

文章编号: 1007-4627(2003)03-0290-05

## AMS 测量中同量异位素的鉴别方法\*

管永精<sup>1,2</sup>, 何明<sup>1</sup>, 阮向东<sup>2</sup>, 董克君<sup>1</sup>, 吴伟明<sup>2</sup>, 姜山<sup>1</sup>

(1 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413;

2 广西大学物理系, 广西南宁 530004)

**摘要:** 在加速器质谱测量中, 存在同位素和同量异位素的干扰. 排除同位素的干扰是开展超微量核素分析的重要课题之一. 主要介绍了加速器质谱测量中同量异位素的几种鉴别、排除方法, 以及这些方法的原理、发展及应用.

**关键词:** 加速器质谱; 同量异位素; 粒子鉴别

**中图分类号:** TL817.4      **文献标识码:** A

### 1 引言

加速器质谱计(AMS)是 20 世纪 70 年代末发展起来的一种核分析技术<sup>[1,2]</sup>, 它是基于加速器和探测器直接记录原子的质谱技术. AMS 与普通质谱计相比, 有效地排除了各种本底干扰, 具有灵敏度高(极限灵敏度可达  $10^{-16}$ , 探测限度可达  $10^3$  个原子)、样品用量少(mg)和测量时间短(分钟)等优势. 由于这些优势, AMS 被广泛地应用于地质、水文、海洋、考古、环境、生物医学、材料科学和物理学等方面的研究.

加速器作为质谱计的应用可追溯到 1939 年, Alvarez 和 Cornog<sup>[3]</sup>利用回旋加速器测量了自然界中  $^3\text{He}$  的存在. 在之后的近 40 年中, 由于重离子探测技术和加速器束流品质等条件的限制, 没有开展任何 AMS 工作. 到 1977 年, Muller 提出用回旋加速器探测  $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$  和其它长寿命放射性同位素. 同年, McMaster 和 Rochester 大学<sup>[4,5]</sup>用静电加速器分别开展了对  $^{14}\text{C}$  的测量. 此后, 各种类型加速器都开展了 AMS 的研究工作. 它们主要是测量寿命较长( $10^2$ — $10^7$  a)的一些宇宙成因核素, 如  $^{10}\text{Be}$ <sup>[6]</sup>,  $^{14}\text{C}$ <sup>[7]</sup>,  $^{26}\text{Al}$ <sup>[8]</sup>,  $^{32}\text{Si}$ <sup>[9]</sup>,  $^{36}\text{Cl}$ <sup>[10]</sup> 和  $^{129}\text{I}$ <sup>[11]</sup> 等.

目前对另外一些感兴趣的核素的研究也逐步开展起来, 如  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ <sup>[12]</sup>,  $^{44}\text{Ti}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{81}\text{Kr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{236}\text{U}$  和  $^{238}\text{Pu}$  等. 全世界现有 50 多个 AMS 实验室<sup>[13]</sup>在进行这些核素的测量研究工作.

对这些核素的测量大都存在同量异位素的干扰, 而排除同量异位素的干扰是 AMS 测量中的重要环节, 本文主要介绍了排除这些同量异位素的鉴别方法.

### 2 AMS 测量中同量异位素的鉴别方法

同量异位素之间的质量差异小于  $10^{-5}$ , 采用通常的单电荷态的电磁分析器很难将它们区分开, AMS 测量中鉴别同量异位素的方法主要是采用各种不同的离子探测器. 主要有以下几种方法.

#### 2.1 $\Delta E$ - $E$ 望远镜法

这种方法是目前最常用的一种方法. 它的基本原理是: 入射离子穿过物质时因电离作用造成的能量损失率可以用 Bethe-Block 公式来描述. 在非相对论区, Bethe-Block 公式可以简化为以下形式<sup>[14]</sup>:

$$-\frac{dE}{dx} = B \left( \frac{Z^2 M}{E} \right) \ln \left( \frac{bE}{M} \right), \quad (1)$$

式中  $dE/dx$  是能量损失率;  $B$  和  $b$  是与吸收体有关、与入射离子无关的常数;  $M$ ,  $E$  和  $Z$  分别是离子的质量、能量和原子序数.

