

超灵敏加速器质谱学在核科学中的应用

蒋崧生

(中国原子能科学研究院 北京 102413)

摘 要 本文综述了加速器质谱学(AMS)在核科学应用中的新进展,涉及到人工长寿命核素对自然环境造成的影响、核废物贮存场所评价研究、生物医学中的放射性核示踪和天体物理与核物理:

关键词 加速器质谱学,长寿命核素,核科学.

1 引 言

本世纪70年代末发展起来的超灵敏加速器质谱学(AMS)提供了一种探测稀少核素的新方法,探测同位素丰度的灵敏度达到 10^{-12} ~ 10^{-15} ,能够测量到样品中只含有 10^5 个原子的稀少核素.这样高的灵敏度导致AMS被很快地应用于测定自然界的长寿命核素 ^{10}Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al 、 ^{41}Ca 和 ^{129}I 等. AMS也为地球科学、考古学、环境科学、核科学、材料科学和生物医学等开辟了新的研究途径.

近10多年来,AMS有其长足的进展,全世界已拥有30余台AMS实验装置.由于建立AMS装置需拥有MV量级的加速器,一般发展中国家不具备这种条件.目前,AMS实验装置主要分布在美国和西欧等发达国家,在亚洲,仅我国和日本才拥有.

本文着重介绍AMS在核科学中的应用,由于学科的交叉,其中也涉及环境科学和生物医学.

2 人造长寿命放射性核素对自然环境的影响

人类进入核时代已有40多年的历史,核武器的试验、核反应堆和核燃料加工厂所逸出的放射性对自然环境会造成什么影响?这是当今自然环境研究的一个重要方面,也是核能开发必需考虑的问题. AMS在测定环境中人类

造成的 ^{129}I 和 ^{36}Cl 核素起着重要的作用.美国能源部环境测量实验室、Lawrence Livermore国家实验室和Los Alamos国家实验室,都有相关的研究课题.

2.1 对长崎、广岛原子弹中子剂量的评价

80年代,美国和日本联合研究广岛、长崎的原子弹放射性剂量,以便评价原子弹放射性对人类的危害,以及人类抵抗放射性辐照的能力.1986年建立了最新的评价幸存者遭受原子弹辐射剂量的计算方法,简称为DS86.但是,实测的中子剂量和利用DS86的计算值之间存在较大的分歧,这种分歧在距离爆炸中心1km外尤为突出.曾怀疑测量方法存在问题,而不是计算方法.怀疑者认为:由于测量时间距原子弹爆炸已有43a了,测定中子剂量是用 ^{60}Co 和 ^{152}Eu ,它们的半衰期分别为5.27a和13.4a,相对原子弹爆炸时刻而言,测量时间已过了几个半衰期,所以测量未必可靠.

为澄清这个分歧,选择了 ^{36}Cl 和 ^{41}Ca 来测定中子剂量,它们的半衰期为十万年数量级,在40a里的衰变损失可忽略不计.用AMS测定了距原子弹爆炸中心(1.5~2)km处矿石中的 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比值,由此计算出的中子剂量与过去用 ^{60}Co 和 ^{152}Eu 的实测值相符合,而同DS86值不一致,在1405m处高出14倍,在1606m处差异更大.另外,日本和西德合作利用AMS曾测定了距爆炸中心107m处墓碑(花岗石)的 $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$ 比值,由此推算出的中

子剂量同 ^{60}Co 和 ^{152}Eu 测定的值相符合,这些实验结果同 DS86 值也相符合.由此可见,在 1km 外的实验值和 DS86 值的差异可能是由于 DS86 中子能谱的低能端较“软”造成的.

