

# 利用低能质子束产生高强度放射性束流\*

郭冰<sup>1;1)</sup> 柳卫平<sup>1</sup> Trinczek M<sup>2</sup> Lapi S<sup>3</sup> Ames F<sup>2</sup> Buckley K R<sup>2</sup>  
D'Auria J M<sup>3</sup> Jayamanna K<sup>2</sup> Ruiz C<sup>2,3</sup> Ruth T J<sup>2</sup>

1 (中国原子能科学研究院核物理研究所 北京 102413)

2 (TRIUMF, Vancouver, B.C., CANADA, V6T 2A3)

3 (Simon Fraser University, Burnaby, B.C., CANADA, V5A 1S6)

**摘要** 加拿大 TRIUMF 实验室利用  $^{11}\text{C}$  成功验证了一种产生高强度 ( $\sim 10^8$  ions/s) 放射性束流的方法. 该方法不同于普通在线同位素分离方法, 它利用了 13MeV 的低能强流质子束, 可以产生一系列核天体物理实验感兴趣的高强度放射性束流.

**关键词** 放射性束流 在线同位素分离 炮弹碎裂 束流强度

## 1 引言

目前, 放射性重离子束流已经广泛应用于诸如核天体物理, 核结构等许多研究领域, 这些放射性核素对于核医学也有重要意义. 加拿大温哥华 TRIUMF 实验室的放射性束流设备 (ISAC) 已经成功地产生了一些上述领域感兴趣的放射性束流<sup>[1, 2]</sup>.

当前国际上各大实验室产生放射性束流的方法主要有两种, 即在线同位素分离 (ISOL) 型和炮弹碎裂 (PF) 型. 前者是利用中高能强流轻粒子轰击厚靶, 引起靶核散裂、裂变或碎裂, 反应产物在靶核高温 ( $\sim 1500^\circ\text{C}$ ) 下扩散进离子源并离子化, 然后用在线同位素分离器选出所需放射性核束, 最后经过后加速输送到实验终端. 这种方法的主要优点是束流强度大、纯度高和能量分辨好, 而且能量由后加速器决定, 与产生放射性束的初始能量无关, 在核结构 ( $\sim 10\text{MeV/u}$ ) 和核天体物理 ( $< 1\text{MeV/u}$ ) 感兴趣能区的研究方面有着重要作用. 缺点是分离时间长, 因而不能提供寿命较短 (秒级以下) 的放射性核束. 后者是利用中高能重离子束流轰击薄靶引起弹核碎裂, 用电磁装置收集放射性碎片并加以纯化, 形成放射性束. 它的主要优点是可以提供寿命较短的放射性核束, 适用于中高能极端远离  $\beta$  稳定线的放射性核束物理的研究. 缺点是束

流强度较低、纯度较差和动量分散大. 新一代的 PF 型装置将产生的束流注入冷却储存环, 改善了束流的能散度和发射度, 经加速或减速得到适当的束流能量, 并采用循环打内靶的方法提高实验亮度 (流强与靶厚的乘积). 这两种方法各有其优缺点, 能够产生品种和能区互补的放射性束流, 并应用于不同的实验.

表 1 TRIUMF 实验室已批准的一些实验, 以及要求的束流强度及其半衰期与产生反应

实验批准号	束流	半衰期	产生反应	最优强度/ (ions/s)	最低强度/ (ions/s)
983	$^{11}\text{C}$	20.4min	$^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$	$10^{8,9}$	$5 \times 10^7$
924	$^{14}\text{O}$	70.6s	$^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$	$10^6$	$5 \times 10^5$
813	$^{15}\text{O}$	122.2s	$^{15}\text{N}(p,n)^{15}\text{O}$	$10^{11}$	$10^{10}$
900	$^{15}\text{O}$	122.2s	$^{15}\text{N}(p,n)^{15}\text{O}$	$10^9$	$10^8$
805	$^{13}\text{N}$	9.97min	$^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$	$10^9$	$10^8$
946	$^{17}\text{F}$	64.5s	$^{20}\text{Ne}(p,\alpha)^{17}\text{F}$	$10^9$	$10^8$
811	$^{19}\text{Ne}$	17.2s	$^{19}\text{F}(p,n)^{19}\text{Ne}$	$10^8$	$10^7$

