

* 成果与应用 *

镅-235 的合成与鉴别*

甘再国等**

(近代物理研究所 兰州 730000)

关键词 新核素, 合成, 鉴别, 半衰期

1 引言

中国科学院近代物理研究所过去数年中, 先后合成并鉴别出了 ^{208}Hg 、 ^{185}Hf 、 ^{237}Th 、 ^{239}Pa 和 ^{175}Er 5 种重丰中子新核素, 近期又合成鉴别出了超铀缺中子新核素 ^{235}Am , 前面 5 个新核素是我们在新核素合成领域中首先在重质量丰中子区的一个重大突破, 而 ^{235}Am 的生成和鉴别, 使我国这一领域的研究跨入了又一个重要核区——超铀缺中子区。它不仅填补了核素图上的又一个空白, 而且对镅的缺中子同位素链进行系统性研究具有重要意义。对周期表上第 95 号元素镅的缺中子同位素 ^{232}Am 和 ^{234}Am , 在 10 年前都已生成和研究过, 但是在核素图上镅的缺中子同位素链中, ^{233}Am 、 ^{235}Am 和 ^{236}Am 的位置一直保持空白状态, 这种情况直接影响了对镅同位素奇异衰变模式的系统性研究, 特别是对镅的缺中子同位素的延迟裂变和自裂变特性的研究, 对天体物理以及新的能源的研究都具有重要意义, 因此, 国外许多科学家和研究小组对合成和研究镅的这三个未知同位素付出了极大的努力。1987 年, A. Marinov 等人报道了他们利用西欧中心的 24GeV 的质子束轰击厚靶产生的次级束引起的反应, 产生并鉴别出了 ^{236}Am 的一个半衰期为 0.6 年的长寿命同质异能态。日本原子能研究所(JAERI)的 Y. Hatsukawa 小组近年来也一直在实验室合成 ^{235}Am 和 ^{236}Am 而努力, 他们三年前就开始对 $\text{Li} + \text{U}$ 反应的激发函数进行详细的实验测量, 分别以 ^6Li 和 ^7Li 束流轰击 ^{238}U 和 ^{235}U 靶, 观测复合核蒸发 $3n$ 、 $4n$ 和 $5n$ 的反应截面, 希望借这种类型的反应机制产生 ^{236}Am 甚至 ^{235}Am 。直到最近, 才在 1996 年出版的 JAERI 年度报告中看到他们关于已合成出 ^{236}Am 的报告, 所采用的方法是借助 $^6\text{Li} + ^{235}\text{U}$ 反应蒸发 $5n$ 的机制, 初步测得 ^{236}Am 的半衰期为 3—7min, 产生 ^{236}Am 的理论反应截面是 $\sim 100\mu\text{b}$ 。

我们用 35MeV 质子轰击 ^{238}Pu 靶, 一举成功地合成并鉴别出了新核素 ^{235}Am 。采用这种反应道的理论产生截面为 $\sim 2\text{mb}$, 比 $\text{Li} + \text{U}$ 的截面大得多, 并且准备工作和预备实验所花时间也

* 国家自然科学基金和中国科学院资助项目

** 参加人还有: 郭俊盛、石立军、刘洪业、杨维凡、牟万统、郭天瑞、方克明、沈水法、袁双贵、张学谦、秦芝、马瑞昌、钟纪泉、靳根明、王书鸿、孔登明、乔际民(后面 3 人系高能物理研究所人员)

收稿日期: 1996 年 10 月 4 日。修改稿收到日期: 1996 年 11 月 20 日

远比日本人短。 ^{235}Am 的首先合成, 充分体现出我们创新的思想和技术路线。

2 装置、实验及数据获取

实验是在北京高能物理研究所的质子直线加速器上完成的。所用实验装置主要包括 He-jet 多层靶室, 长毛细管传输系统, 收集室和探测设备等。

靶室内共安装了 10 片 ^{238}Pu 靶, 每片靶子的 ^{238}Pu 镀层厚度为 $80\text{--}100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 。照射在靶上的质子束强度达 $3\text{--}5\mu\text{A}$ 。为了增加对反应产物的传输效率, 在 He-jet 传输系统的氦气流中添加了 NaCl 的固体微粒。靶室中的反应产物随氦气流一起通过长约 20 米的聚乙烯毛细管到达远离束流的低本底区的收集室内, 并被收集在一个收集箔上。每个产物样品的收集时间为 40—60min, 收集完毕后将收集片取出, 对反应产物进行快速的放射化学处理。因为在反应产物中除了 Am 以外, 还有 Pu、Np 以及大量的裂变碎片, 因此对产物进行分离和纯化在本实验中是非常重要的。首先用硝酸溶液将收集箔上的反应产物及 NaCl 微粒的沉积层溶解下来, 用 PMBP-苯和 TBP 进行萃取, 再用 HNO_3 反萃; 接着用 HDEHP-煤油同 P_2O_5 混合物再萃取和 DTPA 的乳酸溶液反萃, 最后加入 La 载体, 经过滤制成 Am 的固体样品源。经过化学分离, 成功地提取出 Am 元素而将裂变碎片及 Pu、Np 等元素分离出去。借助 ^{241}Am 的示踪试验显示, 整个化学流程中对 Am 的化学回收率大于 80%, 而化学处理时间只需 10 分钟左右。