2.2 核燃料加工厂环境中的 ^{36}Cl 和 ^{129}I

核燃料工厂逸出的 ^{36}Cl 和 ^{129}I 对环境将造成长期影响. AMS 测定 ^{36}Cl 和 ^{129}I 为这方面的研究创造了良好的条件. 1982 年, Kantelo 等人研究了美国南卡罗来纳州 Savannah 河的核燃料加工厂运行 25a 后其自然环境中的 ^{129}I 分布. (1986~1988) 年间又测定了约 180km 之内水域中的 ^{36}Cl , 获得该地区 ^{36}Cl 的平均沉降率为 $(603 \pm 20) \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$, 而在核武器试验前, 该地区的估算沉降率为 $25 \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$. “核爆”和核燃料生产使得这一地区的 ^{36}Cl 增大了约 20 倍. 这样的 ^{36}Cl 放射性强度目前并没有构成对人类的危害, 但增大了这一地区的 ^{36}Cl 本底.

2.3 “地爆”试验场地下水中的 ^{129}I 和 ^{36}Cl

1976 年, 在美国 Nevada 地下核试验场进行了一次称为“Cheshive”的核试验, 深度距当地的地面约 1000m, 距地下水面约 500m, 宣布的爆炸当量为 $(2 \sim 5) \times 10^6 \text{ t}$. 80 年代中期 (1982~1987 年间), 抽出附近 100m 以外的地下水, 用 AMS 测定了水中 ^{129}I 和 ^{36}Cl 的放射性强度, 测定的放射性浓度分别为 $(6 \sim 10) \times 10^{12} \text{ n/l}$ 和 $(6 \times 10^{11}) \text{ n/l}$, 这比正常水高出了十万倍.

2.4 苏联切里纳贝尔反应堆事故逸出的 ^{129}I

1986 年 4 月, 苏联切里纳贝尔核反应堆发生爆炸, 释放出大量放射性, 对地区和全球的影响受到人们关注. Maul 等人利用 AMS 测定了同年 5 月初在欧洲和以色列收集到的降雨样品中的 ^{129}I . 测定的 ^{129}I 浓度为 $(2.6 \times 10^{10} \sim 1.2 \times 10^9) \text{ n/l}$, 比平时雨水中的含量高出了 $(10 \sim 100)$ 倍, 并从测定的 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比值估算该反应堆释放出的 ^{129}I 总量为 6×10^{24} 个原子.

3 核废物永久贮存的安全性评价

核武器的研制和核能开发已经给地球带

来了大量的核废物. 70 年代以来, 美国等已开展核废物的安全贮存研究. 核废物通常是密封或固化的包装体. 百年以后, 这些包装体可能被破损, 这时核废物将会逸出并扩散到地下水而进入到生物圈. 建立放射性核素在地质层和地下水中的迁移模式, 对核废物的永久贮存库的选址、建造和设计具有重要意义. 利用 AMS 测定裂变产物 ^{129}I 和裂变中子反应物 ^{36}Cl , 可研究放射性核素在各种地质成份中的慢过程迁移. ^{129}I 和 ^{36}Cl 还可以用作地质年代计, 测定地下水的年龄, 在一个保留着古老地下水的深坑里, 说明它和外界水源不通, 是封闭的, 这种深坑将是理想的核废物贮存库.

3.1 对模拟核废物贮存的铀矿研究

1981 年, 美国和澳大利亚签定了关于利用澳大利亚北部的 Alligator 河铀矿研究矿体周围核素迁移的合同, 作为联合研究模拟核废物安全贮存的一项实施计划. 测定 ^{129}I 和 ^{36}Cl 在矿石和地下水中的分布是这个计划的研究内容之一, 为建立计算模式提供科学的依据. 目前测定的 ^{129}I 和 ^{36}Cl 结果表明, 用现有的计算模式求得的密封系统的 ^{129}I 值比实验值约小 2 倍. 这个差异被认为是计算模式对 ^{235}U 产生的 ^{129}I 估计不足, 有必要对此进行调整.

