

## $^{119}\text{Sb}$ 穆斯堡尔源制备

张桂林 胡妙君 刘联璠 胡文祥 周慰因

(中国科学院上海原子核研究所)

关键词  $^{119}\text{Sb}$  穆斯堡尔源, 化学分离, 电镀, 扩散, 迴旋加速器。

### 一、引言

离子注入穆斯堡尔谱学是新近发展起来的研究离子掺杂时引起的晶格微观结构变化的重要手段。用同位素分离器进行放射性离子注入是离子注入穆斯堡尔谱学中最为行之有效的办法, 因为它的注入剂量与通常离子注入相比可大大降低。问题是希望能找到满足研究对象的合适的放射性离子源, 要求它的无反冲因子大, 在同位素分离器上离子源的引出效率高, 考虑到防止对分离器的过分沾污和人身防护, 又要求放射性半衰期适当的短。目前国际上一般采用的离子注入穆斯堡尔核有  $^{119}\text{Sb}$ 、 $^{119\text{m}}\text{Sn}$ 、 $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{129}\text{Te}$ 、 $^{57}\text{Co}$  和  $^{83}\text{Kr}$  等<sup>[1-4]</sup>, 其中  $^{119}\text{Sb}$  尤为丹麦奥斯大学和荷兰格罗宁根大学所经常采用。它们分别采用  $(\alpha, n)$ ,  $(\alpha, 2n)$ <sup>[3]</sup>和  $(p, 3n)$ <sup>[5]</sup>反应获取  $^{119}\text{Sb}$ 。

$^{119}\text{Sb}$ 的半衰期为 38 h, 经电子俘获衰变到  $^{119\text{m}}\text{Sn}$ ; 在常温下, 在金属和半导体中具有合适的无反冲因子。本文介绍用迴旋加速器提供的 32 MeV 的  $\alpha$  束, 轰击天然锡靶, 通过  $(\alpha, xn)$ 反应( $x < 4$ )生产  $^{119}\text{Te}$ , 然后通过化学分离获得  $^{119}\text{Sb}$ , 再分别通过电镀、热扩散和化学处理制成  $\text{Sb}(\text{Sb})$ 和  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  穆斯堡尔源的方法。

### 二、制备过程

#### 1. 靶的设计

将纯度为 99.999% 的天然锡融熔在银衬底上, 厚度为 200 mg/cm<sup>2</sup>。银衬底直接贴在水冷却铜靶室上。束流强度为 5  $\mu\text{A}$ , 用束流积分仪进行束流监督。

对轰击过的靶子进行能谱分析, 32 MeV 的  $\alpha$  粒子和天然锡反应的主要产物为  $^{119}\text{Te}$ , 其次有短寿命的  $^{117}\text{Te}$  和长寿命的  $^{121}\text{Te}$ 。轰击靶经三天放射性冷却后进行化学分离。用  $\text{Si}(\text{Li})$ 探测器测得分离前的能谱示于图 1 a。

#### 2. 化学分离

辐照产物  $^{119}\text{Te}$ , 其中包括  $^{119\text{s}}\text{Te}$  ( $T_{1/2}=16$  h) 和  $^{119\text{m}}\text{Te}$  ( $T_{1/2}=4.7$  d) 二种成份, 它们分别经  $^{119\text{s}}\text{Te} \xrightarrow{\beta^+, \text{EC}} ^{119}\text{Sb}$  和  $^{119\text{m}}\text{Te} \xrightarrow{\text{EC}} ^{119}\text{Sb}$  的衰变。由上可知, 分离  $\text{Sb}$  须分二步, 首先让  $\text{Te}$  从  $\text{Ag}$  和  $\text{Sn}$  组成的靶中分离出来, 然后再把衰变的子体  $\text{Sb}$  从  $\text{Te}$  中分离出来。

