

文章编号: 1007-4627(2009)04-0312-07

²³⁶U 及其加速器质谱 (AMS) 测量*

王祥高¹, 何明¹, 李朝历¹, 王伟¹, 张大伟^{1,2}, 黄春堂^{1,2}, 石国柱^{1,2},
沈洪涛¹, 吴绍雷¹, 贺国珠¹, 龚杰¹, 陆丽燕¹, 武绍勇¹, 姜山^{1, #}

(1 中国原子能科学研究院核物理所, 北京 102413;
2 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西南宁 530004)

摘要: ²³⁶U 是一种长寿命放射性核素, 其半衰期为 $T_{1/2} = 2.342(3) \times 10^7$ a, 在自然界的含量极微, 天然铀中 ²³⁶U/²³⁸U 的原子比约为 $\sim 10^{-14}$ 。目前, 对于 ²³⁶U 及其测量的研究报道较少。首先介绍了 ²³⁶U 的产生, 并对地球中 ²³⁶U 的总量进行了估算。概述了 ²³⁶U 测定在亿年级中子注量率积分评估、核环境和核活动监测, 以及地质学等领域中的重要应用。最后, 对国内外加速器质谱 (AMS) 测量 ²³⁶U 的状况进行了综述, 报道了中国原子能科学研究院 AMS 小组通过对同位素干扰鉴别的多方面研究, 初步建立了 ²³⁶U-AMS 测量方法。

关键词: ²³⁶U; 加速器质谱; 环境监测

中图分类号: O615.2 **文献标识码:** A

1 ²³⁶U 的产生及其总量估算

1.1 ²³⁶U 及其产生

92 号元素铀是克拉普洛特 (M. H. Klaproth) 于 1798 年在分析沥青铀矿时发现的一个在自然界存在的天然放射性元素。当时恰好发现了天王星 (Uranus), 因此就以“天王星”命名为 Uranium。中国以天王星英文名的第一个字母“U”的音译为“铀”^[1]。铀的原生同位素为 ²³⁸U (99.3%, $T_{1/2} = 4.468(3) \times 10^9$ a) 和 ²³⁵U ($\sim 0.72\%$, $T_{1/2} = 7.308(5) \times 10^8$ a)。²³⁴U ($\sim 0.005\%$, $T_{1/2} = 2.455(6) \times 10^5$ a) 是 ²³⁸U 的衰变子体。²³⁶U 是一种长寿命放射性核素, 其半衰期为 $T_{1/2} = 2.342(3) \times 10^7$ a, 在自然界的含量极微, ²³⁶U/U 的原子个数比约为 $\sim 10^{-14}$ ^[2]。图 1 给出了 ²³⁶U 的衰变纲图^[3]。²³⁶U 通过纯 α 衰变为 ²³²Th, 其 E_α 能量为 4.494(3) MeV (73.8(4)%), 4.445(5) MeV (25.9(4)%), 4.332(8) MeV (0.26(1)%)。

²³⁶U 主要通过 ²³⁵U 俘获一个中子得到, 即 ²³⁵U (n, γ) ²³⁶U (σ [²³⁵U(n, γ)] = 98.6 b^[3])。 ²³⁵U 吸收

一个中子, 主要发生裂变反应 (σ [²³⁵U(n, f)] = 582.2 b^[3]), 但是同时也发生俘获反应生成不可裂变的 ²³⁶U, 俘获反应截面约为裂变截面的 1/6。因 ²³⁶U 吸收另一个中子后成 ²³⁷U, 再衰变为 ²³⁷Np。所以从消耗中子的角度讲, 人们视 ²³⁶U 为一种“毒物”。图 2 给出了俘获反应产生 ²³⁶U 示意图。假定每一个 ²³⁸U 裂变产生 2.5 个热中子, 在高纯的铀化

