

Lu 同位素的活度测量研究

李正通 郝樊华 熊宗化 黄瑞良

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 成都, 610003)

详细介绍了 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 、 $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 和 ^{173}Lu 的活度测量方法及数据处理方法,对在测量和数据处理上存在的困难和问题进行了讨论分析。

关键词 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ ^{173}Lu 活度测量 数据处理

核素 $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 、 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 和 ^{173}Lu 由 ^{175}Lu 在高中子场中辐照得到。 $^{175}\text{Lu}(n, 2n)$ 反应生成 $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 和 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$,再经过 $(n, 2n)$ 反应生成 ^{173}Lu 。在本文分析的样品中,这 3 个核素同时存在。测量这 3 个核素的活度,存在着一定的困难: 1) 这些核素的活化量较低,必须在探测器表面位置测量较长的时间,它们的标准源又很难得到,无法直接标定表面位置的探测效率,且探测器表面位置的探测效率因符合相加效应的影响,其效率曲线难以使用; 2) $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 还存在着 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 的同质异能跃迁和相近能峰的干扰, ^{173}Lu 也有 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 的相近能峰干扰,这些必须在数据处理时加以扣除。

1 Lu 的测量

Lu 样品被制成 $\phi 18\text{ mm}$ 的平面源,利用 ORTEC 公司的 GMX25195 γ 谱仪测量。探测器为同轴型高纯锗探测器。该探测器对 ^{60}Co 的 1332.5 keV 的分辨率为 1.84 keV,稳定性很好,相对效率为 25%。其源-探测器距离为 10、15、20 cm 时的探测效率曲线用进口的 ^{152}Eu 、 ^{133}Ba 、 ^{241}Am 、 ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{109}Cd 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 等标准溶液样品制成点源和 $\phi 18\text{ mm}$ 平面擦镜纸源(A1 底衬)标定,经多次比对证明是可信的。Lu 的效率是用 1 个强的 Lu 样品在表面和 10 cm 位置处长时间测量,分析计算出样品在表面位置各能峰的峰面积与在 10 cm 位置各能峰面积之比,得到各能峰表面位置与 10 cm 位置处的效率比值。以后各样品只在表面位置测量,用 10 cm 位置的效率曲线算得各核素的活度并扣除 m 态影响后,再校正表面位置相应的比值得到真实的活度。

分析 Lu 样品所用的参数列于表 1。分析 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 的活度用 67.08 keV γ 射线全能峰面积,分析 $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 用 76.6 和 1241.76 keV 2 个能峰面积,分析 ^{173}Lu 用 78.64 和 272.01 keV 2 个能峰面积。m 态的 67.08 keV 能峰与其它各能峰分得开,而基态的 76.6 keV 峰与 ^{173}Lu 的

78.64 keV 峰靠得很近, 互相干扰, 并且还有 m 态的 76.4 keV 峰存在, 无法从峰面积上分开。1241.76 keV 峰的探测效率较低, 测量误差较大; ^{173}Lu 的 272.01 keV 峰与 $^{174}\text{Lu}^m$ 的 273.16 keV 峰分不开, 必须进行校正。

表 1 测量 Lu 各同位素所用的核参数

Table 1 The nuclear parameters used in measurement of lutecium isotopes

核素	半衰期	γ 能峰/keV	γ 发射率/%
$^{174}\text{Lu}^g$	3.31 a	76.6	5.85
		1241.0	5.14
		76.4	0.066
$^{174}\text{Lu}^m$	142.0 d	273.16	0.57 ± 0.14
		67.08	7.25
		78.64	11.2
^{173}Lu	1.37 a	272.01	18.5

2 数据处理方法

2.1 ^{174}Lu 的 m 态对基态活度干扰的修正

修正是指从分析测量得到的 m 态的活度中扣除基态中 m 态的干扰。由于 m 态对基态的 76.6 和 1241.76 keV 影响类型略有不同, 因此校正公式也略有差异。

对于 76.6 keV 峰的校正公式为:

$$\begin{aligned}
 D_g(0) &= D_g(0) - [F\lambda_g D_m(0)/(\lambda_m - \lambda_g)] \cdot \left\{ 1 - \exp[(\lambda_g - \lambda_m)t] \right\} - \\
 &\quad (P_m/P_{rg})D_m(0) \exp[(\lambda_g - \lambda_m)t] \\
 &= D_g(0) - 0.13215 D_m(0) [1 - e^{-1.795 \times 10^{-4}t}] - \\
 &\quad 0.01128 D_m(0) e^{-1.795 \times 10^{-4}t} \quad (1)
 \end{aligned}$$

