

在 Be 和 Au 中 ^7Be 半衰期差别的测量

李成波, 刘志毅, 王思广, 周 静, 孟秋英, 周书华

(中国原子能科学研究院 核物理研究所, 北京 102413)

摘要: 用两套 谱仪精确测量了注入到天然铍和天然金中的 ^7Be 发生电子俘获的半衰期。实验测得, 天然铍中 ^7Be 的半衰期为 53.275(25) d, 在天然金中为 53.270(19) d。在 0.12% 的实验测量精度下, 未观测到 ^7Be 半衰期在这两种材料中的差异。结果表明: 注入在不同材料中 ^7Be 半衰期的变化不能仅从被注入材料的电子亲合势的差异考虑, 还要考虑材料晶格结构的影响。

关键词: 电子俘获; 半衰期; 电子亲合势; 晶格结构

中图分类号: O571.322

文献标识码: A

文章编号: 1000-6931(2005)05-0390-05

Measurement of Difference of Half-Life of ^7Be in Be and Au

LI Cheng-bo, LIU Zhi-yi, WANG Si-guang, ZHOU Jing, MENG Qiu-ying, ZHOU Shu-hua
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The half-life $T_{1/2}$ of ^7Be implanted in natural beryllium and natural gold has been measured using two coaxial high-purity germanium detectors to be 53.275(25) d and 53.270(19) d, respectively. No difference in the half-life of ^7Be in the host media beryllium and gold is observed within measurement uncertainty of 0.12%. This result implies that the change of the decay rate of ^7Be implanted in different materials can not be simply expected from the electron affinity difference consideration alone and the lattice structure of the host materials should be taken into account.

Key words: electron capture; half-life; electron affinity; lattice structure

放射性核素的半衰期, 特别是发生电子俘获和内转换过程的半衰期与核外电子密度有密切关系^[1~3]。改变核外化学、物理环境有可能改变核外电子密度, 进而改变这些核素的半衰期。精确测量这些核素的半衰期以及研究它们在不同核外环境中半衰期的变化在诸如核物理、核天体物理、凝聚态物理、地球化学、地球年

代学、核废物处理等许多领域有着重要的应用。 ^7Be 半衰期在研究太阳中微子丢失问题上有着特殊的意义^[4~6]。精确确定 ^7Be 半衰期与研究其随核外环境变化的规律可更精确抽取 $^7\text{Be} + e^- \rightarrow ^7\text{Li} + \gamma$ 这一核天体物理中重要反应的矩阵元, 以便能更好理解实验值与理论值之间的差异。

收稿日期: 2004-02-11; 修回日期: 2004-06-30

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, 河北沧州人, 助理研究员, 实验核物理专业

近年来,随着探测手段、测量技术和实验精度的提高,这一课题又成为当前的研究热点之一。Huh 等^[7]测量到以不同化合态结合的⁷Be 的半衰期最大变化为 1.5%;Liu 等^[8]测量到在常压和 400 千巴高压下⁷Be 的半衰期变化为 1%;另外,Norman 等^[9~12]将⁷Be 注入至不同材料中,如氟化锂、金、三氧化二铝、石墨、氮化硼、钽、锂等,也测量到了其半衰期最大的变化约为 0.7%。

⁷Be 是发生电子俘获的最轻的放射性核素,具有简单的电子壳层结构,因而是研究核外环境对半衰期影响的最合适核素之一。⁷Be 衰变发生电子俘获反应 ${}^7\text{Be} + e^- \rightarrow {}^7\text{Li} + \gamma$,大约 10%布居到⁷Li 的第 1 激发态,其余的布居至⁷Li 的基态。⁷Li 第 1 激发态通过放出 478 keV 射线退激至⁷Li 的基态^[13]。本实验借助探测⁷Be 发射的 478 keV 射线强度随时间的变化来测量⁷Be 的半衰期。