如果能量为  $E$  的离子在厚度为  $d$  的透射探测器中只损失很少的一部分能量  $\Delta E$ , 即  $\Delta E \ll E$ , 则(1)式中的  $dE$  可用  $\Delta E$  代替,  $dx$  可用  $d$  代替. 如果

收稿日期: 2003 - 03 - 01; 修改日期: 2003 - 06 - 27

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19975057)

作者简介: 管永精(1978-), 男(汉族), 广西桂林人, 硕士研究生, 从事加速器质谱研究.

离子是全剥离的, 忽略对数项随离子能量的慢变化, 可以得到  $E\Delta E \propto MZ^2 d$ , 对于固定的探测器  $d$  是常数, 则有  $E\Delta E \propto MZ^2$ . 通过测量离子的  $E$  和  $\Delta E$  就可以知道它们的  $MZ^2$  值, 从而可以对同量异位素进行鉴别. 通常采用  $\Delta E$ - $E$  电离室(见图1)获得不同射程时的能量损失及剩余能量, 实现同量异位素的鉴别<sup>[15, 16]</sup>.

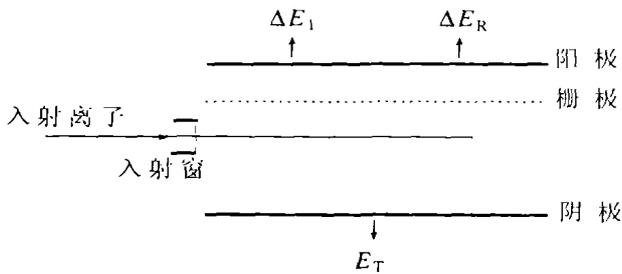


图1  $\Delta E$ - $E$  电离室结构简图

$\Delta E_1$  是入射离子在第一块阳极板上所损失的能量,  $E_R$  是入射离子穿过第一块阳极板后的剩余能量,  $E_T$  是阴极板所收集到的入射离子的总能量.

这种探测器的优点是设计简单、使用方便, 适用于测量离子能量为 1—2 MeV/atom, 且核电荷数比较低的一些核素 ( $Z < 20$ ). 对于目前的 AMS 系统来说, 用这种方法最高能探测到  $Z = 25$ —30 的核素<sup>[17]</sup>. 要实现重核素 ( $Z > 30$ ) 的同量异位素的鉴别, 就需要更高的能量, 一般要大于 5 MeV/atom, 目前的 AMS 系统使用的加速器达不到这种能量, 所以这种方法通常只适用于  $Z < 30$  的核素.

这种方法的灵敏度可达  $1 \times 10^{-15}$ , 目前大部分实验室都采用这种探测方法来进行 AMS 测量. 中国原子能科学研究院用这种方法成功地测量了  $^{10}\text{Be}$ <sup>[18]</sup>,  $^{26}\text{Al}$ <sup>[19]</sup>,  $^{36}\text{Cl}$ <sup>[20, 21]</sup> 和  $^{41}\text{Ca}$ <sup>[22]</sup> 等核素.

## 2.2 充气磁谱仪法

充气磁谱仪法的基本原理如图2所示. 离子在充气磁场中的飞行轨迹与磁场强度和离子在气体中的平均电荷态有关, 而离子的平均电荷态与原子序数  $Z$  有关. 因此, 利用它们的飞行路径的不同可以将同量异位素离子聚焦在焦平面的不同位置处, 从而可以进行同量异位素的鉴别. 充气磁谱仪法最早在 Rochester 大学被实际应用<sup>[23]</sup>, 利用它对  $^{36}\text{Cl}$  和  $^{36}\text{S}$  进行了鉴别.

这种方法具有两个优点<sup>[24]</sup>: (1) 使用位置灵敏探测器, 给出了核电荷数 ( $Z$ ) 的信息, 只有极少数

的本底需要鉴别; (2) 探测器前的狭缝可使同量异位素本底降低 3 个数量级, 它的电荷分辨可达到 80. 它的缺点是: 要达到好的分辨(能量歧离和能量损失小), 离子必须具有较高的能量, 一般为 3—4 MeV/atom 左右, 所以这种方法通常只用于测量  $Z < 30$  的核素.

