

CNIC-01402
PU-0008

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY REPORT

硼薄膜中氧含量分析和带电粒子活化法研究

ANALYSIS OF OXYGEN CONCENTRATION IN BORON
TARGET AND STUDY OF CPAA

(In Chinese)



中国核情报中心
原子能出版社

China Nuclear Information Centre
Atomic Energy Press

图书在版编目 (CIP) 数据

中国核科技报告 CNIC-01402 PU-0008: 硼薄膜中氧含量分析和带电粒子活化法研究/刘广智等著. —北京: 原子能出版社, 1999. 9

ISBN 7-5022-2065-8

I. 中… II. 刘… III. 核技术-中国-研究报告 IV. TL-2

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (1999) 第 47072 号

原子能出版社出版发行

责任编辑: 孙凤春

社址: 北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码: 100037

中国核科技报告编辑部排版

核科学技术情报研究所印刷

开本 787×1029 1/16 • 印张 1/2 • 字数 8 千字

1999 年 9 月北京第一版 • 1999 年 9 月北京第一次印刷

定价: 5.00 元

CNIC-01402

PU-0008

硼薄膜中氧含量分析和带电粒子 活化法研究

刘广智 唐国有 陈金象 吴俊 张国辉 张勇

(北京大学重离子物理研究所, 北京, 100871)

摘 要

应用带电粒子活化分析法 (CPAA) 对硼薄膜中的氧含量进行了测量, 并对利用厚标样分析薄样品中的元素含量的比较测量方法进行了研究。在 4.5 MV Van de Graff 静电加速器上加速 ^3He 粒子, 通过 $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ 反应, 产生放射性核素 ^{18}F , 再经过 β^+ 衰变 ($^{18}\text{F} \rightarrow ^{18}\text{O} + \beta^+$) 成为稳定核 ^{18}O 。用高纯锗探测器测量标样和硼样品中 ^{18}F 的放射性活度, 通过相对比较法得到硼样品中 ^{16}O 的含量。

Analysis of Oxygen Concentration in Boron Target and Study of CPAA

(In Chinese)

LIU Guangzhi TANG Guoyou CHEN Jinxiang WU Jun
ZHANG Guohui ZHANG Yong

(Institute of Heavy Ion Physics, Peking University, Beijing, 100871)

ABSTRACT

Using Charged Particle Activation Analysis (CPAA), the concentration of oxygen in a thin boron target was determined, and the method of analyzing the thin unknown sample in comparison with the thick standard was studied. ^3He particles were accelerated to 8.0 MeV energy by 4.5 MV Van de Graff accelerator to irradiate the isotope ^{16}O in samples and the artificial radioisotope ^{18}F was created by the reaction $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$. The β^+ radioactivity of ^{18}F was measured by the high resolution gamma-ray spectroscopy. By comparing the radioactivity of the sample and the standard, the concentration of isotope ^{16}O was determined.

引言

在科学实验和实际生产应用中,经常要求对材料中的元素含量进行定量分析。在各种元素含量分析方法中,CPAA(带电粒子活化分析)是一种重要的核物理分析方法,尤其适用于分析 C、N 和 O 等轻核在固体样品中的微量级含量。一般是对薄样品与厚标准样品作相对比较测量,若反应道选择合适,能够达到很高的精确度和灵敏度。但是在实际工作中,往往有些样品只能作成薄靶,而作成同样厚度的薄标准样品不容易实现,因此需要用厚标准样品和薄待测样品进行比较测量,从而得到待测样品元素含量。我们通过测量硼薄膜中的氧含量的实验,建立和完善了这种实验方法。

硼不仅在核工程和核技术中有着广泛的应用,而且测量硼的双微分截面对轻核理论的研究非常重要。为开展硼的 (n, α) , (n, p) 反应双微分截面的研究,用蒸发镀膜的方法制备了以 Ta 为衬底的硼薄膜。但是由于镀膜过程中真空度不够高,使硼原子与氧原子结合,造成薄膜中含有一定量的氧,而且 O 的 (n, α) , (n, p) 反应对硼的这两个反应截面测量有很大的干扰。因此必须准确地定出硼薄膜中的 O 原子含量。