1 实验

用中国原子能科学研究院计量测试部的 5SDH-2 型串行加速器提供的能量为 3.2 MeV、流强为 5 μA 的质子束轰击质量厚度为 500 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的氟化锂靶,发生 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反应,将反冲出来的⁷Be 分别注入到天然铍箔和天然金箔(质量厚度分别为 1 mg/cm^2 和 6 mg/cm^2) 中,得到两块在金属铍和金中的⁷Be 源样品。两台用于测量的同轴高纯锗探测器分别置于两套相距 4 m 的屏蔽体中,屏蔽体从内到外分别由有机玻璃、铝、铜、铅 4 层屏蔽材料组合构成。两个⁷Be 源分别置于这两个探测器探头上约 2 cm 处。为减小短半衰期核素对测量的影响,样品冷却约 40 d 后开始测量。两套谱仪测量的射线能谱由 KODAQ 数据获取系统记录。以 1 h 作为时间间隔记录能谱,如此测量约 67 d。

为减小由两套测量系统的死时间、探测器、电子学系统的不同引起的系统误差,对调两样品位置后,继续测量约 35 d。

图 1 示出在样品 Au 中⁷Be 的典型谱。

2 数据分析与实验结果

射线在探测器中产生的全能峰脉冲高度

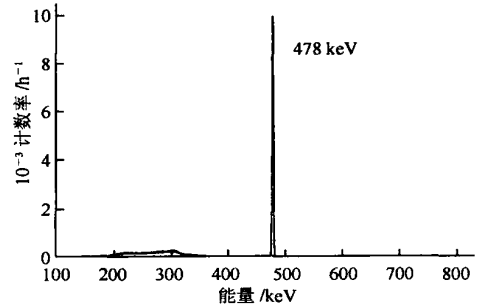


图 1 样品 Au 中⁷Be 的典型谱

Fig. 1 A typical gamma ray spectrum obtained in one-hour counting interval from the ⁷Be in gold sample

近似服从高斯分布,因此,选择 478 keV 射线峰谱段范围为 ± 5 (为表征峰形宽度的特征量),包括了近 100%的全能峰脉冲计数。

抽取该射线净计数主要分以下几步:

- 1) 积分 478 keV 射线峰谱段内的每道计数,得到该峰谱段的总面积;
- 2) 用平滑阶梯函数表示连续本底谱,求出该谱段范围内的本底面积;
- 3) 从已求出的总面积中扣除本底面积,得到 478 keV 峰的净峰面积,即净计数^[14]。从每一能谱中得到净峰面积后,进行净峰面积的死时间修正。根据香港天文台提供的标准时间校准获取系统的时钟后,对每一能谱对应的时间信息进行修正,最后得到源的活度。

本实验分源位置交换前和交换后两个阶段进行测量,故在一定程度上消除了由系统带来的误差。实验初期,每套系统获取的总计数率约为 100 s^{-1} 。对于如此较低水平的计数率,探测器的偶然符合损失是可以忽略的。在测量过程中,样品被牢固安置在 HPGc 探测器探头上,不会因几何位置的变动而造成探测效率变化。经比较计算,由选择扣本底区间带来的峰面积的人为误差不足 0.1%,是统计误差的 1/4。综上所述,统计误差乃是本实验中的主要误差来源。

图 2 示出交换源位置前后两源活度的实验数据。用最小二乘法以每一点计数率统计误差平方的倒数为权重拟合计数率的衰变曲线,得到放射源的衰变率,其误差为曲线拟合误差。对每个源在交换样品前后两阶段的衰变率进行加权平均,得到它们的衰变率的平均值,最后