TRIUMF 实验室的放射性束流设备 ISAC 使用的是在线同位素分离方法, 该设备利用高能 (500MeV) 强流质子束已经成功地产生了  $^{8,9,11}\text{Li}$ ,  $^{21}\text{Na}$  和  $^{74}\text{Rb}$  等高强度放射性束流. 但是由于  $^{11}\text{C}$ ,  $^{13}\text{N}$ ,  $^{14,15}\text{O}$ ,  $^{19}\text{Ne}$  等核素不同的化学性质, 它们在靶核高温下扩散进离子源时有较大损失, 因此难以产生实验要求的这些放射性核素的高强度 ( $\sim 10^8$  ions/s) 束流. 表 1 列出了

2005 - 10 - 24 收稿

\* 国家重点基础研究发展规划项目 (G200077400, 2003CB716704) 和国家自然科学基金 (10025524, 10375096, 10575137) 资助

1) E-mail: guobing@iris.ciae.ac.cn

TRIUMF 实验室已经批准的一些实验, 以及要求的束流强度及其半衰期、产生反应.

最近, Berkeley 实验室提出了一种利用低能质子产生放射性束流的新方法, 该方法是多年来核医学中产生类似放射性同位素方法的延伸. 利用该方法, Berkeley 实验室产生了较高强度的  $^{11}\text{C}$  和  $^{15}\text{O}$  束流<sup>[3, 4]</sup>. 本工作是利用 TRIUMF 实验室放射性束流设备 ISAC 研究这种新方法. 由于  $^{11}\text{C}$  半衰期较长 (20.39min) 以及已经批准的实验 E983 的束流要求<sup>1)</sup>, 因此它被选择作为验证该方法的第一种离子. 该方法的成功将会使 TRIUMF 实验室拥有两种产生放射性束流的方法, 能够产生更多种类的高强度放射性束流, 也将会使得该实验室拥有同时给两个实验供束的能力, 缓解当前繁重的束流压力.

## 2 实验

一般说来, 该方法主要包括以下5个过程: 低能质子束 (13MeV) 轰击气体靶产生感兴趣的反应产物 (以分子形式), 反应产物的快速纯化, 转移到在线 ISAC 离子源或者离线离子源 OLIS<sup>[5]</sup> 离子化, 然后经过加速传输到实验终端.

来自 TR13 回旋加速器的 13MeV 的低能质子束轰击  $^{14}\text{N}$  气体靶产生  $^{11}\text{C}$ , 其产生反应是  $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$ . 为了形成  $^{11}\text{CO}_2$  分子, 靶气中包括 0.5% 的氧气. 产生的  $^{11}\text{CO}_2$  样本被传输到一个液氮温度 ( $-196^\circ\text{C}$ ) 的不锈钢过滤器中. 在该温度下, 产生的  $^{11}\text{CO}_2$  样本凝结成固态, 然后用氦气排出剩余的靶气, 进而隔离样本并加热到室温.  $^{11}\text{CO}_2$  分子产生和纯化系统示意图如图 1 所示.

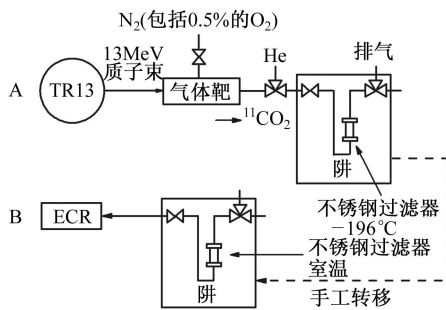


图 1  $^{11}\text{CO}_2$  分子产生和纯化系统示意图

经过纯化分离后, 装有  $^{11}\text{CO}_2$  样本的不锈钢过滤器被手工转移到 ISAC 测试平台<sup>[6]</sup> 的 ECR 离子源<sup>[7]</sup> 供使用. ISAC 测试平台示意图如图 2. ECR 离子源用 He 作为放电支持气体, 并用一个刻度过的  $^{22}\text{Ne}$

漏孔检验离子源的性能. 然后, 将  $^{11}\text{CO}_2$  注入离子源电离并引出, 引出电压是 30kV, 准直孔直径为 4mm. 从离子源引出的离子中,  $^{11}\text{CO}^+$  占有最高份额, 因此, 用分析磁铁选取  $^{11}\text{CO}^+$  并加以纯化. 法拉第筒位于一个  $5\text{mm} \times 20\text{mm}$  的狭缝后面, 两个尺寸分别为  $76.2\text{mm} \times 76.2\text{mm}$  和  $50.8\text{mm} \times 50.8\text{mm}$  的 NaI(Tl) 探测器放在法拉第筒附近 ( $\sim 190\text{mm}$ ) 来测量活度, 感兴趣的活度来源于正电子 ( $^{11}\text{C} \beta^+$  衰变) 湮没放出的 511keV 的  $\gamma$  射线.