我们利用 $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ 核反应,来分析硼薄膜样品中 ^{16}O 的含量。实验中用能量为 8.0 MeV 的 ^3He 粒子活化标准厚样品 Al_2O_3 和待测样品硼中的 ^{16}O 核素,生成放射性核素 ^{18}F ,再经过 β^+ 核衰变反应 ($^{18}\text{F} \rightarrow ^{18}\text{O} + \beta^+$) 成为稳定核。我们测量两个样品中 ^{18}F 的活度,获得样品中 ^{16}O 的含量。

此实验不仅为硼反应截面的研究完成了准备工作,而且建立了一套实际可行的高灵敏度的元素含量测量方法。

1 实验方法

1.1 CPAA 方法

用带电粒子引起的核反应来分析材料的工作始于 50 年代后期,这种分析方法特别适用于对轻元素的分析,能够给出非常精确的元素含量。利用加速器加速带电粒子到一定能量(大于选定核反应的反应阈)轰击靶物质引起核反应,然后测量反应生成的放射性核素的半衰期和活度,就可以定出被分析元素的种类及数量。这种方法叫带电粒子活化分析法,记为 CFPA。此方法的关键是选择合适的核反应,使靶物质中待分析核素发生核反应,生成具有适当半衰期的放射性核素。

CPAA 是一种重要的核物理实验方法,若采用标准样品相对比较法,能在很大范围内确定其含量(从 10^{-6} 量级到 10^{-12} 量级)。考虑其他众多的分析手段和实际应用时的条件,CPAA 主要应用于分析 C、N 和 O 等轻核在固体中的微量级含量。在这方面的应用,CPAA 是最好的实验方法,因为:

(1) 与化学分析方法相比,CPAA 不破坏样品,可以使用同一样品进行其他方法测量。并且,化学方法中的污染无法引入有效的误差,而这对无处不在的元素(C、N 和 O)非常重要。

(2) CPAA 中所要探测的放射性同位素可以从复杂的本底中分离出来。

(3) 采用相对比较测量法,避免了对束流强度和探测器效率的绝对测量,在相同

的几何条件下, 可以抵消共同的干扰因素, 减少误差。

1.2 放射性粒子活度的计算

(1) 对于薄靶, 设靶核面密度为 N_S 用强度为 I 的粒子束照射, 入射粒子能量为 E_{in} 时的反应截面为 $\sigma(E_{in})$, 则放射性核素的产额为:

$$P = \sigma(E_{in})IN_S$$

经过 t 时间照射后, 靶中放射性粒子的活度应为:

$$A = P(1 - e^{-\lambda t}) = \sigma(E_{in})IN_S(1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

A 是 t 时刻靶的放射性活度, λ 是放射性粒子的衰变常数。

(2) 对于厚靶, 由于入射粒子与核外电子发生碰撞损失能量, 所以不仅入射粒子在靶中不同深度具有不同的能量和反应截面, 而且入射粒子能量消耗完之后停留在靶内, 引起入射粒子束流强度随深度的变化。

设想将一厚靶分成若干层, 每一层可看作薄靶处理。在深度 $x \rightarrow x + dx$ 处的厚度为 dx 的薄层, 应用前面结果有:

$$dP = \sigma(x)N_v I(x)dx$$

dP 是这一薄层中放射性核素的产额, N_v 是单位体积内靶核的粒子数 (体密度), $I(x)$ 和 $\sigma(x)$ 分别是入射粒子在 x 处的粒子束强度和反应截面。总的产额为

$$P = \int dP = N_v \int_0^h \sigma(x)I(x)dx$$

h 为入射粒子在靶物质中能够发生核反应的最大深度, 此时粒子的能量为反应阈 E_{th} 。以 E 为变量, 则

$$P = N_v \int_{E_{th}}^{E_0} I(E)\sigma(E) \frac{dE}{(dE/dx)_E}$$

$(dE/dx)_E$ 是能量为 E 时的阻止本领。

则标样厚靶在照射 t 时间后, 靶中放射性核素的活度为:

$$A = P(1 - e^{-\lambda t}) = (1 - e^{-\lambda t}) N_v \int_{E_{th}}^{E_0} I(E)\sigma(E) \frac{dE}{(dE/dx)_E} \quad (2)$$