3.2 “核爆” ^{36}Cl 对地层水运动的示踪

在低湿度和干燥地区适宜建立核废物贮存库. 美国计划在得克萨斯州 Chihuahuan 沙漠地带建造一个核废物贮存库. 这里属亚热带干燥区, 平均年降雨量 280mm. 被研究的非饱和层约 150m 厚, 最上面是 15m 砂和粘土的混合物, 下面 140m 是粘土. 在这非饱和的干燥地区, 水的气相和液相之间的平衡运动很复杂, 蒸发和渗透将同时发生. 了解长时间过程水分的运动, 对评价贮存库的放射性核素的潜在迁移有重要作用. Cl 溶解于水, 并具有良好的稳定性. 50 年代, 美国在该地区进行核试验, 当时空中含有大量的 ^{36}Cl , 并能吸附在雨水中降落到地面, 这“核爆”的 ^{36}Cl 可应用于研究水在地层中的运动. 近年来又测定了 ^{36}Cl 在这一地区地层中的含量分布, 峰值在深 0.5m

处,测量时间距“核爆”时间的间隔为 35a,推算出水向下平均渗透的速度为 1.4cm/a.在美国计划中的内瓦达和新墨西哥核废物贮存地区,同样利用了“核爆” ^{36}Cl 研究了水在地层中的渗透速度.这些数据可用于设计核废物贮存库的核素跃迁模式.

4 生物学中的核示踪

放射性核作为示踪剂,在生物学方面有广泛的应用.利用衰变计数法测定示踪核需要较多的放射性示踪剂,从而可能对生物体造成一定的危害,特别是当采用长寿命示踪剂,如 ^{14}C . AMS 在测定半衰期在 100d 以上的放射性同位素,比衰变法具有更高的灵敏度.近年来,随着 AMS 探测长寿命同位素在地学方面取得成功,AMS 在生物学方面的应用也正在展开.

4.1 对致癌物的示踪

癌是由有些分子的继承性变化引起的,这种变化使得细胞失去控制自身分裂的能力,从而引起遗传密码的突变.在化学上引起癌是由于某种化学物转化为亲电子种 (electrophilic species). 这亲电子种化学物就是致癌物,它袭击 DNA 并同它共价结合成为 DNA 加合物 (adducts). 目前已经研究了高剂量致癌物辐照下的加合物和辐照的关系,但在普通剂量水平照射下, DNA 加合物的形成、持久性和修复的动力学数据,以及这些反应同癌的关系并不清楚,因为用衰变计数法很难探测到普通剂量水平照射下的加合物. AMS 为研究正常剂量下的 DNA 加合物开辟了新的途径. 美国新建的 LLNL/UC AMS 装置已开始了这方面的研究. 他们将一种由熟肉中提取的致癌物(加入 ^{14}C 示踪剂后为 $[2-^{14}\text{C}]-\text{MeIQx}$) 输入老鼠胃里, 24h 后测定肝中 DNA 加合物,输入致癌物质为 $(5 \times 10^{-10} \sim 5 \times 10^{-3})\text{g/kg}$ 组织,测得加合物的生成量同输入 ^{14}C 剂量大小的关系. 测量的灵敏度达到 5 个加合物/ 10^{12} 核苷酸.

4.2 骨质疏松病(Osteoporosis)的研究

随着年龄增大到 30 岁,人的骨质渐渐疏

松,这同钙的吸收和代谢有密切关系,严重的会患骨质疏松病. 为了解骨质疏松病的成因,利用 AMS 测定 ^{41}Ca (半衰期为 $1 \times 10^5\text{a}$) 便可在几十年内示踪人骨中钙的新陈代谢. AMS 测定 $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$ 的灵敏度好于 10^{-10} , 比允许剂量低约百万倍,从而引入示踪剂 ^{41}Ca 的剂量可以忽略,但可对人体钙新陈代谢进行数十年的示踪. 美国 Argonne 实验室和 Purdue 大学的 AMS 实验室,目前已对狗进行了实验,注入 10^{17} 个 ^{41}Ca 原子,引入体内的剂量可忽略.