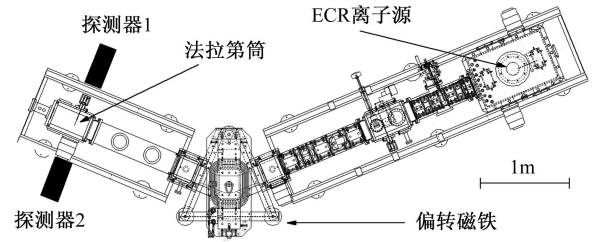


图 2 ISAC 测试平台示意图

## 3 结果

### 3.1 束流强度和 ECR 离子源电离效率的导出

束流强度和 ECR 离子源电离效率是实验中两个需要测量的量. 其中束流强度可以通过如下步骤导出.

$$N_{i+1} = F \cdot N_i + F' \cdot P_i, \quad (1)$$

式中  $N_i$  指第  $i$  个时间间隔的初始时刻未发生衰变的  $^{11}\text{C}$  的数目;  $F = e^{-dt/\tau}$  指第  $i$  个时间间隔内  $N_i$  不发生衰变的比例, 其中  $dt$  是时间间隔宽度,  $\tau$  指  $^{11}\text{C}$  的寿命;  $P_i = I_i \cdot dt$  是指在第  $i$  个时间间隔内产生的  $^{11}\text{C}$  的数目, 其中  $I_i$  是第  $i$  个时间间隔内的束流强度;  $F'$  是指第  $i$  个时间间隔内  $P_i$  不发生衰变的比例.

$$D_i = (1-F)N_i + (1-F')P_i, \quad (2)$$

$$D_{i+1} = (1-F)N_{i+1} + (1-F')P_{i+1}, \quad (3)$$

式中  $D_i$  和  $D_{i+1}$  分别指第  $i$  和第  $i+1$  个时间间隔内发生的衰变数. 解上述 3 个方程, 消去  $N_i$ , 可得

$$D_{i+1} - F \cdot D_i = (1-F')P_{i+1} + [(1-F)F' - (1-F')F]P_i. \quad (4)$$

假设宽度为  $dt$  的时间间隔内  $I_i = I_{i+1}$ , 即  $P_i = P_{i+1}$ , 可

1) Liu W P. TRIUMF EEC experiment proposal number E983

得到束流强度的表达式:

$$I(t) = \frac{D(t) - D(t-dt) \cdot e^{-dt/\tau}}{dt \cdot (1 - e^{-dt/\tau})} = \frac{N_d(t) - N_d(t-dt) \cdot e^{-dt/\tau}}{Y \cdot \varepsilon_{\text{det}} \cdot dt \cdot (1 - e^{-dt/\tau})} = \frac{I'}{\varepsilon_{\text{det}}}, \quad (5)$$

式中  $N_d(t)$  是指在时间间隔  $t-t+dt$  内探测器探测到的  $\gamma$  计数,  $\gamma$  射线的产额  $Y$  为  $2 \times 0.9976 = 1.9952$  (一个正电子湮没产生 2 个  $\gamma$ ,  $^{11}\text{C}$   $\beta^+$  衰变的分支比为 0.9976),  $\varepsilon_{\text{det}}$  是探测器的绝对效率,  $I'$  的误差可由下式给出

$$\sigma_{I'} = \frac{\sqrt{N_d(t) + N_d(t-dt) \cdot e^{-2dt/\tau}}}{Y \cdot dt \cdot (1 - e^{-dt/\tau})}. \quad (6)$$

因此, 束流强度  $I(t)$  的误差为

$$\sigma_I = I(t) \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\varepsilon_{\text{det}}}}{\varepsilon_{\text{det}}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I'}}{I'}\right)^2}. \quad (7)$$