对化学分离后制成的 Am 样品源进行了放射性测量, 测量中使用了一台小平面 HPGe X 射线探测器及一台 GMXHPGe γ 射线探测器。数据记录的格式分为两种, 一种是 γ 或 X 射线的时间序列谱, 即在一段时间内记录一个单谱, 按照时间的顺序在等时间间隔内得到一系列的单谱, 通过对这些单谱的分析, 可以得到各种活性的半衰期; 另一种记录格式是将每一个事件的能量和到达时间都一一对应地记录下来, 称为事件谱, 它在谱分析中可以给出事件的符合关系。实验中所使用的两台探测器用 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 及 ^{133}Ba 标准源进行了能量刻度。

3 对实验结果的处理与分析

每个样品源的测量时间为 40—60min。为了得到较好的统计, 本实验共制备和测量了近百个样品源, 获得了 Am 样品的 γ 及 X 射线单谱, 时间序列谱以及 γ -X 和 γ - γ 符合谱。对这些谱的处理与分析是用微机程序完成的。

在对 Am 样品源测得的 γ 和 X 射线谱中, 观测到 Pu 元素的 $K_{\alpha 1}$ 和 $K_{\alpha 2}$ 特征 X 射线, 这些 X 射线是伴随 Am 元素的电子俘获(EC)衰变产生的。同时, 也观测到能量为 101.1 和 97.1keV 时的 Np 元素的 X 射线。根据分析, Np 的 X 射线只可能来源于 Pu 同位素的 EC 衰变。由对时间序列谱的处理, 得到 101.1keV X 射线的衰变曲线呈现出明显的生长和衰变特征, 这表明它的发射体 Pu 同位素不是来源于反应的直接生成产物, 而是由 Pu 的母核 Am 经 EC 衰变而来的; 另外, 在 γ 谱的低能区也测到已知核 ^{235}Pu 的一条最强的衰变 γ 线 $E_\gamma=49.1\text{keV}$, 并且它同 101.1keV 的 X 射线存在符合关系, 这清楚地表明了 101.1keV X 线来源于 Pu 的一个同位素 ^{235}Pu 的 EC 衰变, 而 ^{235}Pu 又来源于 ^{235}Am 的 EC 衰变, 由此可知, 这条 EC 衰变链 Am(EC)

\rightarrow Pu(EC)→Np 的质量数是 235。

继而用一个放射性系列衰变分析程序对 101. 1keVX 线的生长-衰变曲线进行拟合,得到了它的生长和衰变半衰期分别为 $15 \pm 5\text{min}$ 和 $25 \pm 4\text{min}$,后者同已知的 ^{235}Pu 半衰期的文献值相符合,而前者则为新同位素 ^{235}Am 的半衰期($15 \pm 5\text{min}$),且与理论预言值一致。此外,对 ^{235}Pu 的已知的 49. 1keVY 线用同一分析程序拟合得到的 ^{235}Pu 和 ^{235}Am 的半衰期与上面所得数值在实验误差范围内相符合。经过对实验数据的进一步分析,也排除了产生 Np 的 X 射线(如 101. 1 keV)的其它可能性。首先,反应中通过(p,3n)反应道产生 ^{236}Am 的截面虽然可以同 ^{235}Am 的截面相比拟(在所用的质子束能量下,由 Alice 程序计算可知,两者的截面值都在 2—3mb 范围),并且化学分离也无法将 Am 的同位素区分开来,但 ^{236}Am 同位素的 EC 衰变子体 ^{236}Pu 是一已知的 $\sim 100\%$ 的 α 发射体,因此, ^{236}Am 的衰变只能给 Pu 的 X 射线贡献份额,而不可能对 Np 的 X 射线有任何贡献;另外,又根据 Alice 程序计算,在本实验条件下,生成 ^{237}Am , ^{234}Am , ^{237}Pu 和 ^{234}Pu 的截面都相当低,加之 ^{237}Pu 和 ^{234}Pu 与 ^{235}Pu 的半衰期相差很大(它们的半衰期分别为 45d, 8. 8h 和 25. 3min),所以由 Am 的其它同位素衰变产生的 ^{237}Pu 和 ^{234}Pu 对测得的 Np 的 X 射线的贡献也可忽略不计;最后,由反应直接生成的 ^{235}Pu ——通过(p,p3n)反应道,经 EC 衰变而发射 Np 的 X 射线的可能性也应该排除,因为反应直接产生的 Pu 同位素在化学分离中已被除去。同时,NpX 射线的生长-衰变特征也表明 Np 产物不是来自反应直接产生的 Pu。

上述对所测得结果的综合分析表明,本实验首次合成了超铀区缺中子新核素 ^{235}Am ,其衰变半衰期为 $15 \pm 5\text{min}$ 。

致谢 本实验的成功,是与中国科学院高能物理研究所的全力支持,特别是质子直线加速器室提供的高品质束流及大力协作分不开的,在此表示衷心的感谢。

———— * ————— *

* 简讯 *

全国首届“百佳”出版工作者举行报告会

本刊讯 在中宣部出版局和新闻出版署期刊司的指导下,由中国期刊协会科技期刊委员会主办,于 1997 年 1 月 28 日在新闻出版署举行全国首届“百佳”出版工作者称号获得者的 3 位科技期刊编辑事迹报告会。其中有本院科学出版社《中国科学》杂志社社长丁乃刚编审。他们以自身的编辑经历,讲精神、讲追求、讲奉献,赢得了与会者的好评。会上,中宣部出版局及新闻出版署期刊司的领导还作了重要讲话。

(益鸣)