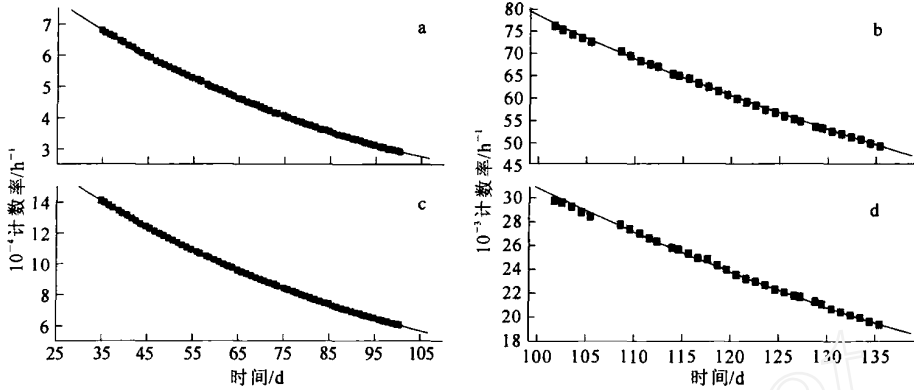


图2 实验数据及其拟合曲线

Fig. 2 Experimental data and their fit plots

a, b——天然 Be 中; c, d——天然 Au 中
 a, c——交换样品前; b, d——交换样品后
 实线为拟合曲线

得到⁷Be 在天然 Be 中的半衰期为 (53.275 ± 0.025) d, 在天然 Au 中为 (53.270 ± 0.019) d。由此可见, 在实验测量精度范围内, ⁷Be 半衰期在这两种样品中无差别。

除了上面将两源半衰期直接相减得到半衰期的差别外, 还采用微分法得到该值。设 A_{Be} 、 A_{Au} 分别为两探测器测得的第 t 到 $(t + 1)$ 天间隔内在样品 Be 和 Au 中⁷Be 源的活度, A_{Be}^0 和 A_{Au}^0 分别为第 0 天到第 1 天间隔内两源的活度, λ_{Be} 、 λ_{Au} 分别为注入到这两样品中的⁷Be 源的衰变率, 并令 $\lambda = \lambda_{Be} = \lambda_{Au}$, 则有:

$$\ln R(t) = \ln R_0 - \lambda t \quad (1)$$

其中: $R(t) = \frac{A_{Be}}{A_{Au}}$, $R_0 = \frac{A_{Be}^0}{A_{Au}^0}$ 。

绘制 $\ln R(t)$ 与时间 t 的关系曲线, 由式 (1) 知, 该曲线斜率即为衰变率在不同样品中的变化。

图 3 为交换样品前后 $\ln R(t)$ 的实验值与时间 t 的关系图以及用最小二乘法线性拟合的相应曲线。由图 3a 得到的 $\lambda = (0.3 \pm 0.8) \times 10^{-5}$, 由图 3b 得到的 $\lambda = (-0.7 \pm 1.5) \times 10^{-5}$ 。通过拟合源活度衰变曲线得到的在天然 Be 中⁷Be 的 $\lambda = 0.012986 \pm 0.000004$, 则在交换样品前后衰变率相对变化分别为 $\lambda = (0.02 \pm 0.06)\%$ 和 $(0.05 \pm 0.12)\%$ 。该结果同样说明, 在实验精度 (0.12%) 范围内未观测到⁷Be 半衰期的变化。

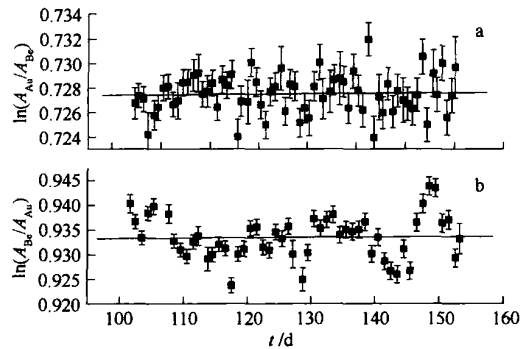


图3 对调源位置前(a)、后(b) $\ln R(t)$ 与时间 t 的关系曲线

Fig. 3 Plot of $\ln R(t)$ versus time t (a) and the same plot as

after exchanging sources positions (b)
 实线为对实验数据的线性拟合线

3 结果与讨论

本实验分别测量了注入到天然铍和天然金中的⁷Be 半衰期, 也是第 1 次以这两种材料作为一对参照宿主材料测量⁷Be 半衰期可能发生的变化。实验结果表明: 在本实验测量精度 (0.12%) 内, 未观测到注入到天然 Be 和天然 Au 中的⁷Be 半衰期的差异。