在束流强度的导出中有一个假设, 即在宽度为  $dt$  的时间间隔内  $I_i = I_{i+1}$ . 只要  $dt$  取的足够小, 上述假设一定是一个足够好的近似. 但是从方程(6)和(7)可以看出:  $dt$  取的越小, 束流强度的误差  $\sigma_I$  就越大. 图3给出了束流强度的相对误差随不同时间间隔  $dt$  的变化关系. 可以看出: 时间间隔  $dt$  越小, 束流强度的相对误差就越大, 在  $dt$  取为 1s 的情况下, 相对误差在大部分时间范围内超过了 100%. 因此, 在束流强度的计算中  $dt$  取为 50s, 在该时间间隔内, 上述假设是一个较好的近似.

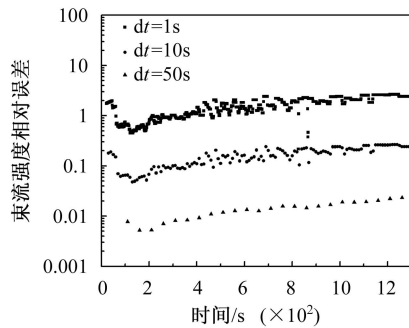


图3 束流强度的相对误差随不同时间间隔的变化

ECR 离子源电离效率可利用下式得出

$$\varepsilon_{\text{ECR}} = \frac{A(t)}{A_0 e^{-t/\tau}} = \frac{r(t)}{\varepsilon_{\text{det}} Y A_0 e^{-t/\tau}}, \quad (8)$$

式中  $A(t)$  和  $A_0$  分别指法拉第筒中的活度与样本的初始活度 ( $t=0$ ),  $r(t)$  是指探测器的计数率.

### 3.2 第一轮实验

在 第一轮 实验 中, 在  $t=0$  时刻, 活度为  $(15.0 \pm 1.5)\text{mCi}$  的  $^{11}\text{C}$  样本开始注入 ECR 离子源, 该活度的样本用  $20\mu\text{A}$  的质子束在小于 1min 的时间内即

可产生. 当时间等于 1300s (如图 4 竖线示出) 的时候, 为了观测衰变, 停止向 ECR 源注入活度. 实验测量的探测器的计数率如图 4 所示, 在表征 1300s 时刻竖线的左侧数据是活度的积累, 其右侧是衰变. 图中数据点的间断仅仅是由于使用了两个不同的获取文件.

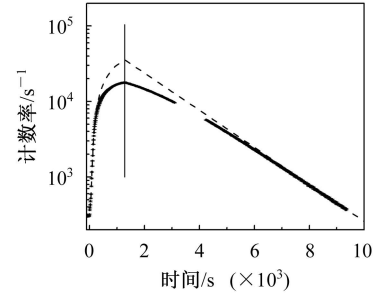


图4 第一轮实验测量的总计数率随时间的变化

在本轮实验中, 由于瞬時計数率太高, 测量到的计数率不同程度地小于真实计数率. 为了弥补该损失, 利用测量的数据计算了真实计数率和实验测量的计数率的比例系数  $R$ . 在实验数据的末端 ( $t \approx 9300\text{s}$ ), 计数率相对较低, 因此利用该点数据和  $^{11}\text{C}$  的半衰期 (20.39min) 计算了从 1300s 到 9300s 时间范围内的真实的衰变计数率, 如图 4 中竖线右侧虚线所示. 可以看出: 当计数率较高时, 实验上探测到的衰变率明显小于真实的衰变率. 进而可以得出真实计数率和测量的计数率的比例系数  $R$  随计数率强度的变化关系, 示于图 5. 比例系数  $R$  的误差由两个因素引起, 即相应的测量计数率的误差和用来计算真实衰变计数率的末端数据的误差. 进而利用该比例系数计算了活度积累部分 (即  $t=0$  到 1300s) 的真实计数率, 如图 4 中竖线左侧虚线所示. 利用该范围内的真实计数率可以导出束流强度.

