度的改变造成的，而电子密度与宿主材料的晶格结构和电子亲合势等诸多因素有关。Pd 与 Au 的晶格结构相似，电子亲合势和有效电子密度的差别都有导致^{7}Be在 Pd 中的衰变率比在 Au 中的变大的趋势。本文中我们测量了^{7}Be注入到 Pd 和 Au 中的电子俘获衰变率的相对变化。

2　实验

本实验中宿主材料由天然 Pd 和 Au 碾压而成，厚度分别为 40 和 60 μm。为消除金属碾压过程中造成的晶格损伤，将靶片置于真空中退火 1 h，Pd 和 Au 的退火温度分别为 650 和 500 ℃。

将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^{7}Be放射性束注入到宿主材料 Pd 和 Au 中制成实验所需的^{7}Be源样品。^{7}Be放射性束流的能量为 28.4 MeV，束流强度约 1×10^4—2×10^4/s。每个宿主靶片辐照约 50 h。^{7}Be束流中还夹杂着 14.3 MeV 的^{7}Li，强度约为^{7}Be的 4 倍。利用 SRIM 程序计算表明，在 Pd 和 Au 中^{7}Li的射程要比^{7}Be短得多，所以^{7}Be位置处由^{7}Li造成的 Pd 与 Au 晶格结构辐射损伤可以忽略。

将辐照制成的^{7}Be源样品冷却 30 d，以尽可能消除辐照过程中产生的短寿命核素的影响。然后，

* **收稿日期**：2006－11－08；**修改日期**：2007－04－23
* **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

同时用两套高纯锗探测器(对 1.33 MeV γ 射线的能量分辨约为 2.5 keV)测量^{7}Be在 Pd 和 Au 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 HP Ge 探测器探头上方，不会因几何位置的变动而造成探测效率变化。样品和探头放置于 107 mm 厚的铅屏蔽体内，以减小环境本底的影响。同时，为使谱仪和电子学仪器工作稳定，室内温度保持在 18—22 ℃之间。用 KODAQ 数据获取系统记录 γ 谱。获取系统每小时自动记录一次数据。实验测量持续了 54 d，然后交换两个^{7}Be源样品的位置继续测量了 81 d，由此可以减小两套探测器和电子学系统的差别引起的系统误差。实验测得每个探测器的计数率约为 4/s，因此，死时间校正和脉冲堆积效应可以忽略。图 1 给出了实验获取的一个典型的^{7}Be衰变 γ 谱。

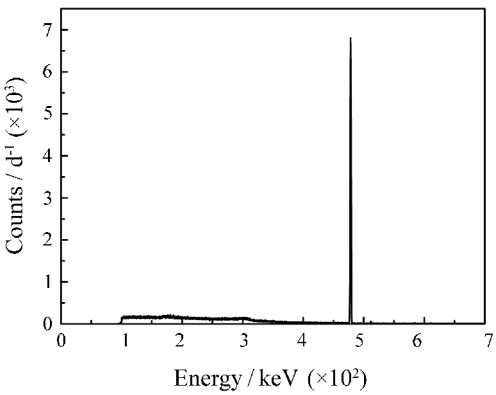

图 1　实验获取的典型 ^{7}Be衰变 γ 谱

3　结果及讨论

如前所述，本实验分交换源位置前和交换源位置后两个阶段进行测量的，故在一定程度上消除了由系统差别造成的误差。数据分析中为了尽量减小系统误差，我们采用了对比法，即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。经比较计算，统计误差是本实验中所考虑的主要误差来源。

首先，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底得到 478 keV γ 射线的净峰面积。用 A_{Pd}和 A_{Au}分别表示相应的探测器从 t 到($t+1$)天测量得到的 478 keV γ 射线的计数，由指数衰减律得到：

$$\ln\left(\frac{A_{Au}}{A_{Pd}}\right)=\ln\left(\frac{A^0_{Au}}{A^0_{Pd}}\right)+\Delta\lambda\, t\ ,$$

