

帶电重粒子激發的 γ 射綫在測定 同位素丰度上的应用*

叶 銘 汉 李 整 武

(中国科学院物理研究所)

提 要

本文指出利用帶电重粒子冲击原子核时所产生的 γ 射綫来測定同位素丰度的可能性。在有合适的基本设备时，特别是在用一含有标准丰度的样品来作比較測定时，这方法是簡便的。这是一种微量或超微量的分析方法。測定鋰，硼，碳，氮等輕元素同位素丰度时适用的核反应及 γ 射綫在第四节中逐項討論。

一. 引 言

同位素丰度(abundance)的測定,通用的方法是質譜分析。除开这一主要方法之外,光譜分析也有一定程度的应用。Kluyver等还曾經用紅外綫光譜吸收方法測定 $\frac{C^{13}}{C^{12}}$ 的比例^[1,2]和 $\frac{N^{15}}{N^{14}}$ 的比例^[2]。Southern等^[3]用微波吸收方法来測量 C^{13} , N^{15} 的含量。气体或液体的密度或气体的导热率也曾用来測量 D^2 , O^{18} 的含量(例如[4])。

另一方面,近年来利用中子照射引起人为放射性的活化法在微量元素含量的分析方面获得了广闊的成就。Herr^[5], Kaplan和Wilzbach^[6]应用这一方法来測量天然鋰內的 Li^6 的含量。与中子照射法相当,帶电重粒子照射活化法也曾用来作元素含量的分析,来确定鉄中鎂的含量^[7]、銀中銅的含量^[8]、鉄中碳的含量^[9]、有机物中碳的含量^[10]等。

除以上列举的一些方法以外,帶电重粒子激發的瞬时的 γ 射綫也可能利用来測定同位素的含量^[11]。这个方法的基础原理,即利用核反应所产生的 γ 射綫作为被冲击的原子核的标志这一点,也就是許多实验中在确定被冲击的靶子材料的种种情况时所常用的。但对于它在应用上的更多可能性还缺少广泛而明确的探討。本文就它在同位素丰度的測量方面的应用作較詳細的討論。由此可以表明,在准确度上,这方法不及質譜分析,但在合适的条件下,尤其在一些稳定的輕同位素分离过程中产物的同位素丰度的測定上,这将是便利而可以考虑采用的一个方法。广泛的討論見[11]。

二. 可用的測定方法

当用能量在几个 MeV 以下的帶电重粒子冲击輕原子核时,核因激發能高,产生的

* 1957年6月4日收到。

反应較为复杂,往往包括 (d, n) , (d, α) , (d, p) 等反应,以及由这些反应的剩余核的激發态放出来的 γ 射綫. 对于質子或 α 粒子而言,常見的有 (p, γ) , $(p, p'\gamma)$, (p, α) , $(p, \alpha\gamma)$, (α, γ) , $(\alpha, \alpha'\gamma)$ 等反应. 一般說来,根据現有的实验数据(見总结性文章[12], [13]),对于本方法最合适的帶电重粒子是 3 Mev 以下的質子. 在以下的討論中,偏重于受質子冲击而产生的 γ 射綫的反应.

对于較重的原子核,俘获輻射和散射所放出的 γ 射綫往往譜綫很多,不易分辨. 对于有些重原子核,可以考虑采用庫侖激發方法来产生 γ 射綫.

把待测的样品制成靶子,受加速后的粒子冲击. 最合适的加速器是能量能达 2 或 3 Mev 的靜电加速器,因为能量易于調节而且分辨率高,离子束集中,因此射綫本底較少. 其次是高压倍加器,但因一般能量較低,应用上限制較多. 其次是迴旋加速器和直綫加速器.

对于探测 γ 射綫的仪器,我們首要考虑的是它的計数效率. 因此,閃爍計数器是最合适的一种,它是目前效率最高而分辨率也比較高的一种 γ 射綫探测器. 閃爍計数器应该配有直綫放大器和通常的脉冲分析設備. 有时候,反应产物是帶有 β 放射性的,这时,盖繆計数器也是适用的.

样品受質子冲击时,它所包含的不同同位素經由各自特有的核反应放出 γ 射綫,比較不同的同位素所产生的 γ 射綫的强度,可以推算出样品中各同位素含量的比例.