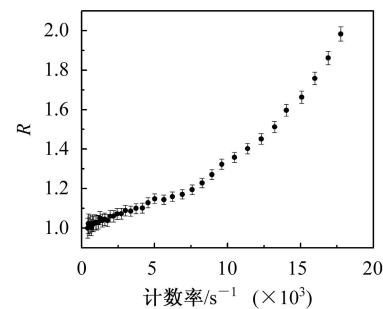


图5 真实计数率和测量的计数率的比例系数  $R$  随计数率强度的变化

利用  $^{22}\text{Na}$  ( $T_{1/2}=2.6019\text{a}$ ) 源刻度探测器的绝对效率, 得到两个探测器的总效率为  $(3.513 \pm 0.007) \times 10^{-3}$ . 对于本轮数据, 束流强度的计算由方程(5)和(7)变为

下式,

$$I(t) = \frac{D(t) - D(t-dt) \cdot e^{-dt/\tau}}{dt \cdot (1 - e^{-dt/\tau})} = R \frac{N_d(t) - N_d(t-dt) \cdot e^{-dt/\tau}}{Y \cdot \varepsilon_{\text{det}} \cdot dt \cdot (1 - e^{-dt/\tau})} = R \frac{I'}{\varepsilon_{\text{det}}}, \quad (9)$$

$$\sigma_I = I(t) \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_R}{R}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I'}}{I'}\right)^2}. \quad (10)$$

导出的束流强度示于图6, 进而导出平均束流强度为  $(9.9 \pm 0.4) \times 10^6$  ions/s.

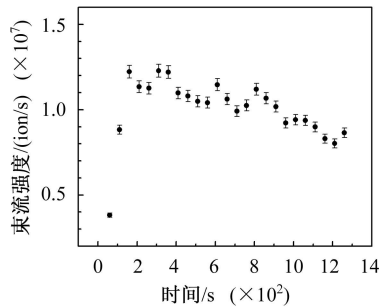


图6 第一轮实验束流强度随时间的变化

ECR源的效率可利用方程(8)计算得出, 样本初始活度为  $A_0 = (15.0 \pm 1.5) \text{ mCi} = (5.55 \pm 0.56) \times 10^8 \text{ Bq}$ . 本轮实验中, 在1300s的时候, 为了观测衰变, 停止向ECR源注入活度, 因此仅能给出ECR源电离效率的下限  $\varepsilon_{\text{ECR}} \geq (1.9 \pm 0.2)\%$ .

### 3.3 第二轮实验

第二轮实验的目的是检验这种束流产生方法的可重复性. 在  $t=0$  时刻, 活度为  $(37.0 \pm 3.7) \text{ mCi}$  (需  $20 \mu\text{A}$  的质子束照射大约2min) 的  $^{11}\text{C}$  样本开始注入ECR离子源. 与第一轮不同的是, 本轮中为了测量确定的ECR源效率,  $^{11}\text{C}$  样本被完全注入ECR离子源. 为了减少高计数率引起的堆积效应, 在两个探测器的前面分别放置两块铅砖来降低计数率. 新的总探测效率刻度为  $(1.22 \pm 0.02) \times 10^{-3}$ .

图7示出了本轮实验总计数率随时间的变化, 图中虚线为根据末端实验数据计算的真正衰变计数率. 可以看出在本轮实验中基本上消除了高计数率引起的堆积效应, 所以不需要对计数率进行修正, 因此, 利用方程(5)和(7)可以计算得出第二轮的束流强度, 结果示于图8. 进而导出平均束流强度为  $(3.9 \pm 0.3) \times 10^6$  ions/s. 同样地, 利用方程(8)可以计算得出本轮中ECR源的效率,  $\varepsilon_{\text{ECR}} = (0.72 \pm 0.07)\%$ .

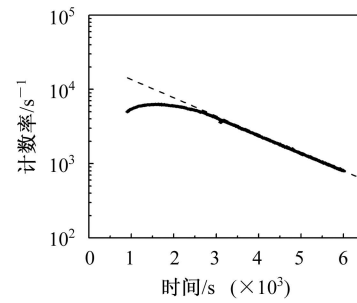


图7 第二轮实验测量的总计数率随时间的变化

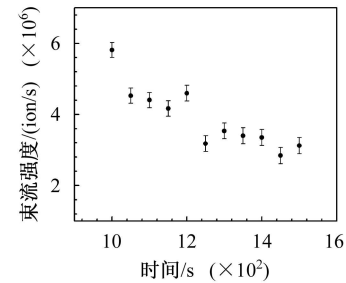


图8 第二轮实验束流强度随时间的变化

### 3.4 实验结果总结

表2总结了两轮实验结果. 不同的ECR源效率是由于两轮实验中源的运行条件不同. 由于目前实验中注入离子源的样本量极少, 因此高强度的  $^{11}\text{C}$  束流只能持续几十分钟, 更多数量  $^{11}\text{C}$  样本的连续注入将会大大延长高强度束流的持续时间.