把经轰击的靶置于热浓  $\text{HCl}$  中, 使靶子溶解, 将其中带有放射性  $\text{Te}$  的黑色残渣析出, 但在此残渣中尚沾有  $\text{Sn}$  元素。为尽可能多地收集纯的  $\text{Te}$  单体, 可重复进行以下的

步骤：在分离出的残渣中加入数滴 HNO<sub>3</sub> 和数毫克载体 Te (纯度为 99.999%)，使其再次溶解，然后反复加 HCl，以赶走 HNO<sub>3</sub>，最后加入 4 mol/l HCl 浸出，再充 SO<sub>2</sub> 使 Te 还原，让黑色 Te 残渣重新析出。

将 Te 搁置四天，再提纯生长出来的 Sb。分离过程与上述分离 Sn 的过程相似，不同的仅是加入数毫克 Sb 载体，把经 SO<sub>2</sub> 还原的 Te 从溶液中提取出来，然后再用红外灯加热蒸发含有 <sup>119</sup>Sb 的溶液，使其达到制备穆斯堡尔源所要求的体积为止，测得的能谱示于图 1 b。

对已分离出 <sup>119</sup>Sb 的 Te，再经 4 天衰变后，可再进行提取 <sup>119</sup>Sb 的分离过程。总的 <sup>119</sup>Sb 的提取率较难估算。

### 3. Sb (Sb)穆斯堡尔源的制备

(1) 电镀 把高纯度的 Sb 粉 (纯度为 99.999%)，在氢气氛中融熔在铜的浅槽中，厚度约 0.2 mm，然后安置在如图 2 所示的电镀槽中，电镀区域为 φ 5 mm 的圆。电镀液为 8% 浓度的稀硫酸。它与电镀 <sup>57</sup>Co 所使用的碱性溶液截然不同。工作电流为 200 mA。电镀温度约 50°C，持续时间 10 h。

(2) 高温扩散 将电镀好的样品置于含氢气氛的高温退火炉中，升温至 535°C，保温 30 min，然后缓慢冷却。

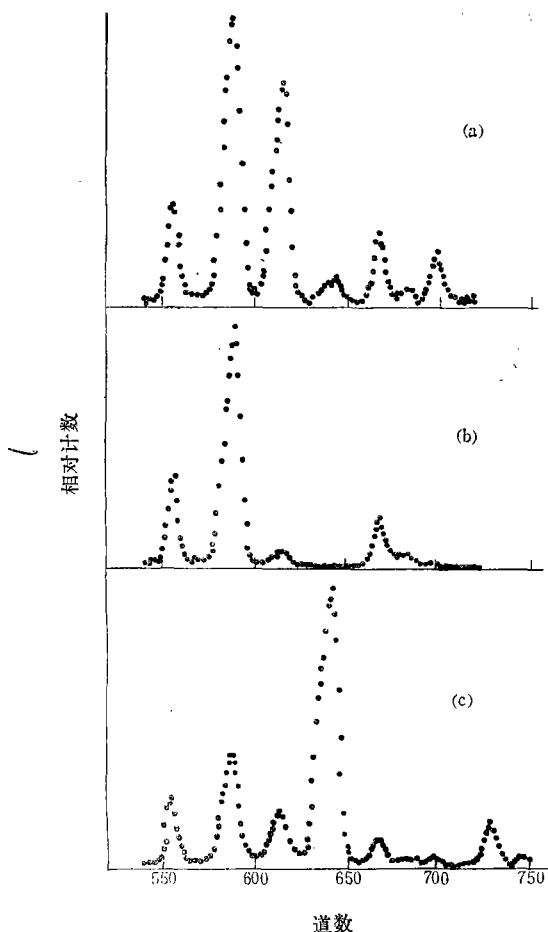


图 1 32 MeV α 粒子轰击天然锡靶分离前 (a)、后 (b) 的能谱，以及 Ca<sup>119m</sup>SnO<sub>3</sub> 源的能谱 (c)。