γ 射綫强度的比較方法,可以大致分为下列三种:

(一)在所测得的、由样品中各同位素所产生的 γ 射綫的混合譜(脉冲高度分布)中适当地选择(1)可以标志同位素 1 的一种 γ 射綫,假定它的产額是 Y_1 , (2)可以标志同位素 2 的一种 γ 射綫,假定它的产額是 Y_2 , 得到 $\frac{Y_1}{Y_2}$. 在同样实验条件下,測量同位素丰度已知的、化学組成与样品相同的标准样品的相对应的 γ 射綫的产額 $\frac{Y'_1}{Y'_2}$. 如果标准样品中二种同位素的比例为 $\frac{a'_1}{a'_2}$, 則待测定的比例为

$$\frac{a_1}{a_2} = \frac{Y_1}{Y_2} \cdot \frac{Y'_2}{Y'_1} \cdot \frac{a'_1}{a'_2}.$$

許多有关的因子,如产生 γ 射綫各反应的个别截面,分支比率,周圍吸收物体及散射物体的存在,計数設備对于不同能量 γ 射綫的探测效率,靶厚等,在这里都自然消去,不發生影响.

有时候,同位素中的一种反应产物帶有 β 放射性,那么比較一种同位素的 γ 射綫和另一种同位素的 β 放射性的强度,也可以測出同位素丰度. 尤其是在后者的 γ 射綫的强度不易測定时,这是比較方便的方法. 如果是 β^+ 放射,还可以量它的湮沒輻射的强度.

(二)不用标准样品,其他同(一). 这时,产生 γ 射綫各反应的个别截面,分支比率,探测設備对于不同能量 γ 射綫的效率等必須知道. 不同大小的閃爍体对于 γ 射綫的吸收有所不同,光电吸收峰对于全部被吸收的光子数的比例,也随晶体大小而改变^[14]. 很明显,不用标准样品將在測定中引入这些困难.

(三)有标准样品,而样品所含的两种同位素中第二种同位素的 γ 射綫难测,只能比較在不同样品中第一种同位素所产生的 γ 射綫,即只能定 $\frac{Y_1}{Y'_1}$. 这个方法要求正确知道样

品和标准样品的化学組成。如果所用的是薄靶,二者的厚度也必須正确知道。

很明显,上述三种方法中,以第一种最为簡便准确。第二种方法較为困难。第三种方法則可以用来測定样品中所含的第一种同位素的原子数目(例如[15]),但不能直接用来确定样品所含的两种同位素的丰度。

在測定 γ 射綫的强度时,怎样在由样品中各同位素所产生的 γ 射綫的混合譜中适当地选择可以标志某种同位素的 γ 射綫,是一个問題。需要在实验中分别看具体情况决定。我們可以(一)不分能量,測量某一种同位素所放出的所有 γ 射綫的总强度,(二)測量其中某一个或某几个能量的 γ 射綫的强度。

(一)法最簡單。当共振峰較少,共振截面的大小合适时,可以变更冲击粒子的能量,作出激發曲綫(用厚靶或薄靶),用来比較 γ 射綫的强度。

(二)法的最簡單的情形是加吸收片,以分开不同能量的 γ 射綫。如果能量的分辨不能用簡單的方法做到,那末应该測量 γ 射綫在閃爍体内所产生的脉冲分布。选择其中合适的部分,例如用光电吸收峰或电子对吸收峰来比較强度。鄰近的 γ 射綫所組成的本底,需要去掉。样品和标准样品的脉冲分布的圖形是相似的,或者是有規律地相关联的,在去掉本底时,可以互相参考。

在測量强度和能量俱低的 γ 射綫时,为了减少高能量 γ 射綫的本底(主要是康普登电子吸收),可以选合适大小的晶体,以减小它对于高能量 γ 射綫的吸收效率。采用薄靶,挑选合适的冲击能量,讓强度强的 γ 射綫的截面不在它的最大值上,这样也可以减少本底。

三. 样品的制配

本方法所需要的样品的量很少,可以在毫克以下。在用电磁法等分离同位素时,产物所附着的表面即可用作靶子,在此情形下,样品的量是極为微小的,而且不必另外經過制配手續。

固态或气态的样品都可以用来制成靶子。用厚靶或薄靶要看具体情况而定。一般厚靶制配較易,而且可以免掉靶厚的測定問題。

关于标准,很显然,通常可用含有天然同位素丰度的样品。标准样品的化学組成最好和被試驗的样品相同。这样可以免去阻止本領的影响。同时,其他元素所产生的 γ 射綫,也易于在分析时除去。不論样品或标准样品,都应该避免某些杂质,如氟,硼,鋰,鈉等的污染。这些原子核的(p, γ)俘获反应截面較大,很易把应有的效应盖住。在比較 γ 射綫的强度时,在可能时,应多比較几对不同的 γ 射綫,这样就易于發現互相不符合的情况,从而發現污染的影响。从所測得的 γ 射綫的脉冲分布上,也易于發現污染的杂质所产生的 γ 射綫。