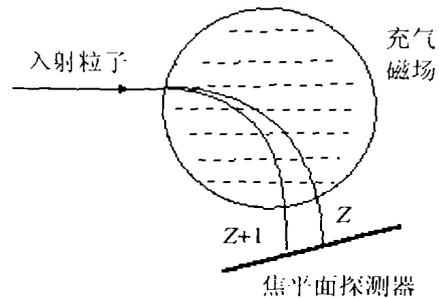


图2 充气磁谱仪法的原理简图

这种方法的灵敏度可达  $2 \times 10^{-16}$ , 目前有部分实验室用这种方法进行测量, 日本的 Hatori 等<sup>[25]</sup> 就利用了这种方法进行了  $^{36}\text{Cl}$  的测量.

## 2.3 Bragg 谱仪探测方法

Bragg 谱仪最初是由美国加利福尼亚大学的 Cruhn 等<sup>[26]</sup> 在 1979 年提出并制作的. 其基本原理是, 具有一定能量的重离子进入探测器后, 在工作介质中会产生一条离子径迹, 这条径迹上不同位置的比电离是不同的, 形成 Bragg 曲线形状. Bragg 曲线的峰值只与粒子的类别有关, 随核电荷数 ( $Z$ ) 成正比增加. 对于不同能量的相同  $Z$  的粒子仅仅是射程长短的不同, Bragg 曲线的极大值处的比电离是相同的. 在 Bragg 谱仪中电离的电子在平行于入射粒子方向的电场作用下穿过栅极向阳极漂移, 在阳极上感应出与时间相关的电流信号. 先到达的是 Bragg 曲线末端的电离电子, 因此阳极电流信号正好是 Bragg 曲线的反演(如图3所示).

所得到的阳极信号用电荷灵敏前放放大, 其输出信号分成两路分别送到不同成形时间的主放大器中, 其中一个主放大器成形时间大于总的电子收集时间, 此信号正比于入射离子的总能量; 另一个主放大器的成形时间比较短, 它只对 Bragg 峰附近的电子积分, 这个信号与入射离子的核电荷数 ( $Z$ ) 成正比. 由于不同的离子在电离室中具有不同的 Bragg 峰值, 也就是不同电流脉冲的高度, 通过测量电流脉冲的幅度值, 就可对同量异位素进行鉴

别. 依据这一原理, 德国、法国和日本的一些实验室先后进行了试制, 并取得了较好的结果.

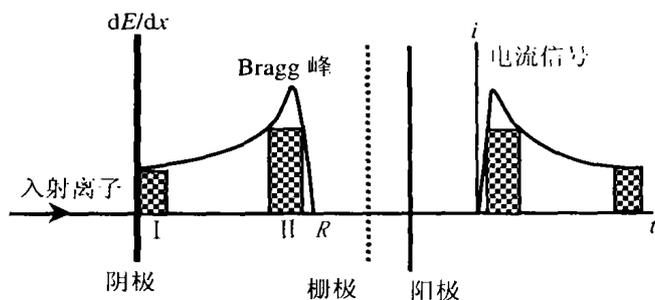


图 3 Bragg 探测原理简图

I 某射线能量处的  $\Delta E$ , II Bragg 峰值, R 重离子的射程.

Bragg 探测器具有一般电离室的优点(探测器灵敏体积大小和形状几乎不受限制, 没有核辐射损伤等). 此外, 由于所有的测量都在同一介质中完成, 消除了窗的影响, 所以有较好的电荷分辨(对重离子 Z 分辨可达到 50—80). 它的局限性是存在较高阈能(5 MeV/amu 左右), 入射粒子的能量必须能形成 Bragg 峰. 当入射粒子的质量数较大时, 要求的能量很高, 一般的串列加速器很难达到.

这种方法的灵敏度可达  $1 \times 10^{-15}$ , Smith 等<sup>[27]</sup> 在 1996 年利用它对  $^{36}\text{Cl}$  进行测量, 目前巴西的 Santos 等<sup>[28]</sup> 用 Bragg 探测器对  $^{36}\text{Cl}$  和  $^{36}\text{S}$  进行鉴别, 取得了较好的结果. 我们正在计划用 Bragg 探测器进行重离子的测量, 这一工作正在进行当中.

