

^{155}Eu 衰变 γ 射线发射几率的精确测量

李广生 彭朝华 李大明 陈细林 杨毅 鲍杰 杨志红 张生栋 崔安智

(中国原子能科学研究院 北京 102413)

摘要 经堆中子辐照过的 ^{154}Sm 样品, 用阳离子交换法分离纯化, 得到 ^{155}Eu 核素。用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法测量放射性活度和用小平面 Ge 探测器测量 ^{155}Eu 衰变发射的 γ 光子数, 精确测定了 γ 射线的发射几率。对于强 γ 射线和弱 γ 射线的不确定度分别为 1.7% 和 4.5%。与文献报道值相比较, 本测量结果明显改善。

关键词 ^{155}Eu , γ 射线发射几率, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合, 小平面 Ge 探测器

中图分类号 O571.23, O571.3

为了使用小平面 Ge 探测器测量低能 γ 射线强度, 对于它的探测效率必须准确测定。为此目的, 作为刻度用的标准源应当有较长的半衰期和精确已知的 γ 射线发射几率, 而且这些具有已知活度的标准源必须是容易得到的。 ^{57}Co ($T_{1/2}=271.79\text{ d}$)、 ^{133}Ba ($T_{1/2}=3862\text{ d}$) 和 ^{241}Am ($T_{1/2}=1.5785\times 10^5\text{ d}$) 是最常用的低能 γ 标准源。但是, 它们各自都不能均匀地覆盖 110keV 以下全部能区。

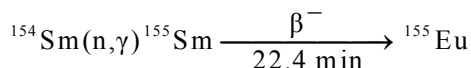
半衰期为 4.76 a 的 ^{155}Eu 核素除了发射 86.5、105.3 keV 的主 γ 射线以外, 还有 18.8、26.5、45.3、58.0、60.0 keV γ 射线。可是文献[1]—[3]评价推荐的 ^{155}Eu γ 射线发射几率的不确定度为 2.0%—24%, 而且这些文献值之间的差别也为 3.8%—10.7%。

本工作的目的是精确测定这些 γ 射线的发射几率, 以有助于 ^{155}Eu 作为低能 γ 探测器的刻度标准源。

1 实验

1.1 源的制备

^{155}Eu 通过下述热中子俘获反应产生:



靶材料是 ^{154}Sm 同位素丰度为 96.63% 的 Sm_2O_3 粉末。取 37.8 mg 的靶材料封入石英管, 放入中国原子能科学研究院的重水反应堆中辐照 10 d, 中子注量率约 $9.5\times 10^{13}\text{ cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

将辐照过的 Sm_2O_3 用 HNO_3 溶解, 经高效阳离子交换法分离纯化, 收集纯的 Eu。用草酸盐沉淀法除去离子交换溶液中的 $\alpha\text{-HIBA}$ (α -羟基异丁酸)。

经 HNO_3 溶解 $\text{Eu}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3$, 用 $\text{HNO}_3\text{-HClO}_4$ 蒸干破坏 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$, 再用含微量酸的重蒸馏水溶解, 最终得到酸度很低且含盐很少的 ^{155}Eu 放射性溶液。

将上述制源溶液稀释到合适的比放射性, 用万分之一天平称重滴加于固定在有机玻璃框中的薄膜上, 经自然晾干, 制备成低能 γ 测量源。

将制备 γ 测量源的溶液进一步稀释。其稀释倍数以稀释时的称重和稀释后测量两种溶液的比放射性这两种方法精确测定。将此稀释溶液用电喷涂法制备成 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合测量用的薄膜源。

1.2 放射性活度测量

^{155}Eu 的 $T_{1/2}=4.76\text{ a}$, 在中子辐照靶材料生产 ^{155}Eu 的同时, 还将通过 $^{155}\text{Eu}(n,\gamma)^{156}\text{Eu}$ 反应产生 ^{156}Eu 放射性。 ^{156}Eu 的 $T_{1/2}=15.19\text{ d}$, 远短于 ^{155}Eu 的半衰期。在 ^{155}Eu 、 ^{156}Eu 混合源冷却 8 个月后, 经 HPGe γ 谱仪测定, ^{156}Eu 已完全衰变掉, 成为高纯的 ^{155}Eu 放射源。