四. 輕同位素

根据已有的实验数据,对于某些輕元素,可以选出合适的 γ 射綫来比較它們的强度,从而測定它們的同位素丰度。

在最輕几种元素中,除了鋁,氟只有一种稳定同位素,关于氧的实验数据不足,未加考虑外,对适用于分析鋰、硼、碳、氮所含同位素丰度的 γ 射綫作了选定,并根据下列条件估

計了本方法所能达到的限度。(1) 所用离子流的强度不超过 10 微安。(2) 用無污染的純元素靶, 例如用的是純鋰而不是鋰的化合物。这是为了估計产額的方便而假定的。(3) 在估計某一能量的 γ 射綫所形成的本底时, 康普登电子分布依照 Klein-Nishina 公式計算。这只是近似的, 因为 γ 射綫在閃爍体内的吸收过程不是單一的一次作用, 而且与晶体的大小有关。(4) 用碘化鈉(鉍) 閃爍晶体, 光电吸收峰所占的比例按照光电吸收系数与总吸收系数的比例計算^[14]。

对于鋰、硼、碳、氮的同位素丰度的測定, 本方法所能达到的限度的估計如下:

(1) 鋰: 天然鋰中, Li^6 占 7.52%, Li^7 占 92.48%。 $\text{Li}^6(p, \gamma)$ 反应截面很小(反应截面的数据尚無一致的結果^[16, 17], 但看来以 Warren, Alexander 与 Chadwick^[16] 的較为可靠), 因此想从 (p, γ) 反应来測定 Li^6 , Li^7 的相对含量是困难的。 $\text{Li}^7(p, \gamma)$ 反应截面很大, 应该用能量低于它的共振能量 441 KeV 的質子或者用薄靶而質子能量在 441 和 1000 KeV 之間, 讓 $\text{Li}^7(p, \gamma)$ 反应的截面远离它的最大值。如質子能量 E_p 为 0.7 MeV, 用薄靶, 測量 $\text{Li}^6(p, \gamma)$ 的 0.43 MeV 或約 6 MeV 的 γ 射綫与 $\text{Li}^7(p, \gamma)$ 的 17.6 和 14.8 MeV 的 γ 射綫的强度之比, Li^6 的含量如在 50% 以上, 可以从 $\text{Li}^6(p, \gamma)$ 反应測出, 測定高度純粹(>99%) 的 Li^6 时, 冲击能量应用 $\text{Li}^7(p, \gamma)$ 的共振值来測定 Li^7 的含量。

(2) 硼: 天然硼中, B^{10} 占 18.45—18.98%, B^{11} 占 81.02—81.55%。 B^{10} 的 $(p, \alpha\gamma)$, $E_\gamma = 0.43$ MeV 反应产額很大, 所以微量 B^{10} 的測定很容易, 0.01% 的 B^{10} 可以測出。同时, B^{11} 的測定, 利用 $\text{B}^{11}(p, p'\gamma)$, $E_\gamma = 2.1$ MeV, 最小也能到 0.01%。

(3) 碳: 天然碳中, C^{12} 占 98.892%, C^{13} 占 1.108%。 C^{13} 的 (p, γ) 反应产額大, 限度估計为 0.01%。 C^{12} 的 (p, γ) 产物 N^{13} 有 β^+ 放射性, 所以在 C^{12} 含量少时, 可以測量 β^+ 的强度, 估計可以測量到 0.1%。

(4) 氮: 天然氮中, N^{14} 占 99.635%, N^{15} 占 0.365%。 N^{14} 的 (p, γ) 产物 O^{15} 有 β^+ 放射性, 可以測出这个反应的高能量 γ 射綫或者測量 β^+ 放射性, 估計測量限度为 0.01%。 $\text{N}^{15}(p, \alpha\gamma)$ 反应的产額大, 估計可以測量到 0.01%。

下表列举可用的 γ 射綫。每一种同位素丰度的測定只举出一种或二种最适当的选择。所用的核反应見附录。所列出的是測定时所利用的反应产額高的反应。实际上測定时, 还应注意到其他产額低的反应的影响。