(3) 对于本实验, 采用的已知含氧量的标样 Al_2O_3 是厚靶 (用脚标 O 标记), 待测含氧量的样品 ^{10}B 是薄靶 (用脚标 A 标记)。

一般来说, 由于靶物质的阻止, 随入射深度的增加, 带电粒子的能量和粒子束强度不断减少。但是绝大多数离子停留在入射粒子在靶物质中的射程 R 附近, 从靶物质的表面到深度 R 的范围内粒子束强度变化很小。如果在射程 R 附近, 入射粒子的能量减少到 E_{th} 以下, 不再发生核反应, 可以认为粒子束强度是常数。利用模拟程序 TRIM 计算出, 3He 入射粒子能量为 8 MeV 时, 在标样 Al_2O_3 靶中的平均射程为 31.77 μm , 歧离

为 $1.3 \mu\text{m}$ 。根据高斯分布定律可得, 在 $31.77 \pm 3.9 \mu\text{m}$ 范围内有 99.7% 的入射粒子停留下来, 而入射粒子到达这个深度的时候, 能量已经降至 $^{16}\text{O} (^3\text{He}, \text{p}) ^{18}\text{F}$ 核反应的反应阈 2 MeV 以下了。在能够进行核反应的深度范围内, 入射粒子的强度变化小于 0.2%。所以, 我们可以认为入射粒子强度 I 不变。

分别对标准厚样品 Al_2O_3 和待测薄样品 ^{10}B 应用公式 (1), (2), 得到

$$N_{SA} = \frac{(1 - e^{-\lambda_0}) I_0 \int_{E_{\text{th}}}^{E_0} \sigma_0(E) \frac{dE}{(dE/dx)_E}}{\sigma_A I_A (1 - e^{-\lambda_A})} \times \frac{A_A}{A_0} \times N_{V0}$$

式中: t_0 ——标准厚样品 Al_2O_3 的照射时间 (即活化时间);

t_A ——待测薄样品 ^{10}B 的照射时间。

为方便计算将积分运算变为求和运算, 得到样品 ^{10}B 的放射性活度应为,

$$N_{SA} = \frac{I_0 (1 - e^{-\lambda_0}) \sum_i \left[\sigma_{0i}(E) \frac{\Delta E_i}{(dE/dx)_i} \right]}{\sigma_A I_A (1 - e^{-\lambda_A})} \times \frac{A_A}{A_0} \times N_{V0} \quad (3)$$

2 实验条件和布局

利用核反应 $^{16}\text{O} (^3\text{He}, \text{p}) ^{18}\text{F}$, 在北京大学重离子物理研究所 4.5 MV 静电加速器产生 8 MeV 的 ^3He 粒子 (电荷态为 2), 分别轰击标准厚样品 Al_2O_3 (3.852 g/cm^3) 和待测薄样品 ^{10}B ($150 \mu\text{g/cm}^2$) 中的核素 ^{16}O , 产生放射性核素 ^{18}F 。

入射 ^3He 粒子能量为 8 MeV, 与 ^{16}O 发生反应的反应截面比较大 (约为 350 mb)。 ^3He 粒子经过准直系统照射到样品上, 保证了束斑大小固定。为了准确收集束流, 在靶室上加了一 450 V 的负高压, 减少了二次电子发射的影响。对两次照射的束流积分和照射时间进行了记录, 从而得到束流强度。反应产物 ^{18}F 的半衰期为 1.83 h, 活化的时间取 2 至 3 个半衰期时, 放射性活度达到饱和值的 75%~88%。由于待测薄样品 ^{10}B 含氧量低, 活化照射时间为 14640 s, 束流积分为 775 μC ; 而标准厚样品 Al_2O_3 是厚靶, 并且含氧量高, 照射时间为 270 s, 束流积分为 11.2 μC 。