采用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合方法测量放射性活度。用于探测 β 射线的 $4\pi\beta$ 正比计数器的坪长约为 450 V, 坪斜 $<0.4\%/100\text{ V}$ 。 γ 道的计数窗设在 ^{155}Eu 衰变 γ 射线中强度最大的 86.5 keV 全能峰上。符合系统的分辨时间为 $0.5\mu\text{s}$ 。采用 β 阈电平法改变 β 效率, 变化范围约为 65%—95%, 共 13 个效率点, 每个效率点测量 3 次, 最高计数率 $<10^4/\text{s}$ 。共测量了 5 个样品, 每测一个样品接着就测量本底, 以保证实验数据的可靠性。用最小二乘法拟合活度与效率之间的非线性变化关系, 并将效率外推到 100%, 即得到源活度。测量结果列在表 1 中。

表 1 ^{155}Eu 活度测量的结果Table 1 Results of activity measurements for ^{155}Eu

测量轮次 Run No.	5 个样品的比放射性 Specific activity for 5 samples / $\text{Bq} \cdot \text{mg}^{-1}$				
	E20	E21	E22	E23	E24
1	409.25	409.45	408.60	406.80	408.81
2	409.48	409.26	409.89	407.35	408.38
3	409.29	409.87	409.92	406.95	408.52

从表 1 可以看出,样品 E23 的活度值明显偏低。这可能是由于样品称重误差、源或薄膜不均匀等情况造成的。取其它 4 个样品的测量结果进行统计平均,不确定度为 0.13%。来自本底、分辨时间、死时间、样品称重、效率外推和杂质干扰等项的不确定度为 0.42%。合成的总不确定度是 0.45%。最终测定 ^{155}Eu 活度为 $(409.23 \pm 1.84) \text{ Bq/mg}$ 。

1.3 γ 光子数的测量

利用 ORTEC 小平面 Ge 探测器和 92X 系统组成的低能 γ 谱仪测量 ^{155}Eu 衰变发射的 γ 光子数。探

测器的能量分辨率对 ^{55}Fe 的 5.9 keV 为 360 eV,对 ^{57}Co 的 122 keV 为 585 eV。用 ^{57}Co 、 ^{133}Ba 和 ^{241}Am 标准源进行能量刻度,并精确测定了探测器的绝对探测效率。共测量了 4 个样品。 γ 射线强度是通过计算 γ 谱的光电峰面积,并经效率校正后得到的。由于 ^{155}Eu 源的高纯度、 γ 谱仪的高分辨率和低的本底计数,测得的 γ 谱基本上都是孤立单峰,用高斯拟合法和峰内计数相加法计算的峰面积是一样的。表 2 给出 ^{155}Eu γ 射线强度的测量结果,所示不确定度是由 4 个样品的统计平均误差和效率误差所合成。

表 2 ^{155}Eu 衰变发射的 γ 光子数和相对强度Table 2 The γ -photons emitted from ^{155}Eu decay and their relative intensities

E_γ / keV	γ 光子数 γ -photons / $\text{mg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	相对强度 Relative intensities	
		本工作 Present work	Ref.1
18.764	0.199 $\pm$ 0.008	0.157 $\pm$ 0.006	0.16 $\pm$ 0.04
26.532	1.446 $\pm$ 0.029	1.141 $\pm$ 0.023	1.03 $\pm$ 0.04
45.297	5.496 $\pm$ 0.082	4.33 $\pm$ 0.06	4.32 $\pm$ 0.08
57.981	0.279 $\pm$ 0.013	0.220 $\pm$ 0.010	0.217 $\pm$ 0.011
60.009	4.992 $\pm$ 0.141	3.93 $\pm$ 0.11	3.68 $\pm$ 0.16
86.545	126.7 $\pm$ 2.0	100.0 $\pm$ 1.6	100.0 $\pm$ 2.0
105.305	88.5 $\pm$ 1.4	69.8 $\pm$ 1.1	68.9 $\pm$ 1.5

2 结果和讨论

由于测量活度和测量 γ 光子数不是同时进行的,故将上述测得的源活度和 γ 光子数进行衰变校正,归一到同一参考时间。根据它们的比值即得到

γ 射线发射几率。

表 3 给出了我们的测量结果,为了便于比较,表中还同时列出了文献值(其中,文献[2]:6.5%系统不确定度)。

表 3 ^{155}Eu 衰变 γ 射线发射几率Table 3 Emission probabilities for γ -rays from ^{155}Eu decay