Ray 等^[10] 曾分别从定性和定量的角度解释了注入至不同宿主材料中⁷Be 的半衰期相对变化。定性上, 他们提出注入到不同材料中

的⁷Be 半衰期的变化与宿主材料的电子亲合势有关,即⁷Be 原子在电子亲合势大的材料中比在电子亲合势小的材料中更易失去核外电子,这样,其发生电子俘获的几率变小。考虑到 Au 的电子亲合势($E_{A_{Au}} = 2.308 \text{ eV}^{[15]}$)大于天然 Be 的电子亲合势($E_{A_{Be}} = -0.19 \text{ eV}^{[15]}$),因此,根据 Ray 等的观点,实验前预计在这两种材料中⁷Be 的半衰期相对变化约为 0.7%。然而,本实验结果是它们的半衰期相对变化的上限仅为 0.12%。考虑到,一方面天然 Au 比天然 Be 更易得到注入在其中的⁷Be 核外电子;另一方面,天然 Be 晶格常数小于 Au 的晶格常数,从平均效果上讲,注入后的⁷Be 与⁹Be 原子(天然 Be)之间的距离要小于与 Au 原子的距离,使得⁹Be 原子则更易得到⁷Be 核外电子。这样,宿主材料晶格结构带给⁷Be 核外电子密度的影响削弱了其电子亲合势带来的影响。因此,该实验结果表明,对于注入到不同材料中的⁷Be,它们发生电子俘获的衰变率变化不能简单的只从注入材料的电子亲合势的角度来考虑,还应考虑注入材料晶格结构对其衰变率的影响。

定量上, Ray 等^[10, 16, 17]用紧束缚线性化的 Muffin-tin 轨道方法,即 TB-LMTO 方法,结合 Hartree 的计算结果^[18]计算了在不同宿主材料中⁷Be 衰变率的相对变化,其计算结果与目前的实验值很好一致。因此, TB-LMTO 方法有助于对这一问题的理解。

在 TB-LMTO 方法中,用 Muffin-tin 势代表原子球间的势场,有:

$$V_{MT}(r) = V_i(r_i) + \sum_R V_R(r_R) - V_0 + \sum_R v_R(r_R) \quad (2)$$

式中: $v_R(r_R) = V_R(r_R) - V_0$, $V_R(r_R)$ 和 $v_R(r_R)$ 在 R 处的半径为 r_R 的原子球中取球对称,在球外取为 0; $V_i(r_i)$ 在球间区域取常数 V_0 , 在区域外取为 0。

通过求解这一势场的 Schrodinger 方程,可以得到⁷Be 原子 2s 轨道上电子的平均个数。由 Hartree 的计算^[18]知, ⁷Be 原子 2s 轨道上的电子在其核内($r = 0$ 处)出现的几率是 1s 轨道的 3.31%。借助这一结果,可算出在不同宿主材料中⁷Be 发生电子俘获的衰变几率的相对

变化,即半衰期的相对变化。经过计算,注入在天然 Be 和天然 Au 中的⁷Be 半衰期相对差别为 0.04%,该值与在本实验测量精度 0.12% 内未观测到⁷Be 半衰期差别的结论是一致的。