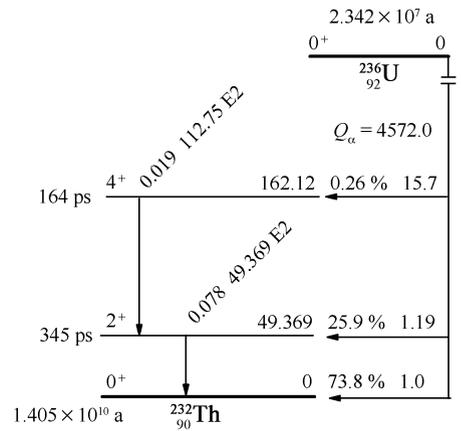


图 1 ²³⁶U 的衰变纲图

* 收稿日期: 2009-02-18; 修改日期: 2009-07-18

* 基金项目: 国家自然科学基金委员会和中国工程物理研究院联合基金资助项目(10576040)

作者简介: 王祥高(1982-), 男(汉族), 广西博白人, 博士研究生, 从事加速器质谱研究; E-mail: wangxg@ciae.ac.cn

通讯联系人: 姜山, E-mail: Jiangs@cicae.ac.cn

合物(如 U_3O_8)中的 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 可高达 $\sim 7 \times 10^{-10}$ ，在核废料中 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 可达到 $10^{-2} \sim 10^{-7}$ 。 ^{236}U 的另一个来源为 ^{240}Pu ($\sim 0.005\%$ ， $T_{1/2} = 6580 \text{ a}$) 的 α 衰变。

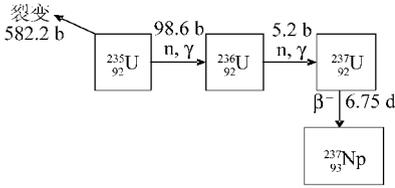


图 2 俘获反应产生 ^{236}U 示意图

除此之外，也有一些大型自然裂变产生 ^{236}U ，如在非洲加蓬东南部一铀矿中于十亿年前发生的一系列天然核连锁反应的奥克劳现象，但是这种现象为数不多。

1.2 ^{236}U 的总量估算

铀在自然界的分布是相当广泛的，地壳和海水中有大量的铀，甚至宇宙空间也有少量铀存在。自然界的铀集中分布于地壳中，往下显著减少。铀在地壳内的分布极为分散，富矿很少。以地壳中岩石平均密度 $\sim 2.6 \text{ g/cm}^3$ 估算，地壳中岩石含铀量 $\sim 3 \sim 4 \text{ ppm}$ (parts per million)，在地壳的第一层(距地表 20 km)内含铀近 $1.3 \times 10^{14} \text{ t}$ ^[1]。在地壳里宇宙射线产生 ^{236}U 的量可以忽略^[4]， $^{236}\text{U}/\text{U}$ 会更低， $\sim 1 \times 10^{-14} \sim 5 \times 10^{-14}$ 。如果以 $^{236}\text{U}/\text{U} = 3 \times 10^{-14}$ 计算，地壳中 ^{236}U 的总量 $\sim 11.7 \text{ t}$ 。地壳表层 0.5 m 的热中子量通量要比地下的高 ~ 100 倍以上，以每平方厘米每年有 0.5 个 ^{236}U 计算^[5]，宇宙射线产生的 $^{236}\text{U} \sim 20 \text{ kg}$ 。

海水也有丰富的铀矿资源，由太平洋或大西洋的海面或 400 m 深海处所得的水样，其浓度变化很小，大部分的含量 $\sim 3.3 \text{ ppb}$ (parts per billion)。估计海洋的总体积为 $1.37 \times 10^{12} \text{ cm}^3$ ，其总含铀量可达 $4.5 \times 10^9 \text{ t}$ ^[6]。岩石侵蚀等方式使铀从矿中释放，从河流(包括暗河)补充的铀 $\sim 2700 \text{ t}$ ，与海底沉淀物的铀等量。 ^{238}U 衰变子体的 ^{234}U 因为反冲能的缘故，使 ^{234}U 更容易脱位并破坏其晶格，与原生铀同位素 ^{235}U 和 ^{238}U 相比较容易地从铀矿中迁移出来，海水中 $^{234}\text{U}/\text{U}$ 的值大于陆地^[7]。 ^{235}U 俘获一个中子通过 (n, γ) 反应产生 ^{236}U ，使得 ^{236}U 和 ^{234}U 一样更容易从铀矿中迁移出来。河水中的 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 在