E_γ / keV	γ 射线发射几率 Emission probabilities for γ -rays / %			
	本工作 Present work	Ref.1	Ref.2	Ref.3
18.764	0.048 $\pm$ 0.002	0.049 $\pm$ 0.012	0.051 $\pm$ 0.007	0.051 $\pm$ 0.004
26.532	0.346 $\pm$ 0.011	0.32 $\pm$ 0.01	0.317 $\pm$ 0.011	0.33 $\pm$ 0.02
45.297	1.32 $\pm$ 0.02	1.33 $\pm$ 0.03	1.28 $\pm$ 0.04	1.33 $\pm$ 0.13
57.981	0.067 $\pm$ 0.003	0.067 $\pm$ 0.003	0.067 $\pm$ 0.003	0.070 $\pm$ 0.015
60.009	1.19 $\pm$ 0.04	1.13 $\pm$ 0.05	1.14 $\pm$ 0.09	1.15 $\pm$ 0.08
86.545	30.35 $\pm$ 0.52	30.70 $\pm$ 0.61	34	31.9 $\pm$ 1.9
105.305	21.20 $\pm$ 0.36	21.15 $\pm$ 0.47	20.6 $\pm$ 0.4	21.3 $\pm$ 1.3

^{155}Eu 的活度测量是测定 γ 射线发射几率的关键。为了消除杂质 ^{152}Eu 和 ^{154}Eu 放射性对 ^{155}Eu 活度测量的影响,在靶材料 Sm_2O_3 进堆辐照前,先对 Sm 进行分离纯化,除去杂质 Eu ,得到高纯度的 ^{154}Sm 样品,从而保证了活度测量的准确度。

对于低能 γ 测量源和刻度标准源,均采用同样的衬底材料和同样的厚度,以消除由吸收修正而引入的不确定度,因此提高了 γ 光子数的测量精度。

从表3可以看出,我们的测量结果与文献[1]—[3]值在误差范围内一致。需要指出的是,这3个文献值之间也存在约4%—11%的分歧。本测量结果支持近期发表的文献[1]的评价结果,而且对于强 γ 射线和弱 γ 射线,误差分别减小为1.7%和4.5%。文献[3]的数据存在较大误差,对于最强的两条 γ 射线为6%,对于弱 γ 射线误差就更大了,甚至高达20%。而文献[2]除了数据本身的误差以外,还有6.5%的系统不确定度。虽然文献值[1]的精确度有了提高,但是对于18.8 keV 的弱 γ 射线仍有24%的较大误差。相比之下,本测量结果的不确定度有了明显改善。对于26.5 keV 和60.0 keV 两条 γ 射线,我们的测量结果似乎略为偏大。这是因为,在测量 γ 光子数的

过程中,为保证强 γ 射线的精确测量和监测谱仪的稳定性,我们用 ^{241}Am 标准源进行了监督。由于 ^{241}Am 的两条主 γ 射线的能量是26.3 keV 和59.5 keV,分别与 ^{155}Eu 样品源中的26.5 keV 和60.0 keV γ 射线的光电峰有重叠,计算它们的峰面积时有可能造成多计数,从而导致这两条 γ 射线发射几率的略增大。

致谢 感谢西北核技术研究所常永福研究员对本工作的支持。在实验准备阶段得到刘永辉和温书贤同志的热情帮助,在此表示感谢。

参考文献

- 1 Frestone R B., Table of Isotopes, 8th ed. New York: John Wiley & Sons, Inc. 1996. 1667—1669
- 2 Browne E, Frestone R B. Table of Radioactive Isotopes, New York: John Wiley & Sons, Inc. 1986. 155□2
- 3 刘运祚. 常用放射性核素衰变纲图. 北京: 原子能出版社, 1982. 214—216
LIU Yunzuo. Decay Scheme of General Radioactive Nuclides. Beijing: Atomic Energy Press, 1982. 214—216

Precise measurements of emission probabilities for γ -rays from ^{155}Eu decay

LI Guangsheng PENG Zhaohua LI Daming CHEN Xilin YANG Yi BAO Jie
YANG Zhihong ZHANG Shengdong CUI Anzhi

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Abstract Nuclide ^{155}Eu was separated and purified from the ^{154}Sm sample irradiated by the reactor neutrons by using the cation exchange technique. Activities were measured by the $4\pi\beta$ - γ coincidence method and the γ -ray spectra of ^{155}Eu decay were measured with a small-area planar Ge detector. Emission probabilities of the γ -rays were precisely determined, with uncertainties of 1.7% and 4.5% for the strong and weaker γ -rays, respectively. The present results have been considerably improved in comparison with previously reported values.

Key words ^{155}Eu , Emission probability, $4\pi\beta$ - γ coincidence, Small-area planar Ge detector

CLC O571.23, O571.3