### 2.4 入射离子 X 射线法

在目前常用的 AMS 系统能量下, Artigas 等<sup>[29]</sup> 提出了入射离子 X 射线法以解决同量异位素干扰问题. 这种方法的原理是: 当一定能量的离子打在靶上时, 不仅靶会产生 X 射线, 入射离子也会产生 KX 射线. 因为不同元素的特征 KX 射线能量不同, 所以通过测量入射离子产生的 KX 射线就可

以对 Z 进行鉴别.

这种方法的优点是测量装置简单, 对离子的能量要求不高, 不同同量异位素间 KX 射线的差别与能量无关, 并且由于电离引起的能量展宽小, 有利于分辨, 可实现一般能量下重核的同量异位素鉴别. 它的局限性是入射离子 KX 射线的产额较少, 探测效率比较低<sup>[30]</sup>, 因此降低了灵敏度(AMS 灵敏度降低 4—5 个数量级, 约为  $10^{-11}$ ), 对测量  $^{36}\text{Cl}$  等轻核素没有优势, 适用于离子能量较低 ( $< 30 \text{ MeV}$ ) 时  $^{36}\text{Cl}$  和  $^{41}\text{Ca}$  的测量或离子较重的情况, 如  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  和  $^{99}\text{Tc}$  等的测量.

这种方法的灵敏度可达  $10^{-11}$ , 中国原子能科学研究院于 1998 年开始对这种探测方法进行了研究, 建立了加速器质谱学中入射离子 X 射线(简称 PX-AMS)方法. 利用这种方法分别实现了  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{75}\text{Se}$  和  $^{64}\text{Cu}$  的测量<sup>[31,32]</sup>, 并对  $^{64}\text{Cu}$  放射性核束实验时  $^{64}\text{Cu}$  的强度和离子束的成分进行了测定<sup>[33]</sup>.

### 2.5 充气飞行时间法

中国原子能科学研究院与广西大学合作, 于 1998 年建立和发展了充气飞行时间(简称 GF-TOF)探测器系统, 相应的粒子鉴别方法为充气飞行时间法<sup>[34,35]</sup>. 图 4 为 GF-TOF 谱仪的工作原理与结构简图. 由于两个具有相同能量的同量异位素在同一介质中的能量损失率是不同的, 则它们的速度改变率也就不同. 因此当它们穿过同等长度的同一介质所需要的时间也就不同, 通过测量这一时间的不同, 就可以进行同量异位素的鉴别. 我们分别用  $^{241}\text{Am}$  的  $\alpha$  粒子和加速器引出的  $\text{Cl}^-$  对 GF-TOF 方法进行了检验, 在不充气的情况下取得了系统的分辨时间分别为 300 ps 和 900 ps. 在 AMS 测量实验中, 由于  $\text{AgCl}$  样品中确实  $^{36}\text{S}$  的含量过高, 没有得到令人满意的结果.

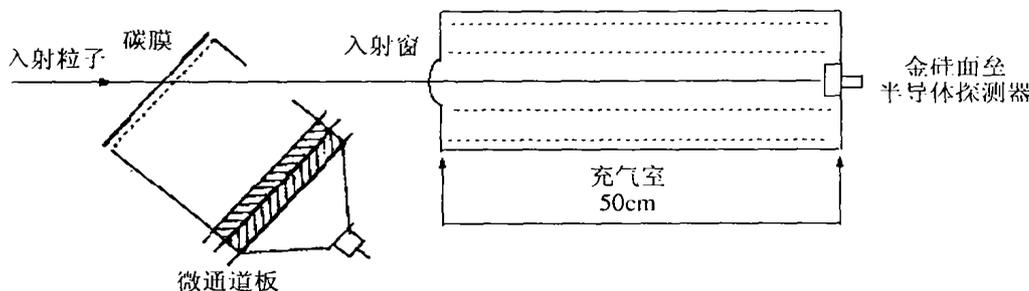


图 4 GF-TOF 探测器工作原理与结构简图

GF-TOF 对电荷  $Z$  的分辨取决于时间分辨本领, 而时间分辨仅来源于定时探测器电流脉冲上升时间的快慢和离子在介质中的能量离散. 增加对电荷  $Z$  的分辨能力, GF-TOF 探测方法可以采取两种方法: (1) 增加离子能量; (2) 合理改变气压和选择飞行路径的长度. 所以, 与  $\Delta E-E$  探测器相比, GF-TOF 方法在提高电荷分辨本领上是具有一定潜力的, 我们第一次探索性的实验<sup>[34]</sup>也证明了这一点.