4.3 铝对人体毒性的研究

铝是地壳中丰度最高的元素之一. 通过饮食每天进入人体的铝含量约为 $(5 \sim 50)\text{mg}$. 铝对人体神经系统是否有毒性,一直是个有争议的问题. 铝在小脑的积累,可能引起老年痴呆症和肌肉萎缩、侧硬化症 (Amyotrophic Lateral Sclerosis, 即 ALS) 等. 铝的稳定同位素为 ^{27}Al , 不稳定的同位素除 ^{26}Al (半衰期 $7.15 \times 10^5\text{a}$), 其余的半衰期均很短 ($2.1\text{s} \sim 6.6\text{min}$), 不宜用于示踪剂. 用 AMS 测定 ^{26}Al 可以实现 ^{26}Al 的示踪,其测定的灵敏度高,引入人体内的剂量可以忽略. 由于自然界 Al 的丰度很高,样品和仪器都难免受到微量铝本底的污染,而小脑中铝含量为微克量级,使用稳定同位素 ^{27}Al 作为示踪剂是不可靠的. Meirav 等利用 Pennsylvania 大学的 AMS 装置测定 ^{26}Al , 对老鼠尿和血清中 ^{26}Al 代谢进行了研究. Kobayashi 等利用东京大学的 AMS 系统测定了 ^{26}Al , 对老鼠肝、血液和小脑中的 ^{26}Al 代谢进行了研究. 所用小脑样品重量约 300mg, 其中铝的含量约 $(0.05 \sim 0.02)\mu\text{g}$, ^{26}Al 原子含量仅为 4×10^8 个. 结果表明: 在 35d 内,小脑中的铝逐渐积累. 这个结果支持了关于老年痴呆症和 ALS 的病因,是铝在中心神经系统不断积累而造成的理论.

5 核物理和天体物理

追溯 AMS 历史,AMS 第一项成就就在核物理领域. 1939 年, Alvarez 和 Cornog 实验室利用回旋加速器作为质谱计发现了自然界

^3He 核素. 70年代后期 AMS 兴起, 其中最早的 AMS 实验之一也是属于核物理. 1976年, Gentry 等人宣布在独居石晶体中发现了 $Z=116$ 的新元素. 1977年, Schwarzschild 等利用 Brookhaven 串列加速器作为质谱计寻找独居石中的超重核, 灵敏度达 10^{-10} , 质量范围 $345 < m < 355$, 结果是负的. 后来, Gentry 等的发现也被其它实验证明是假现象, 是 γ 射线本底造成的. AMS 在天体物理方面的贡献, 在于研究宇宙线同地球物质和地外物质相互作用而产生的长寿命核 ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 、 ^{41}Ca 、和 ^{129}I 的产生率, 由此获得百万年前太阳系和银河系宇宙线强度变化的资料. 这里, 简述近年来 AMS 在核物理和天体物理方面的若干进展.

5.1 半衰期的测定

对于短寿命核的半衰期, 可以依据 $N = N_0 e^{-\lambda t}$ 关系式测定放射性随时间的变化, 而不需要知道衰变核的绝对数目; 而对于长寿命核的半衰期则依据关系式 $dN/dt = -\lambda N$, 需要测定衰变核放射性 dN/dt 和它的绝对数目 N . 在有些情况下, AMS 是测定 N 的一种良好方法, 可对其它方法测定的半衰期进行验证或提供较精确的测量值. 目前, 用 AMS 测定了 ^{32}Si 、 ^{44}Ti 、 ^{60}Fe 、 ^{60}Ni 和 ^{41}Ca 等核的半衰期.

5.2 核反应截面的测定

反应截面测量依据基本公式 $N_p = \sigma \Phi N_t t$, N_p 为产物核数目, σ 为反应截面, Φ 为中子注入量, N_t 为靶核数目和 t 为时间. 对于产物核半衰期长而截面又小 ($\leq 10^{-27} \text{cm}^2$) 的反应截面, 可利用 AMS 测定 N_p . 利用 AMS 测定的核反应截面已有: $^{26}\text{Ag}(p, n)^{26}\text{Al}$, 热中子引起的 $^{10}\text{B}(n, p)^{10}\text{Be}$ 和 $^{36}\text{Ar}(n, p)^{36}\text{Cl}$ 反应, ($10 \sim 40$) MeV 中子引起 O、Al 和 Si 的 ^{10}Be 和 ^{26}Al 产生截面, 以及由高能质子 ($41 \sim 260$) MeV 引起 O、Mg、Al、Si、Te 和 Ni 等的 ^{10}Be 、 ^{26}Al 和 ^{41}Ca 产生截面.