1×10^{-14} 和 1×10^{-13} 之间^[5]，据此推断海水中未被核废物污染前的 ^{236}U 总量小于 0.5 kg。另外，温泉、湖水、河水和某些有机体中也都有少量铀存在，但相对海水其 ^{236}U 含量比较小。

核应用事业的发展是人为产生 ^{236}U 的主要因素，因此人为产生的 ^{236}U 可能通过铀的消耗总量来估算。2003 年底，U 消耗总量达到 $2.2 \times 10^6 \text{ t}$ ^[8]，如果 50% 的 ^{235}U 经由 (n, γ) 反应燃烧掉，人为的 ^{236}U 的总产量可达到 $\sim 10^3 \text{ t}$ 。但是环境中人为产生的 ^{236}U 分布情况很难估算。

2 ^{236}U 在环境监测和地质学中的应用

2.1 环境监测与核安全

随着核事业的不断发展(如核电站)，虽然为人类的生活带来了许多好处，但是放射性核废料和意外事故释放出的长寿命放射性核素也日益威胁着人类的健康。而且 20 世纪 50 和 60 年代军备竞赛时遗留下来的长寿命放射性核素仍在环境中大量存在。如何对这些长寿命产物进行定量和后续处理，是国际上很多实验室研究的课题。

^{236}U 在自然界的含量极微，所以 ^{236}U 含量水平的提高可以被用作人类从事铀辐照实验的指纹。20 世纪 50 年代的核活动开始排放人造 ^{236}U 到环境中，现在环境中可移动的 ^{236}U 中 99% 以上是人为产生的，主要是由“核爆”和核设施，特别是核燃料后处理厂释放出来的。图 3 给出了对环境中的 ^{236}U 的测量情况。前苏联乌克兰北部城市切尔诺贝利核发电厂周围土壤中的 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的比例 $\sim 10^{-6} \sim 10^{-3}$ ^[9, 10]，在 200 km 外 $\sim 2 \times 10^{-7} \sim 4 \times 10^{-7}$ ^[11]。Ketterer 等人也测量了距美国两个核燃料后处理厂 200 km 环境中的 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 比值 $\sim 10^{-6} \sim 1.4 \times 10^{-4}$ ^[12]。Marsden 等^[2] 应用加速器质谱法(accelerator mass spectrometry, 简称 AMS)测定了 Sellafield 核燃料后处理厂附近地区，ESK 港湾沉积物样品中的 ^{236}U ，证明其质量分数在 $10^{-11} \sim 10^{-12}$ 之间，明显高于天然本底。 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的原子个数比在 $10^{-5} \sim 10^{-6}$ 之间^[2]。测定了 ^{236}U 的质量分数与取样深度的对应关系，反映了该工厂排放废物的历史情况。Steier 等^[5] 运用 AMS 技术对意大利 Gasigliano 河流沉积和受 Gasigliano 核电站废物污染河流沉积进行测量检验，没有受污染地区

$^{236}\text{U}/\text{U} \sim 5 \times 10^{-12}$, 而受污染地区为 $\sim 10^{-9}$ 。Steier 还对受 1986 年前苏联切尔诺贝利核泄漏影响较大的奥地利阿尔卑斯山地区萨尔茨保市 Bockstein 周边土壤样进行了测量检验, $^{236}\text{U}/\text{U} \sim 10^{-6}$, 远高于天然水平。图 3 中给出的 K. K. U 测量值为 $^{236}\text{U}/\text{U} \sim 5 \times 10^{-11}$, K. K. U 为硝酸铀酰 $\text{U}_3\text{O}_8 \sim 60\%$ 的样品, 来源于捷克 K. K. Uranfabrik Jochimsthal 矿山, 1918 年前分离并存放于 VERA 地下室。这些都表明了受到人工放射性影响的环境中 ^{236}U 的浓度明显偏高, 通过测量 ^{236}U 可以研究核裂变反应产物对环境污染、监督地下核试验和监测来自核设施的释放。另外, 通过 ^{236}U 和 ^{239}Pu 同位素的比值 ($\sim 0.05-0.50$) 可以判断不同辐照物的来源, 例如高放废液、医学同位素和核活动进程等^[13]。