其中 $\Delta\lambda=\lambda_{Pd}-\lambda_{Au}$表示 ^{7}Be在 Pd，Au 衰变率的差。

图 2 给出了^{7}Be源样品交换前后 $\ln(A_{Au}/A_{Pd})$随时间的变化图。对图 2 中的数据采用加统计权重的最小二乘法线性拟合得到 Δλ 值，利用通常使用的^{7}Be半衰期 53.3 d，得到样品交换前后 Δλ/λ 分别为(1.0±0.4)%和(0.7±0.3)%，平均值为(0.8±0.2)%。也就是^{7}Be在 Pd 中的衰变率比在 Au 中的衰变率大(0.8±0.2)%。这一实验结果可以从两种材料的电子亲合势及^{7}Be核在这两种材料中周围电子密度的差异得到定性解释。

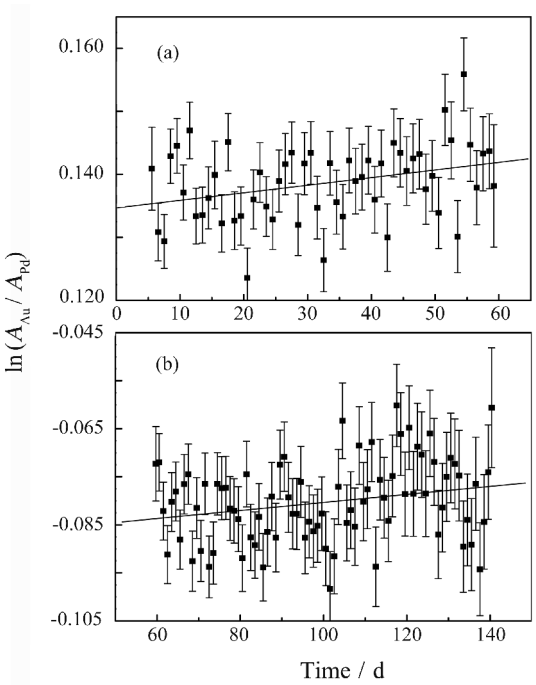

图 2 (a)和(b)分别为^{7}Be源样品位置交换前后测量的 $\ln(A_{Au}/A_{Pd})$随时间的变化图

■为实验数据，– 为拟合线。

为方便讨论，在表 1 中列出了与^{7}Be衰变率相关的几种材料的电子亲合势 U_{ea}、有效电子数 n_{eff}、电子屏蔽势 U_e、原子半径(r)、晶系、晶格参数等。

^{7}Be在 Pd 中的衰变率大于在 Au 中的衰变率。我们可以从电子亲合势角度定性地解释这一实验结果。材料的电子亲合势是 1 mol 气体原子得到一个电子而放出的能量。原子的电子亲合势越大，越易得到电子，反之，越易失去电子。这一物理量体现了原子吸引其周围电子的能力。当^{7}Be核注入到电子亲合势大的宿主材料的晶格中，宿主材料中的原子就易得到^{7}Be的核外电子，从而使^{7}Be核外电子密度减小，^{7}Be发生电子俘获的几率也相应减小。当

^{7}Be核注入到电子亲合势小的材料中时，情况相反。本实验的样品 Au 和 Pd 的电子亲合势分别是 2.309 和 0.562 eV(见表 1)。注入至 Au 样品中的^{7}Be原子比注入至 Pd 中的更易失去电子，核外电子密度较小，从而衰变率就小。

表 1　几种不同注入材料的与^{7}Be衰变率相关的性质[16—19]

材料	U_{ea}/eV	n_{eff}	U_e/eV	r/pm	晶系	晶胞参数					
						a/pm	b/pm	c/pm	α/(°)	β/(°)	γ/(°)
Be	−0.19	0.2	180	105	hcp	228.58	228.58	358.43	90	90	120
Au	2.309	0.9	280	135	ccp	407.82	407.82	407.82	90	90	90
Pd	0.562	6.3	800	140	ccp	389.07	389.07	389.07	90	90	90
Pt	2.128	4.6	440	135	ccp	392.42	392.42	392.42	90	90	90

我们曾测量了注入至天然 Au 和天然 Be(^{9}Be)中^{7}Be衰变率可能发生的变化[11]。在我们的实验精度下，没有测量到这一变化。尽管天然 Be 的电子亲合势比 Au 的小(见表 1)，但是天然 Be 和 Au 的晶格结构不同，Be 属于 hcp 晶系，而 Au 属于 ccp 晶系，Be 的晶格长度比 Au 的小，即注入后的^{7}Be距^{9}Be原子之间的距离小于距 Au 原子的距离，这样由晶格结构的影响消弱了电子亲合势对衰变率的影响。这与 Ray 等[7,8,13]用紧束缚线性化的 Muffin-tin 轨道方法(TBLMTO)结合 Hartree 的计算结果结论相一致。表 1 列出了 Au，Pd 和天然 Be 等的晶格参数。从表中看出，Au 和 Pd 的晶格参数非常接近，因此对于这一对宿主材料，电子亲合势是影响衰变率的主要因素。