鉴于目前精确测量⁷Be 半衰期及研究其随核外环境变化仍有重要意义,故在表 1 中按文献发表的时间顺序列出了半个世纪以来⁷Be 半衰期的实验值。可以看出,早期发表的实验值误差较大,且不能很好的相互重叠。近二十年来,随着实验技术与探测手段的提高,⁷Be 半衰期测量的精度不断提高,但因一些文献未具体提供⁷Be 所处的核外环境信息,在理论上还没有完全对⁷Be 随核外环境变化做出合理解释,因此,还不能肯定说这些实验值之间的差异来自于核外环境的影响。

表 1 ⁷Be 半衰期的实验值

Table 1 Some experimental data of half-life of ⁷Be

序号	半衰期/d	文献	备注
1	52.93 ± 0.22	[19, 20]	
2	53.61 ± 0.17	[21]	
3	53.0 ± 0.4	[22]	
4	53.5 ± 0.2	[23]	
5	53.1 ± 0.3	[24]	
6	53.52 ± 0.1	[25]	
7	53.0 ± 0.3	[26]	
8	53.17 ± 0.02	[27]	
9	53.284 ± 0.004	[28]	
10	53.12 ± 0.07	[9]	注入到氟化锂中
11	53.42 ± 0.01	[29]	
12	53.107 ± 0.022	[11]	注入到石墨中
13	53.174 ± 0.037	[11]	注入到氮化硼中
14	53.195 ± 0.052	[11]	注入到钽中
15	53.311 ± 0.042	[11]	注入到金中
16	53.270 ± 0.019	本实验	注入到金中
17	53.275 ± 0.025	本实验	注入到钽中

参考文献:

[1] Emery GT. Perturbation of Nuclear Decay Rates [J]. Ann Rev Nucl Sci, 1972, 22:165 ~ 202.
 [2] Hahn HP, Born HJ, Kim JI. Survey on the Rate Perturbation of Nuclear Decay [J]. Radio Acta, 1976, 23:23 ~ 37.