反应产物 ^{18}F 是 β^+ 放射性核素, 半衰期为 1.83 h, 长短适中, 易于测量。 ^{18}F 发射的正电子与负电子湮灭, 产生两个方向相反的 γ 射线, 利用高纯锗探测器来探测 γ 射线。为了提高探测效率, 测量

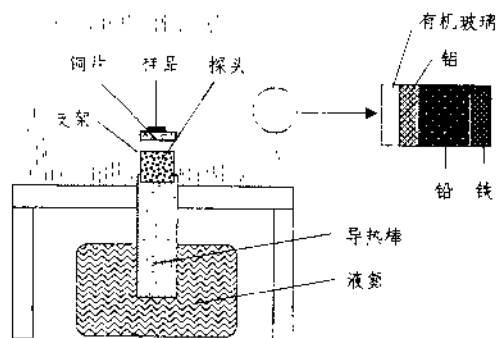


图 1 高纯锗探测器示意图

时在样品和探测器之间放一片铜片作为湮灭片。为了降低本底,采用复合屏蔽材料(见图 1)。高纯锗探测器有能量分辨率高,利于甄别杂质反应的特点。利用 ^{60}Co 和 ^{137}Cs 等放射源对探测器进行能量刻度,确定了能量为 0.511 MeV 的 γ 射线的峰位置。由于采取相同的几何结构进行比较测量,样品和标样的探测效率相同,避免了对探测效率的绝对测量,减少了误差。测量本底发现,能量为 0.511 MeV 的 γ 射线所对应的峰内本底非常低(100 s 的计数小于 1 个)。

3 实验结果与分析

我们把两个样品的衰变计数率对时间做成单对数衰变图。从图 2、图 3 可以看出,无论标样 Al_2O_3 还是样品 ^{10}B 的数据都分为两段斜率不同的直线,表明有两种不同的衰变发生。通过计算直线的斜率,上半段直线代表的衰变半衰期为 20.5 min,对应放射性核素 ^{11}C ;下半段直线代表的衰变半衰期为 1.83 h,对应的是本实验需要的 ^{18}F 的核衰变。 ^{11}C 是由核反应 $^{12}\text{C}(^3\text{He}, \alpha)^{11}\text{C}$ 产生的,而 ^{12}C 是因为靶表面吸附的 CO_2 和加速腔内游离的 ^{12}C 被打入靶样品中造成的。因为标准样品 Al_2O_3 是厚靶,含氧量高,并且活化照射时间短,所以 ^{11}C 的干扰比样品 ^{10}B 小一些。

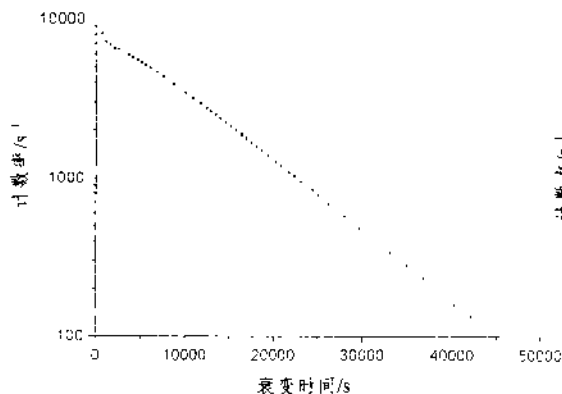


图 2 标样 Al_2O_3 的实验数据对数图

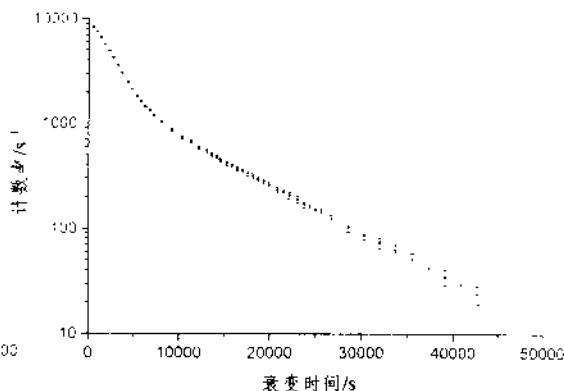


图 3 样品 ^{10}B 的实验数据对数图

由于 ^{11}C 的半衰期比 ^{18}F 的半衰期短很多,经过足够长的时间后, ^{11}C 引起的计数就可以忽略。我们取 12 000 s 以后(约 2 个 ^{18}F 的半衰期)的数据来确定 ^{18}F 的活度,得到 ^{10}B 靶照射结束时活度 $A_A = 2059 \text{ Bq}$, Al_2O_3 靶照射结束时活度 $A_0 = 9997 \text{ Bq}$ 。