这种方法的优点是对入射离子的能量要求不高(每核子的能量可小于 1 MeV), 充气室内的工作气压可任意调节以适应不同能量下各种核素的测量, 特别适用于较低能量下对重核的测量. 它的缺点是探测效率随气压和飞行距离的增加而降低.

这种方法的灵敏度可达  $10^{-15}$ , 目前我们正在进行这一方法的研究. 我们相信在选择合适的工作气体和气压以及适当的飞行距离后, 充气飞行时间法对同量异位素的分辨本领会有进一步的提高.

### 参 考 文 献:

- [1] Muller R A, Alvarez L A, Hölly W R, *et al.* Quarks with Unit Charge: A search for anomalous hydrogen [J]. *Science*, 1977, **196**: 521.
- [2] Muller R A. Radioisotope Dating with a Cyclotron [J]. *Science*, 1977, **196**: 489.
- [3] Alvarez L W, Cornog R.  $^3\text{He}$  in Helium [J]. *Phys Rev*, 1939, **56**: 379.
- [4] Bennett C L, Beukens R P, Clover M R, *et al.* Radiocarbon Dating Using Electrostatic Accelerators; Negative ions provide the key [J]. *Science*, 1977, **198**: 508.
- [5] Nelson D E, Korteling R G, Stott W R. Carbon-14; Direct detection at natural concentrations [J]. *Science*, 1977, **198**: 507.
- [6] Rasebeck G M, Yiou F, Fruneau M, *et al.* Cosmogenic  $^{10}\text{Be}$  Concentrations in Antarctic Ice during the Past 30,000 Years [J]. *Nature*, 1981, **292**: 825.
- [7] Stuiver M, Polach H. Reporting of  $^{14}\text{C}$  Data [J]. *Radiocarbon*, 1977, **19**: 355.
- [8] Rasebeck G M, Yiou F.  $^{26}\text{Al}$  with a Cyclotron [J]. *J Phys*, 1979, **40**: 241.
- [9] Kutcher W, Henning W, Paul M, *et al.* Measurement of the  $^{32}\text{Si}$  Half-life via Accelerator Mass Spectrometry [J]. *Phys Rev Lett*, 1980, **45**: 592.
- [10] Elmore , Fulton B R, Clover M R, *et al.* Analysis of  $^{36}\text{Cl}$  in Environmental Water Samples Using an Electrostatic Accelerator [J]. *Nature*, 1979, **277**: 22.
- [11] Nishiizumi K, Elmore D, Honda M, *et al.* Measurement of  $^{129}\text{I}$  in Meteorites and a Lunar Rock by Tandem Accelerator Mass Spectrometry [J]. *Nature*, 1983, **305**: 611.
- [12] Fink D, Middleton R, Klein J, *et al.*  $^{41}\text{Ca}$  Measurement by Accelerator Mass Spectrometry and Application [J]. *Nucl Instr and Meth*, 1990, **B47**: 79.
- [13] 何 明. 加速器质谱学中的入射离子 X 射线方法及其应用 [D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2001, 1-2.
- [14] 卢希庭. 原子核物理 [M]. 北京: 原子能出版社, 2000, 55-60.
- [15] Fifield L K, Ophel T R, Allan G L, *et al.* The Chlorine-36 Measurement Program at the Australian National University [J]. *Nucl Instr and Meth*, 1987, **B29**: 114.
- [16] Knies D L, Elmore D, Sharma P, *et al.*  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$  and  $^{36}\text{Cl}$  in Precipitation [J]. *Nucl Instr and Meth*, 1994, **B92**: 134.
- [17] Mcaninch J E, Bench G S, Freeman S P H T, *et al.* PX-AMS-projectile X-ray AMS: X-ray yields and application [J]. *Nucl Instr Meth*, 1995, **B99**: 519.
- [18] 蒋崧生, 姜 山, 马铁军等.  $^{10}\text{Be}$  断代法测定锰结核生长速率和深海沉积物沉积速率的研究 [J]. *科学通报*, 1992, **37**: 505.
- [19] 郑元丰, 阮向东, 何 明等. 低能核反应  $^{26}\text{Al}$  的 AMS 测量方法研究 [J]. *质谱学报*, 2003, **24**(1): 295.
- [20] Jiang S S, Jiang S, Guo H, *et al.* Accelerator Mass Spec-