- [3] Dostal KP, Nagel M, Pabst D. Variations in Nuclear Decay Rates[J]. *Z Naturforsch*, 1977, 32a:345 ~ 361.
- [4] Bahcall JN, Huebner WF, Lubow SH, et al. Standard Solar Models and the Uncertainties in Predicted Capture Rate of Solar Neutrinos[J]. *Rev Mod Phys*, 1982, 54:767 ~ 799.
- [5] Wolfenstein L, Krastev PI. How Large is the ${}^7\text{Be}$ Neutrino Flux From the Sun? [J]. *Phys Rev*, 1997, D55:4 405 ~ 4 411.
- [6] Chauhan BC, Dev S. A Natural Explanation of Be/B Neutrino Flux Anomaly in the RSFP Scenario[J]. *Phys Soc Japan*, 1997, 66:917 ~ 920.
- [7] Huh C. Dependence of the Decay Rate of ${}^7\text{Be}$ on Chemical Forms[J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1999, 171:325 ~ 328.
- [8] Liu L, Huh C. Effect of Pressure on the Decay Rate of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 2000, 180:163 ~ 167.
- [9] Jaeger M, Wilmes S, Kölle V, et al. Precision Measurement of the Half-Life of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Phys Rev*, 1996, C54:423 ~ 424.
- [10] Ray A, Das P, Saha SK, et al. Observation of Large Change of ${}^7\text{Be}$ Decay Rate in Au and Al_2O_3 and Its Implications[J]. *Phys Lett*, 1999, 455B: 69 ~ 76.
- [11] Norman EB, Rech GA, Browne E, et al. Influence of Physical and Chemical Environments on the Decay Rates of ${}^7\text{Be}$ and ${}^{40}\text{K}$ [J]. *Phys Lett*, 2001, 519B:15 ~ 22.
- [12] Souza DJ, Kegel GH, Egan JJ, et al. Measurement of Difference in Decay Rate for ${}^7\text{Be}$ in Li and ${}^7\text{Be}$ in Ta [J]. *Nucl Sci Technol*, 2002, 2(Supplement):470 ~ 473.
- [13] Firestone RB, Shirley VS, Chu SYF, et al. Table of Isotopes CD-ROM [M]. New York: John Wiley & Sons Inc, 1996. 272.
- [14] 古当厂. 放射性核素活度测量的方法和技术 [M]. 北京: 科学出版社, 1994. 244 ~ 246.
- [15] Lide DR. CRC Handbook of Chemistry and Physics [M]. Florida: CRC Press, 2002. 10 ~ 147.
- [16] Ray A, Das P, Saha SK, et al. The Effect of Host Medium on the Half-Life of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Phys Lett*, 2002, 531B:187 ~ 189.
- [17] Ray A, Das P, Saha SK, et al. Effect of Host Medium on the L/ K Ratio in ${}^7\text{Be}$ Electron Capture [J]. *Phys Rev*, 2002, C66: 012501-1 ~ 012501-4.
- [18] Hartree DR, Hartree W. Self-Consistent Field, With Exchange, for Beryllium [J]. *Proc Roy Soc London A*, 1935, 150:9 ~ 33.
- [19] Segrè E, Wiegand CE. Experiments on the Effect of Atomic Electrons on the Decay Constant of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Phys Rev*, 1949, 75:39 ~ 43.
- [20] Segrè E, Wiegand CE. Erratum: Experiments on the Effect of Atomic Electrons on the Decay Constant of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Phys Rev*, 1951, 81:284.
- [21] Kraushaar JJ, Wilson ED, Bainbridge KT. Comparison of the Values of the Disintegration Constant of Be in ${}^7\text{Be}$, BeO , and BeF_2 [J]. *Phys Rev*, 1953, 90:610 ~ 614.
- [22] Bouchez P, Tobailem J, Robert J, et al. Nouvelle Détermination de la Différence des Périodes de ${}^7\text{Be}$ Métallique et de ${}^7\text{BeF}_2$ [J]. *J Phys Rad*, 1956, 17:363 ~ 365.
- [23] Wright HW, Wyatt EI, Reynolds SA, et al. Half-Lives of Radionuclides [J]. *Nucl Sci Eng*, 1957, 2:427 ~ 430.
- [24] England JBA, Reece BL. A Study of the (${}^3\text{He}$, ${}^7\text{Be}$) Reaction in ${}^{12}\text{C}$ [J]. *Nucl Phys*, 1965, 72: 449 ~ 460.
- [25] Johlige HW, Aumann DC, Born HJ. Determination of the Relative Electron Density at the Be Nucleus in Different Chemical Combinations, Measured as Changes in the Electron-Capture Half-Life of ${}^7\text{Be}$ [J]. *Phys Rev*, 1970, C2:1 616 ~ 1 622.
- [26] Cressy PJ. Half-Lives of Some Cosmogenic Radionuclides: ${}^7\text{Be}$, ${}^{46}\text{Sc}$, ${}^{54}\text{Mn}$, ${}^{56}\text{Co}$, and ${}^{65}\text{Zn}$ [J]. *Nucl Sci Eng*, 1974, 55:450 ~ 451.
- [27] Lagoutine F, Legrand J, Bac C. Périodes de Quelques Radionucléides [J]. *Intern J Appl Radiat Isot*, 1975, 26:131 ~ 135.
- [28] Rutledge AR, Smith LV, Merritt JS. Decay Data for Radionuclides Used for the Calibration of X- and γ -Ray Spectrometers: NBS-SP-626 [R]. USA: NBS, 1982.
- [29] Huh C, Liu L. Precision Measurements of the Half-Lives of Some Electron-Capture Decay Nuclides ${}^7\text{Be}$, ${}^{54}\text{Mn}$, ${}^{83}\text{Rb}$, and ${}^{84}\text{Rb}$ [J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2000, 246:229 ~ 231.