另外，Raiola 和 Gang 等[17]在研究氘化金属靶中低能 d(d，p)t 反应的电子屏蔽效应时发现，氘化 Pd 靶中的电子屏蔽势(U_e)比氘化 Au 靶中有显著的增强，他们把德拜模型用于金属中的准自由电子加以解释，并且由此得到的 Pd 中注入的氘核周围有效电子数比 Au 中的大(见表 1)。这一因素也会导致在 Pd 中^{7}Be的衰变率有比在 Au 中增大的趋势，因为注入到 Pd 中的^{7}Be更容易从周围得到准自由电子发生 EC 衰变。

^{7}Be在 Pd 和 Au 中衰变率的差别与这两种材料的电子亲合势及从低能 d(d，p)t 实验中提取出的两者在注入核周围的有效电子密度的差别对衰变率的预期影响趋势相一致。看上去，电子亲合势与有效电子密度两者似乎是紧密相关的。为了检验这两种影响因素的关系，进行新的实验将是非常有意义的。从表 1 还可以看到，另一种金属材料白金(Pt)与 Pd 相似，也具有较大的有效电子数密度，但其电子亲合势却和 Au 相近，并且它们的晶格结构也很相似，因此，测量^{7}Be在 Pt 和 Au 中的衰变率变化将对判别有效电子密度是否是影响^{7}Be衰变率变化的一个特征因素有重要意义。同时，该结果也引发了一个重要的疑问：引起衰变率变化的环境因素——如宿主材料的物理、化学属性，温度、压力等，是否也会改变低能 d(d，p)t 反应率呢？对这一问题的深入研究也将是非常有意义的。

总之，我们测量到^{7}Be在 Pd 中的衰变率有比在 Au 中增大的趋势：$\Delta\lambda/\lambda\approx(0.8\pm0.2)\%$，这是^{7}Be在不同环境中衰变率变化中效应最大的几个实验测量结果之一。结果显示，两种材料的电子亲合势及从低能 d(d，p)t 实验中提取的有效电子密度的差别与实验测量的衰变率变化趋势相一致。

致谢　作者非常感谢中国原子能科学研究院的许国基教授为本实验提供 Pd 和 Au 靶；感谢中国原子能科学研究院 HI-13 串列加速器操作人员及核天体组的连钢、王宝祥等研究人员在次级束流线上为本实验提供^{7}Be放射性束。

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 Lett, 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 (Suppl), 2002, **2**: 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*. Euro Phys J, 2006, **A27**: 193.
[15] Wang B, Yan S, Limata B, *et al*. Euro Phys J, 2006, **A28**: 375.
[16] Lide D R. CRC Handbook of Chemistry and Physics, 2002, **83**: 10.
[17] Raiola F, Gang L, Bonomo C, *et al*. Euro Phys J, 2004, **A19**: 283.
[18] Maeland A, Flanagan T B. Can J Phys, 1964, **42**: 2 364.
[19] Rao C N, Rao K K. Can J Phys, 1964, **42**: 1 336.

Measurement of Decay Rate Variation of ^{7}Be in Pd and Au*

LI Cheng-bo[1)], LIU Zhi-yi, ZHOU Shu-hua, ZHOU Jing, MENG Qiu-ying
(*China Institute of Atomic Energy*, *Beijing* 102413, *China*)

Abstract: We measured the variation of the decay rate of ^{7}Be implanted in Pd and Au host materials by detecting the 478 keV γ ray emitted from deexcitation of the first excited state of ^{7}Li which is produced by EC decay of ^{7}Be with two HPGe detectors simultaneously, and found that the decay rate of ^{7}Be in Pd is larger than that in Au by $(0.8\pm0.2)\%$. The relation of the decay rate variation with electronic affinities and effective electron densities near the implanted ions in the two different host materials has been discussed.

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

* **Received date**: 8 Nov. 2006; **Revised date**: 23 Apr. 2007
* **Foundation item**: National Natural Science Foundation of China(10305020)
1) E-mail: lcb@ciae.ac.cn