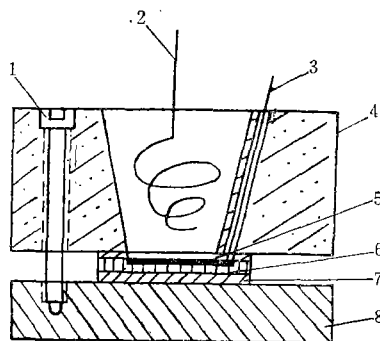


图 2 电镀槽示意图

- 1—螺钉；2—白金丝 (φ 1 mm)；3—磷铜丝 (φ 0.1)；4—聚四氟乙烯；5—Sb；6—铜；7—特氟隆薄膜；8—有机玻璃。

#### 4. $\text{Sb}_2\text{O}_3$ 穆斯堡尔源的制备

在第二次分离所得的  $^{119}\text{SbCl}_3$  溶液中, 加入含数毫克 Sb (载体) 的  $\text{SbCl}_3$  溶液数滴, 然后蒸发至干后, 再加入数毫升的  $\text{H}_2\text{O}$ , 加热后水解得到白色  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  沉淀。经离心分离后依次用  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_4\text{OH}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  清洗多次, 最后将  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  移至滤纸上, 用红外灯烘干后即成为  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  穆斯堡尔源。其中稳定同位素 Sb 占绝大部分。 $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$  和  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  源强各约为  $3.7 \times 10^6 \text{Bq}$ 。

### 三、实验结果和讨论

用我所自制的穆斯堡尔谱仪测得  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$  和  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  源的穆斯堡尔谱和它们的洛仑兹拟合曲线均示于图 3, 其线宽、化学移和透射百分比值皆列于表 1。测量用的吸收体为  $\text{SnO}_2$ ; 因此谱线既采用单线拟合, 也采用带有  $0.50(2) \text{mm/s}^{[6]}$  的  $\text{SnO}_2$  电四极分裂的双线进行拟合。所用的探测器为  $\text{NaI}(\text{Tl})$ , 在源和吸收体间放置了  $0.04 \text{mm}$  厚的 Pd 箔, 以消除  $25.3 \text{keV}$  (图 1 左第一峰) 的 Sn 的特征 X 射线。

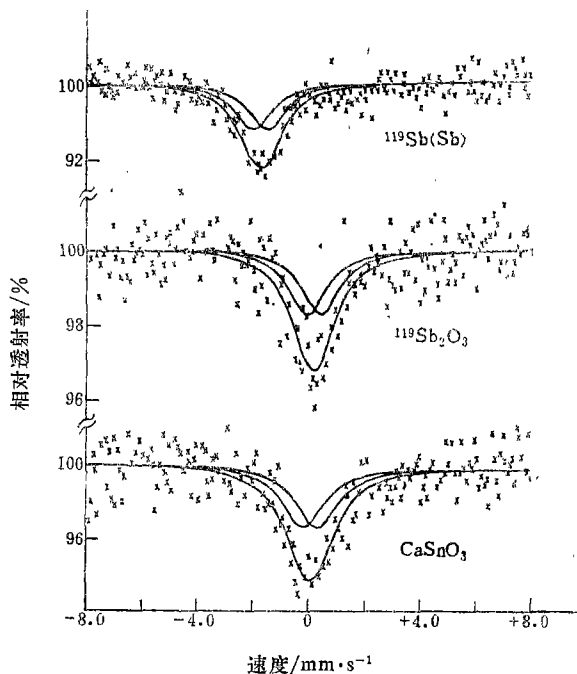


图 3  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$ ,  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  和  $\text{Ca}^{119}\text{SnO}_3$  的穆斯堡尔谱和它们的理论拟合曲线