式中: $D_g(0)$ 表示扣除 m 态后的基态零时刻的活度; $D_g(0)$ 表示未扣除 m 态时得到的基态活度; $D_m(0)$ 为 m 态的零时刻活度; F 为 m 态到基态的跃迁份额, 取 99.3%; λ_m 和 λ_g 分别表示 m 态和基态的衰变常数; t 为测量时刻至零时刻的时间间隔; P_m 和 P_{rg} 为 m 态 76.4 keV 峰和基态 76.6 keV 峰的 γ 发射率。

取 $P_m = 0.066\%$, $P_{rg} = 5.85\%$, $\lambda_m = 2.0339 \times 10^{-4} \text{h}^{-1}$, $\lambda_g = 2.3888 \times 10^{-5} \text{h}^{-1}$, 将由 76.6 keV 峰分析得到的活度 $D_g(0)$ 和由 67.08 keV 峰得到的活度 $D_m(0)$ 代入式 (1) 中进行校正, 就可得到基态活度 $D_g(0)$ 。

对 1241.76 keV 的校正公式为:

$$\begin{aligned}
 D_g(0) &= D_g(0) - [F\lambda_g D_m(0)/(\lambda_m - \lambda_g)] \left\{ 1 - \exp[(\lambda_g - \lambda_m)t] \right\} \\
 &= D_g(0) - 0.13215 D_m(0) [1 - \exp(-1.795 \times 10^{-4}t)] \quad (2)
 \end{aligned}$$

由 1241.76 keV 峰分析得到的活度 $D_g(0)$ 和由 67.08 keV 峰得到的 $D_m(0)$ 代入式 (2) 中进行校正。以比活度相同的 Lu-1 和 Lu-2 号样品为例的数据列于表 2。

样品是在探测器的表面位置测量的, 表 2 中的 $D(0)$ 是使用 10 cm 位置的效率曲线算得的零时刻活度, $D(0)$ 是校正 m 态影响后的活度, 故必须校正表面位置与 10 cm 位置的效率比值, 才能得到实际的样品活度 $D(0)$ 。比活度是单位样品用量的活度。

表 2 中 2 个样品的 m 态、基态比活度数据非常一致, 基态的 2 个能峰数据也完全一致, 说

明在校正中所使用的参数是合理的。

表 2 Lu 样品测量及校正后的活度数据

Table 2 The activity data of Lu samples

核 素	能量/ keV	Lu-1				Lu-2			
		$D(0)/$ Bq	$D(0)/$ Bq	$D(0)/$ Bq	比活度/ $Bq \cdot g^{-1}$	$D(0)/$ Bq	$D(0)/$ Bq	$D(0)/$ Bq	比活度/ $Bq \cdot g^{-1}$
^{173}Lu	78.6	43.229	43.229	3.255	3.850	152.97	152.97	11.52	3.642
	272	84.657	18.598	1.8748	2.218	313.7	66.535	6.707	2.121
$^{174}\text{Lu}^m$	67.08	2707.3	2707.3	166.71	197.2	10122	10122	623.28	197.1
$^{174}\text{Lu}^g$	76.6	814.36	704.87	49.71	58.80	3029.6	2631.0	185.54	58.67
	1241	638.44	549.78	49.62	58.69	2434.7	2101.5	189.67	59.97

2.2 $^{174}\text{Lu}^m$ 对 ^{173}Lu 影响的校正

^{173}Lu 由 $^{174}\text{Lu}(n, 2n)$ 反应生成, 它的主要 γ 峰能量为 272.01、78.64 和 100.7 keV, 其中以 272.01 keV 峰的 γ 发射率最强, 没有其它峰的干扰, 计数率较高; 78.64 keV 峰旁有 $^{174}\text{Lu}^g$ 76.6 keV 峰的干扰, 所得数据的偏差较大, 很难分析; 100.7 keV 峰的计数率很低, 又有许多其它能峰的干扰, 更难分析。但是, 272.01 keV 能峰与 $^{174}\text{Lu}^m$ 的 273.16 keV 峰相重合, 因此, 如使用 272.01 keV 峰分析时, 必须对 $^{174}\text{Lu}^m$ 的 273.16 keV 峰的影响进行校正。校正公式为:

$$D_3(0) = D_3(0) - [P_m(273)/P_3(272)] D_m(0) \exp[(\lambda_3 - \lambda_m)t] \quad (3)$$