表2 两轮  $^{11}\text{C}$  实验结果总结

实验轮	初始样本活度/(mCi)	束流强度/(ions/s)	ECR源电离效率
1	$15.0 \pm 1.5$	$(9.9 \pm 0.4) \times 10^6$	$\geq (1.9 \pm 0.2)\%$
2	$37.0 \pm 3.7$	$(3.9 \pm 0.3) \times 10^6$	$(0.72 \pm 0.07)\%$

利用TR13回旋加速器加速的低能强流质子束能够容易地产生活度为1 Ci (需  $50 \mu\text{A}$  的质子束照射大约20min) 的  $^{11}\text{C}$  样本. 根据目前实验结果可以得知: 使用该活度的样本能够产生强度大约为  $4 \times 10^8$  ions/s 的  $^{11}\text{C}$  束流, 能够满足已经批准的实验方案E983的要求.

## 4 结论与进一步的实验计划

本次实验表明利用该方法能够产生实验要求的高强度放射性束流, 这将使得许多已批准多年却等待束流的实验方案的实施成为可能, 也使得TRIUMF实验室拥有了同时给两个实验供束的能力.

目前实验中, 较低的离子源效率限制了更高强度束流的产生. TRIUMF实验室计划购买一个新的高效率离子源用于离线离子源设备(OLIS), 同时重新设

计一个高效率离子源用于 ISAC 的在线实验。届时将继续本实验研究, 并建造从回旋加速器到离子源的束流传输管道, 使得样本的持续注入模式成为可能, 这

将进一步提高可获得的束流强度, 延长束流的持续时间。

### 参考文献(References)

- 1 Laxdal R E. Nucl. Instrum. Methods, 2003, **B204**: 400—409
- 2 Dombisky M, Bricault P, Schmor P et al. Nucl. Instrum. Methods, 2003, **B204**: 191—196
- 3 Powell J, Joosten R, Donahue C A et al. Nucl. Instrum. Methods, 2000, **A455**: 452—459
- 4 Powell J, O'Neil J P, Cerny Joseph. Nucl. Instrum. Methods, 2003, **B204**: 440—443
- 5 Jayamanna K, Yuan D, Kuo T et al. Rev. Sci. Instrum., 1996, **67**: 1061—1063
- 6 Yuan D, Kuo T, Cojocaru G et al. Rev. Sci. Instrum., 1998, **69**: 1194—1196
- 7 Jayamanna K, Yuan D, Bishop D et al. Rev. Sci. Instrum., 2000, **71**: 946—948

## Production of Intense Radioactive Beams Using Low Energy Protons<sup>\*</sup>

GUO Bing<sup>1;1)</sup> LIU Wei-Ping<sup>1</sup> Trinczek M<sup>2</sup> Lapi S<sup>3</sup> Ames F<sup>2</sup> Buckley K R<sup>2</sup>  
D'Auria J M<sup>3</sup> Jayamanna K<sup>2</sup> Ruiz C<sup>2,3</sup> Ruth T J<sup>2</sup>

1 (China Institute of Atomic Energy, Department of Nuclear Physics, Beijing 102413, China)

2 (TRIUMF, Vancouver, B.C., CANADA, V6T 2A3)

3 (Simon Fraser University, Burnaby, B.C., CANADA, V5A 1S6)

**Abstract** An approach for the production of intense ( $\sim 10^8$  ions/s) radioactive ion beams, which differs from the standard ISOL (Isotope Separation On-Line) technique, has been demonstrated successfully using  $^{11}\text{C}$  at the TRIUMF laboratory of Canada. By using this approach, the low energy (13MeV) protons can be utilized to produce a range of radioisotopes of interest to the nuclear astrophysics research programs.

**Key words** radioactive ion beam, isotope separation on line, projectile fragmentation, beam intensity

Received 24 October 2005

<sup>\*</sup>Supported by Major State Basic Research Development Program(G200077400, 2003CB716704) and National Natural Science Foundation of China(10025524, 10375096, 10575137)

1) E-mail: guobing@iris.ciae.ac.cn