百分含量 (%)		采 用 的 反 应	
Li^6	Li^7	Li^6	Li^7
50 以下	50 以上	不能測量	
50 以上	50 以下	(p, γ) , 0.43 或 6 MeV γ	(p, γ) , 17.6 和 14.8 MeV γ
B^{10}	B^{11}	B^{10}	B^{11}
0.01 \rightarrow 90	99.99 \rightarrow 10	$(p, \alpha\gamma)$, 0.43 MeV γ	(p, γ) , >4 MeV γ 或 $(p, p'\gamma)$, 2.1 MeV γ
90 \rightarrow 99.99	10 \rightarrow 0.01	$(p, \alpha\gamma)$, 0.43 MeV γ	$(p, p'\gamma)$, 2.1 MeV γ

百分含量 (%)		采 用 的 反 应	
C ¹³	C ¹²	C ¹³	C ¹²
0.01	99.99	(p, γ), >4 MeV γ	(p, γ) N ¹³ , β ⁺ 或 (p, γ), 2.4 MeV γ
0.1 → 99.9	99.9 → 0.1	(p, γ), >4 MeV γ	(p, γ) N ¹³ , β ⁺
99.99	0.01		不能测量
N ¹⁵	N ¹⁴	N ¹⁵	N ¹⁴
0.01 → 99.99	99.99 → 0.01	(p, α'γ), 4.5 MeV γ	(p, γ), >5 MeV γ 或 (p, γ) O ¹⁵ , β ⁺

附 录

测定同位素丰度所利用的核反应

反 应	冲击粒子的 共振能量 (MeV)	共振反应截面 (10 ⁻²⁴ cm ²)	共振峰半宽 (KeV)	γ 射线能量 (MeV)	产 额	文献
Li ⁶ (p, γ) Be ⁷		$E_p = 0.75$ MeV, 非共振截面 \approx $4\pi \times 2 \times 10^{-8}$ (假定各向同性)		0.43 5.9 6.3 ($E_p = 0.8$ MeV时)	估计数量级为 $10^{-12} \frac{\gamma}{p}$ (纯 Li ⁶ 厚 靶, $E_p \approx 0.7$ MeV)	[16]
Li ⁷ (p, γ) Be ⁸	0.441	6.0×10^{-3}	12	17.6 14.8	$1.9 \times 10^{-8} \frac{\gamma}{p}$ (天然锂厚靶)	[18]
B ¹⁰ (p, αγ) Be ⁷	1.52	0.21	250	0.43	估计约为 3×10^{-5} $\frac{\gamma}{p}$ (纯 B ¹⁰ 厚靶)	[15]
B ¹¹ (p, γ) C ¹²	0.675	5.0×10^{-5}	330	16.6 12.0 4.44	$2.1 \times 10^{-10} \frac{\gamma}{p}$ (天然 B ₂ O ₃ 靶, 厚 0.088 MeV, 共振 能量时)	[19]
B ¹¹ (p, γ) C ¹²	1.388	5.3×10^{-5}	1270	16.9 12.7 4.45	$2.4 \times 10^{-10} \frac{\gamma}{p}$ (天然 B ₂ O ₃ 靶, 厚 0.055 MeV, 共振 能量时)	[19]
B ¹¹ (p, p'γ) B ¹¹	2.664	3.1×10^{-2}	48	2.13	估计约为 1×10^{-6} $\frac{\gamma}{p}$ (纯 B ¹¹ 厚靶)	[19]
C ¹² (p, γ) N ¹³	0.457	1.3×10^{-4}	39.5	2.4	$7.5 \times 10^{-10} \frac{N^{13}}{p}$ (Acheson 石墨厚 靶, $E_p = 1$ MeV)	[20] [21]
C ¹² (p, γ) N ¹³	1.698	3.5×10^{-5}	70	3.5 2.4 1.1	$1.0 \times 10^{-9} \frac{N^{13}}{p}$ (Acheson 石墨厚 靶, $E_p = 2$ MeV)	[20] [21]

(續前表)