其中: $D_3(0)$ 为扣除 $^{174}\text{Lu}^m$ 干扰后的 ^{173}Lu 零时刻活度; $D_3(0)$ 是未扣除时算出的零时刻活度; $D_m(0)$ 为 $^{174}\text{Lu}^m$ 零时刻活度; $P_m(273)$ 为 $^{174}\text{Lu}^m$ 态 273 keV 峰的 γ 发射率; $P_3(272)$ 为 ^{173}Lu 272 keV 峰的 γ 发射率; λ_3 为 ^{173}Lu 的衰变常数, λ_m 为 $^{174}\text{Lu}^m$ 的衰变常数。

将表 1 中 γ 发射率值代入式(3)中得:

$$D_3(0) = D_3(0) - 0.0308 D_m(0) \exp(-1.457 \times 10^{-4} t) \quad (4)$$

由式(4)算出的 Lu-1 和 Lu-2 样品的 ^{173}Lu 数据也列于表 2。从表中的 78.64 keV 和 272 keV 峰的活度数据可看出, 2 个能峰的值相差较大, 这很可能是因 $P_m(273)$ 值不准, 它的值为: $(0.57 \pm 0.14)\%$, 相对偏差高达 25%, 经过式(3)计算后, 误差将被放大。如果将 $P_m(273)$ 的值取为 0.47, 则式(3)变为:

$$D_3(0) = D_3(0) - 0.0254 D_m(0) \exp[-1.457 \times 10^{-4} t] \quad (5)$$

由 272 keV 峰算出 ^{173}Lu 的活度, 对 Lu-1 为 3.014 Bq, Lu-2 为 11.06 Bq; 比活度对 Lu-1 为 3.565 Bq/g, Lu-2 为 3.497 Bq/g。这一结果与 78.64 keV 峰所得值较接近, 与原来的值却相差约 60% 之多, 而 $P_m(273)$ 值仅降低约 21%。可见, γ 发射率的不确定度对校正结果的影响是很大的。

从表 2 中的比活度可看出: 2 个样品的 ^{173}Lu 的 78.64 keV 能峰数据差异略大于 272 keV 能峰的结果。272 keV 能峰对 m 态的扣除误差很大, 在 m 态的活度比 ^{173}Lu 的活度高出数量级的情况下, 取 78.64 keV 的结果较好。272 keV 能峰的数据不大可信, 很可能是 $P_m(273)$ 的值取高了, 使 m 态影响的校正量过大所致。

3 活度的误差分析

Lu 样品各同位素的活度误差, 来源于分析测量时的统计涨落误差、仪器的探测效率误差、 γ 发射率的误差等。经估算, 此 2 个样品中 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 态的活度误差 $\delta(\text{m}) = 1.5\%$, g 态活度误差 $\delta(\text{g}) = 2.2\%$ 。 ^{173}Lu 的误差较大, 如取 78.6 keV 峰数据, 它的误差 $\delta(173) = 6\%$, 272 keV 峰的数据不可信。

参 考 文 献

- 1 梁渝生 $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ 和 $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ 的衰变纲图编评 中国科学院上海原子核研究所, 1990
- 2 Lederer CM, Shirley V S. Table of Isotopes (Seventh Edition). 1071—1078
- 3 核数据表编制组 核素常用数据表 北京: 原子能出版社, 1987. 352

STUDY ON ACTIVITY MEASUREMENTS OF LUTECIUM ISOTOPES

Li Zhengtong Hao Fanhua Xiong Zonghua Huang Ruiliang

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy
of Engineering Physics, P. O. Box 525-75, Chengdu, 610003)

ABSTRACT

The paper introduces the measurement of the activities of $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$, $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$, ^{173}Lu and the methods of data processing. The existing problems in the activity measurements and data processing for these nuclides are discussed.

Key words $^{174}\text{Lu}^{\text{m}}$ $^{174}\text{Lu}^{\text{g}}$ ^{173}Lu Activity measurement Data processing