5.3 寻找反常重同位素

这里指的反常重同位素, 是指具有比已知元素质量高得多的稳定同位素. 反常质量是一个至今未知的 X 粒子同原子核相结合而成

的. X 粒子可能是中性的、带正电荷或负电荷. 理论上认为, 宇宙大爆炸期间可能形成各种各样的 X 粒子, 而且有的 X 粒子也可能由宇宙线产生. 在过去 10 多年里, 利用 AMS 寻找了 H、He、Li、Be、C 和 O 等元素的反常重同位素; 寻找反常重氢的质量范围 ($100 \sim 2000$) amu, 灵敏度达到 10^{-24} . AMS 和其它方法寻找的结果一样是负的. 依目前的实验结果, 是否可以否定反常重元素的存在, 尚有争议.

5.4 分数电荷粒子的探索

作为强子基本结构的分数电荷粒子(夸克)的存在, 已被人们所认识. 但夸克是否完全紧闭, 仍有疑问. 目前, 除 Stanford 超导悬浮实验表明观察到夸克 (10^{-18} 夸克/每个 Nb 或 W 基体原子) 外, 其它实验结果都是负值. AMS 在过去 10 多年里, 为探索分数电荷粒子开展了不少实验, 其中有代表性的是在美国 Chatech 的 3MV 串列加速器上进行的, 采用纯静电的分析, 消除了质量效应, 对地球物质和多个陨石物质进行了研究, 但同其它 AMS 实验结果一样是负的. AMS 探测分数电荷方面是十分灵敏的, 但如何选择样品, 以及夸克的化学性质究竟如何, 还不很清楚, 实验还不能得出否定存在自由夸克的结论. 有一种观点认为, 在理论上和实验上都需进一步完善, 继续寻找仍然是必要的.

5.5 其它

1984年, 理论家提出了存在奇异物质的设想, 这种物质的稳定形式含有相同数目的上夸克 ($+ [2/3]e$)、下夸克 ($- [1/3]e$) 和奇异夸克 ($- [1/3]e$), 其特征是低电荷和高质量(质量数 A 在通常核的 10^2 至中子星的 10^{57} 之间). 美国 ANL 实验室计划建造 AMS 装置在氦中寻找奇异物质. 用 AMS 探测中微子的实验也在设计. AMS 用于探索原子电子和核子不遵守泡利原理的稀少事件最近也在进行.

6 结束语

AMS 作为一种新的、具有独特性的技术学科只有 10 年的历史, 它的应用必将进一步

发展. 本文只阐明 AMS 在核科学中几个方面的应用, 而不是全部, 但由此已看出, 它在核科学中的应用前途是广阔的. 近年来, AMS 在我国也已得到重视, 北京、上海和兰州等地都在开发这一新技术. 中国原子能科学研究院是我国 AMS 起步最早的单位之一, 到目前为止, 已做出了初步成果, 测定了 ^3H 、 ^3He 、 ^{10}Be 、 ^{36}Cl 和 ^{129}I 微量核素, ^3H 的测定在国际上也是开展最早者之一. 1990 年, 利用 AMS 测定 ^{10}Be 对

锰结核生长速率和深海沉积物沉积速率的研究工作, 为我国申请太平洋深海区锰结核矿产资源的开采权做出了贡献. AMS 在核科学中的应用目前已在中国原子能科学研究院展开, 希望有关科学工作者参加合作研究, 使 AMS 在我国核科学发展中起到积极的作用, 也为交叉学科, 如环境科学、生物医学、材料科学、地质水文科学作出贡献.

Application of AMS in Nuclear Science

Jiang Songsheng

(*Institute of Atomic Energy of China, Beijing 102413*)

Abstract The new progress in the application of accelerator mass spectrometry in nuclear science has been reviewed in this paper, including antropogenic long-lived radioisotopes in the natural environment, the repository of nuclear waste, radioisotope-tracers in biomedical study, astrophysics and nuclear physics.

Key Words accelerator mass spectrometry, long-lived radioisotopes, nuclear science.