表 1  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$ ,  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  和  $\text{Ca}^{119}\text{SnO}_3$  穆斯堡尔参数

| 穆斯堡尔源   |      | $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$ | $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$ | $\text{Ca}^{119}\text{SnO}_3$ |
|---|------|------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| $\frac{1}{2}$ 线宽/ $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ | 单线拟合 | 0.87(3)                      | 0.89(8)                       | 0.99(5)                       |
|   | 双线拟合 | 0.77(4)                      | 0.82(3)                       | 0.90(4)                       |
| 化学移/ $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$              |      | -1.79(6)                     | 0.097(70)                     | 0                             |
| 透射百分比/%   |      | 9.3                          | 3.3                           | 6.2                           |

表 1 中还列出了从英国 Amersham 进口的  $\text{Ca}^{119\text{m}}\text{SnO}_3$  源测得的结果, 测量条件均相同。由表可见,  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$  是一个相当好的穆斯堡尔源, 不仅线宽较窄, 且透射百分比也较大。虽然 Sb 的德拜温度仅为  $\Theta = 210^\circ\text{K}$ <sup>[7]</sup>, 低于  $\text{CaSnO}_3$  的值; 但本实验的结果, 前者的透射百分比高于后者, 这表明本工作的化学分离步骤成功地把 Te 从 Sb 中分离了出来, 这也可从图 1 的能谱中得到证实。经化学分离后, 26.4 keV (图 1 左第三峰) 的 Sb 的特征 X 射线强度大大减少, 此外它也没有如  $\text{Ca}^{119\text{m}}\text{SnO}_3$  源中出现的 Te 的 X 特征线。

另外, 从得到较高的透射率还表明, 对放射性  $^{119}\text{Sb}$  扩散进入 Sb 晶格的温度和保温时间是合适的。选择扩散温度 ( $T_d$ ) 是参照选择  $^{57}\text{Co}$  扩散进入 Cu 晶格的温度, 即根据  $T_d = 0.85 T_m$  确定的,  $T_m$  为熔点温度。

以上的工作是国内首次尝试, 它为今后利用迴旋加速器制备同位素分离器所需要的短寿命的放射性离子源找到合适的途径, 也为制备 Sb 的其它穆斯堡尔源积累了经验。

本工作得到中国科学院基金局的资助。

### 参 考 文 献

- [1] de Waard, H., Proc. Int. Conf., On the Applications of the Mössbauer Effect, Jaipur, India, 1981, 5.
- [2] Niesen, L., *Hyp. Int.*, **13**, 65 (1983).
- [3] Weyer, G. et al., *Phys. Rev.*, **B 21**, 20 (1980).
- [4] 张桂林, 物理进展, **5**, 535 (1985)。
- [5] de Waard, H., Hafemeister, P. W., Niesen, L., and Pleiter, F., *Phys. Rev.*, **24 B**, 1274 (1981).
- [6] 张桂林等, 原子核物理, (2), 59 (1980)。
- [7] Kittel, C., Introduction to solid state Physics, John Wiley & Sons Inc., 1976.

(编辑部收到日期: 1986 年 3 月 10 日)

## THE PREPARATION OF THE $^{119}\text{Sb}$ MÖSSBAUER SOURCE

ZHANG GUILIN    HU MIAOJUN  
LIU LIANFAN    HU WENXIANG    ZHOU WEINAN

(Institute of Nuclear Research, Academia Sinica, Shanghai)

### ABSTRACT

The paper introduces how to prepare the Mössbauer source of  $^{119}\text{Sb}$  by irradiating natural Sn metal with 32MeV  $\alpha$ -particles from cyclotron using  $(\alpha, xn)$  reaction,  $x < 4$ . After  $^{119}\text{Sb}$  was chemically separated from Te, electroplating, diffusion and chemical procedure were used for making  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$  and  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$  Mössbauer source, respectively. The isomer shifts relative to  $\text{SnO}_2$  are  $-1.79(6)\text{mm/s}$  and  $0.097(70)\text{mm/s}$  for  $^{119}\text{Sb}(\text{Sb})$  and  $^{119}\text{Sb}_2\text{O}_3$ , respectively.

**Key words** Chemical separation, Electroplate, Diffusion cyclotron,  $^{119}\text{Sb}$  Mössbauer.