反 应	冲击粒子的 共振能量 (MeV)	共振反应截面 (10^{-24} cm 2)	共振峰半寬 (KeV)	γ 射綫能量 (MeV)	产 額	文献
$C^{13}(p, \gamma) N^{14}$	0.55	1.44×10^{-3}	32.5	8.03	$0.9 \times 10^{-8} \frac{\gamma}{p}$ (純 C^{13} 厚靶)	[22]
				4.0		[23]
				2.32		
				1.63		
$C^{13}(p, \gamma) N^{14}$	1.25	0.06×10^{-3}	500	8.7	$1.13 \times 10^{-8} \frac{\gamma}{p}$ (純 C^{13} 厚靶)	[22]
				2.3		[23]
$C^{13}(p, \gamma) N^{14}$	1.76	12.0×10^{-3}	2.1	9.17	$1.15 \times 10^{-8} \frac{\gamma}{p}$ (純 C^{13} 厚靶)	[22]
				6.5		[23]
				2.73		
$N^{14}(p, \gamma) O^{15}$	2.600	5×10^{-5}	1270	9.8	$3 \times 10^{-8} \frac{O^{15}}{p}$ (天然氮厚靶)	[24]
$N^{15}(p, \alpha\gamma) C^{12}$	0.898	0.8	2.2	4.43	$5 \times 10^{-8} \frac{\gamma}{p}$ (KNO_3 厚靶, 61% N^{15})	[25]
$N^{15}(p, \alpha\gamma) C^{12}$	1.210	0.3	22.5	4.43	$1.8 \times 10^{-7} \frac{\gamma}{p}$ (KNO_3 厚靶, 61% N^{15})	[25]

参 考 文 献

- [1] Kluyver, J. C. and Milatz, J. M. W., *Physica*, **19** (1953), 401.
[2] Kluyver, J. C., *Recueil des travaux chimiques des Pays-Bas*, **74** (1955), 322.
[3] Southern, A. L. et. al., *Analyt. Chem.* **23** (1951), 1000.
[4] Roberts, E. R., *Analyst*, **73** (1948), 657.
[5] Herr, W., *Z. f. Naturforsch.* **8a** (1953), 305.
[6] Kaplan, L. and Wilzbach, K. E., *Analyt. Chem.* **26** (1954), 1797.
[7] Seaborg, G. T. and Livingood, J. J., *Jour. Am. Chem. Soc.* **60** (1938), 1784.
[8] King, L. D. P. and Henderson, W. J., *Phys. Rev.* **56** (1939), 1169.
[9] Riezler, W., *Z. f. Naturforsch.* **4a** (1949), 545.
[10] Süe, P., *Comptes Rendus* **237** (1953), 1696.
[11] 李整武、叶銘汉, 科学通报, **10** (1957), 297.
[12] Ajzenberg, F. and Lauritsen, T., *Revs. Mod. Phys.* **27** (1955), 77.
[13] Endt, P. M. and Kluyver, J. C., *Revs. Mod. Phys.* **26** (1954), 95.
[14] Bell, P. B., The scintillation method, β and γ ray spectroscopy [Siegbahn, K. 主編, (1955) 133].
[15] Day, R. B. and Huus, T., *Phys. Rev.* **95** (1954), 1003.
[16] Warren, J. B., Alexander, T. K. and Chadwick, G. B., *Phys. Rev.* **101** (1956), 242.
[17] Bashkin, S. and Carlson, R. R., *Phys. Rev.* **97** (1955), 1245.
[18] Fowler, W. A. and Lauritsen, C. C., *Phys. Rev.* **76** (1949), 314.
[19] Huus, T. and Day, R. B., *Phys. Rev.* **91** (1953), 599.
[20] Seagrave, J. D., *Phys. Rev.* **84** (1951), 1219.
[21] Hunt, S. E. and Jones, W. M., *Phys. Rev.* **89** (1953), 1233.
[22] Seagrave, J. D., *Phys. Rev.* **85** (1952), 197.
[23] Woodbury, H. H., Day, R. B. and Tollestrup, A. V., *Phys. Rev.* **92** (1953), 1199.

- [24] Duncan, D. B. and Perry, J. E., *Phys. Rev.* **82** (1951), 809.
[25] Schardt, A., Fowler, W. A. and Lauritsen, C. C., *Phys. Rev.* **86** (1952), 527.

APPLICATION OF γ RAYS EXCITED BY HEAVY CHARGED PARTICLES IN THE DETERMINATION OF ISOTOPIC ABUNDANCES

YEH MING-HAN LI CHENG-WU

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

Possibilities of using the γ rays excited by bombardment of an element with heavy charged particles to determine its isotopic abundances are discussed. With necessary facilities, this method, essentially a microanalytical or ultramicroanalytical method, would be convenient, especially if a sample containing definite isotopic abundances is used as a standard for comparison. Nuclear reactions and γ rays suitable for the determination of isotopic abundances of Li, B, C and N are enumerated.