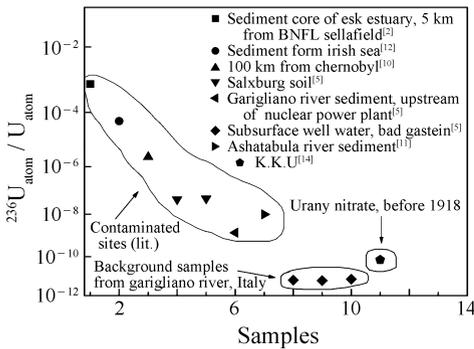


图 3 环境中的 ^{236}U

2.2 地质学中的应用

^{236}U 的半衰期很长, 是一个很好的亿年中子注量率积分器^[15]。中子注量率 (单位 $\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$) 即空间一定点上, 单位时间内接受到的中子注量。地壳表 0.5 m 的热中子注量率要比地下的高 ~ 100 倍以上。可以利用 ^{236}U 亿年中子注量率积分器的优势和壳表面与地下中子注量率的差别, 通过 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的比例变化, 监测壳表面与地下中子的注量的差别, 与 ^{41}Ca 和 ^{36}Cl 等核素相结合, 研究地质学非常古老地层表面暴露年龄和侵蚀沉淀速率, 特别对测定像北极圈干谷等非常古老地层表面地貌的暴露年龄将起到特有的作用。另外, 亿年中子注量率积分器 ^{236}U 也可应用于沉积物的埋藏年龄、土壤浸蚀、泥沙输移^[16] 的研究。

中子注量率积分器 ^{236}U 对铀矿勘查有很大帮助。铀资源是发展核工业的最基本的原料, 但是铀

矿形成条件比较复杂, 分布很不均匀, 规模、品位变化很大。可以通过对水样中 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 比值检测来勘查铀矿, 因为在铀富矿中通过 ^{238}U 自然裂变中子和 $^{235}\text{U}(n, \gamma)$ 反应生成 ^{236}U , 使 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的值比本底要高得多。通过测量可能存在铀矿的区域附近水样中 ^{236}U 的含量可以为铀矿勘探提供一定的帮助。

3 ^{236}U -AMS 的测量

3.1 ^{236}U 的测量方法

^{236}U 在自然界中的含量极低, 采用常规方法 (如衰变计数法和中子活化法等) 难以达到所需的灵敏度, 所以 ^{236}U 测量常采用质谱法。其中, 灵敏度较高的有电感耦合等离子体质谱 ICP-MS (inductively coupled-plasma mass spectrometry)、热电离质谱仪 (thermal ionization mass spectrometry, 简称 TIMS) 和 AMS。普通质谱 ICP-MS 和 TIMS 在测量过程中受同量异位素、多原子离子、多电荷离子和背景对被测离子流的贡献的干扰, 同时还存在强峰拖尾和质量歧视效应。目前普通质谱 ICP-MS 和 TIMS 的测量灵敏度分别为 10^{-6} 和 10^{-8} 。Richter 等^[17] 1999 年曾用 TIMS 对环境中的 ^{236}U 进行测量, 结果为 $\sim 2 \times 10^{-10} - 3 \times 10^{-10}$; Buchholz 等^[18] 也曾用 ICP-MS 对环境中的 ^{236}U 进行测量, 结果为 $\sim 1.5 \times 10^{-8} - 2 \times 10^{-7}$, 这已经达到了其质谱探测限, 在实验测量中也有很大的误差。自然界中 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} \sim 10^{-10} - 10^{-14}$, AMS 技术极大地消除了普通质谱测量中存在的分子本底干扰, 提高了测量的灵敏度, 是目前测量天然样品中 ^{236}U 含量的最有效方法。