- trometry at the China Institute of Atomic Energy [J]. Nucl Instr and Meth, 1994, **B92**: 61.
- [21] 姜山, 蒋崧生, 郭宏等. 用北京 HI-13 串列加速器质谱计测定<sup>36</sup>Cl 研究 [J]. 核技术, 1993, **27**: 393.
- [22] 姜山, 何明, 武绍勇等. 加速器质谱方法测量<sup>41</sup>Ca 及其在生物学中的应用 [J]. 原子核物理评论, 2002, **19**(1): 66.
- [23] Sharma P, The 1989 Accelerator Mass Spectrometry Program [Z]. The University of Rochester, Nuclear Structure Research Laboratory, UR-NSRL-360, 1989, 3—4.
- [24] Rugel G, Faestermann T, Knie K, *et al.* Accelerator Mass Spectrometry of <sup>63</sup>Ni Using a Gas-filled Magnet at the Munich Tandem Laboratory [J]. Nucl Instr and Meth, 2000, **B172**: 934.
- [25] Hatori S, Nawata H, Ohseki M, *et al.* Gas-filled Magnet at MALT Measurement of <sup>36</sup>Cl [J]. Nucl Instr and Meth, 2000, **B172**: 211.
- [26] Cruhn C R, Binimi M, Legrain R, *et al.* Bragg Curve Spectroscopy [J]. Nucl Instr and Meth, 1982, **196**: 33.
- [27] Smith A M, Fink D, Hotchkis M A C, *et al.* Research and Measurement Program at the ANTARES AMS Facility [J]. Nucl Instr and Meth, 1997, **B123**: 73.
- [28] Santos G M, Acquadro J C, Gomes P R S, *et al.* The Brazilian Bragg Curve Detector Built for AMS Studies [J]. Nucl Instr and Meth, 2000, **B172**: 310.
- [29] Artigalás H, Barthe M F, Gomez J, *et al.* FT-ICR with Laser Ablation and AMS Combined with X-ray Detection, Applied to the Measurement of Long-lived Radionuclides from Fission or Activation: Preliminary results [J]. Nucl Instr and Meth, 1993, **B79**: 617.
- [30] He M, Jiang S, Jiang S S, *et al.* Measurement of <sup>79</sup>Se and <sup>64</sup>Cu with PXAMS [J]. Nucl Instr and Meth, 2000, **B172**: 177.
- [31] 蒋崧生, 何明. AMS 重核素测量的人射离子 X 射线探测法 [J]. 原子核物理评论, 2000, **17**(4): 231.
- [32] 何明, 姜山, 蒋崧生等. 重核离子束的加速器质谱分析 [J]. 原子能科学技术, 1999, **33**(2): 129.
- [33] 何明. 加速器质谱学中的入射离子 X 射线方法及其应用 [D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2001, 32—33.
- [34] 姜山, 何明, 蒋崧生等. 一台用于加速器质谱测量的充气飞行时间探测器 [J]. 核技术, 2000, **23**(10): 718.
- [35] Jiang S, He M, Wu S Y, *et al.* A Gas-filled Time-of-flight Detector System and a New Method for Particle Identification [J]. Nucl Instr and Meth, 2000, **B172**: 305.

## Methods of Isobaric Identification in AMS Measurements\*

GUAN Yong-jing<sup>1,2</sup>, HE Ming<sup>1</sup>, RUAN Xiang-dong<sup>2</sup>, DONG Ke-jun<sup>1</sup>,

WU Wei-Ming<sup>2</sup>, JIANG Shan<sup>1</sup>

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

2 Department of Physics, Guanxi University, Nanning, 530004, China)

**Abstract:** There are interference of isotopes and isobars in accelerator mass spectrometry (AMS) measurements. Eliminating the isobaric interference is the important aspect in AMS measurements. Several methods of isobaric identification in AMS measurements are discussed in this paper. Principles, developments and applications of these methods are also introduced.

**Key words:** accelerator mass spectrometry; isobar; particle identification

\* Foundation item: National Natural Science Foundation of China (19975057)