利用 Trim 程序计算 Al_2O_3 对不同能量 ^3He 粒子的阻止本领 $(dE/dx)_E$ 和对已知 $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ 反应截面数据拟合得到的激发函数 $\sigma(E)$ 见图 4。因为此反应的截面数据较多,所以在实验所需的能量范围内可以满足测量要求。

对本实验影响最大的因素是 $^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$ 反应截面的数据误差(大约为 5%),其次是入射粒子束的相对强度误差(大约为 2%),样品称重误差、标准样品氧含量误差、

阻止本领 $(dE/dx)_E$ 误差和记数统计误差则较小(四者之和小于1%)。虽然 γ 射线在厚标样中有自吸收,但是由于 ^3He 粒子进入标样中的深度很小(大约 $30\text{ }\mu\text{m}$),所以自吸收的影响很小。考虑到其他干扰因素,样品硼薄膜中氧原子浓度误差约为9%。

由公式(3)算出样品 ^{10}B 中含氧原子面密度 N_{SA} 为 $8.3\pm 0.8 (\times 10^{17}\text{ cm}^{-2})$,折合为原子浓度为 $9.4\pm 0.9\%$ 。我们还对样品进行了俄歇电子谱分析,这是一种半定量的方法,一般进行定量分析误差较大(10%~40%)。俄歇电子谱分析得到样品 ^{10}B 含氧量为 $8\pm 3\%$,在误差范围内与本实验结果符合。

4 结束语

因为硼是核工程和核技术应用中的重要材料,所以测量硼中的含氧量具有重要意义。我们不仅应用CPAA法测量了样品硼薄膜中氧含量,还解决了实验中经常出现的待测样品和标准样品厚度不一致的问题,完善了进行元素含量分析的实验方法。

本工作得到北京大学重离子物理研究所4.5 MV静电加速器运行人员的大力支持,在此表示感谢。

参 考 文 献

- 1 卢希庭. 原子核物理, 北京: 原子能出版社, 1981年
- 2 复旦大学、清华大学、北京大学合编. 原子核物理实验方法, 北京: 原子能出版社, 1985年
- 3 A.W 赞德纳. 表面分析方法, 北京: 国防工业出版社, 1984

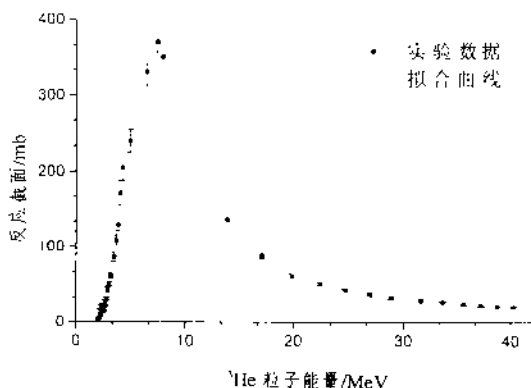


图4 核反应 $^{16}\text{O}(^3\text{He},\text{p})^{18}\text{F}$ 的激发函数

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

This report is subject to copyright. All rights are reserved. Submission of a report for publication implies the transfer of the exclusive publication right from the author(s) to the publisher. No part of this publication, except abstract, may be reproduced, stored in data banks or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher, China Nuclear Information Centre, and/or Atomic Energy Press. Violations fall under the prosecution act of the Copyright Law of China. The China Nuclear Information Centre and Atomic Energy Press do not accept any responsibility for loss or damage arising from the use of information contained in any of its reports or in any communication about its test or investigations.

ISBN 7-5022-2065-8



9 787502 220655 >