3.2 AMS

AMS 是 20 世纪 70 年代末基于粒子加速器技术和离子探测技术发展起来的一种质谱分析技术^[19, 20]。它把加速器和重离子探测器引入质谱分析法, 大大压低了干扰本底、极大地提高了对核素的探测灵敏度 (同位素原子数之比可以达到 10^{-15} , 待测核素的最低检测限达 10^4 原子)、减少了样品用量 ($\sim \text{mg}$), 为长寿命、超低含量核素的精确测量提供了方法和手段。随着实验设备与技术的不断完善, AMS 所能测量的核素也越来越多, 随之而来的是其应用领域也越来越广, 在地球科学、考古学与古人类学、生命科学和环境科学等各个领域均有广

泛应用。目前,全球的 AMS 装置已经超过 60 台。中国原子能科学研究院(CIAE)于 1989 年基于 HI-13 串列加速器,建成我国第一台 AMS 装置^[21, 22],这是亚洲第一台大型 AMS 装置。相继开展了 ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{151}Sm 和 ^{182}Hf 等核素的测量,并在地质、环境和生命方面进行了应用研究^[23, 24]。近年来,继续在发展 AMS 测量技术和拓宽应用两个方面开展研究工作^[25, 26]。AMS 近年来在国内其它单位也得到了较大的发展,如北京大学在已有的端电压为 6 MV 的 AMS 装置的基础上,于 2004 年又引进了一台端电压为 0.5 MV 专用于 ^{14}C 测量的 AMS 装置。中国科学院地球环境研究所-西安交通大学加速器质谱联合中心也在最近引进了一台专用于 ^{14}C 和 ^{10}Be 等核素测量的

端电压为 3 MV 的 AMS 装置。另外, CIAE 目前正在筹建一台端电压为 6 MV 的专用 AMS 装置,目标是测量目前 AMS 所能测量的全部核素。

3.3 ^{236}U 的 AMS 测量

1994 年,加拿大 Toronto 大学 Zhao 教授首次用 AMS 方法测得加拿大主要铀矿山西加湖(Cigar)中 $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的原子个数比值^[27] $\sim 6.2 \times 10^{-10}$ 。接着国际上很多实验室也都开展了 ^{236}U -AMS 测量的研究工作。表 1 列出了国际上主要实验室 ^{236}U -AMS 的测量情况。国际上主要实验室对重核素 ^{236}U -AMS 测量,样品主要是来自核燃料的利用或者核试验后所在地的环境样品,离子源都采用 UO^- 的引出形式,选择了气体剥离。

表 1 国际主要实验室的 ^{236}U -AMS 测量情况*

Lab	Sample	Ions	I /nA	V /MV	Q	E /MeV	Detector	Detection limit	Refs.
IsotTrac Lab	$\text{U}_3\text{O}_8 + \text{Nb}$	UO^-	0.6	1.6	5^+	9.5	g, E	6.2×10^{-10}	[27]
14UD(Israel)	$\text{U}_3\text{O}_8 + \text{Al}$	UO^-	20—80	7.1	11^+	84.7	TOF, g	1×10^{-11}	[28]
ANTARES	$\text{U}_3\text{O}_8 + \text{Fe} + \text{Nb}$	UO^-	~ 100	4	5^+	23.7	TOF, Si	1×10^{-8}	[10]
VERA	U_3O_8	UO^-	50	3	5^+	17.8	TOF, g	5×10^{-12}	[29, 30]
CAMS(LLNL)	$\text{U}_3\text{O}_8 + \text{Fe} + \text{Nb}$	UO^-						4×10^{-9}	[31]
ANU	U_3O_8	UO^-						$\sim 10^{-12}$	[32]

* g=gas, E=tatal energy measurement, TOF=time-of-flight measurement, Si=Si detector.

2000 年,澳大利亚 ANTARES 实验室 Hotchkis 等^[10]从几克的土壤中提取微克铀,通过加入氧化铁把铀载带出来,样品中铀的含量 $\sim 0.05\%—3\%$ 。本底来源主要是同位素 ^{235}U 的干扰,由于飞行时间探测器(TOF)的分辨能力不足,总效率较低 $\sim 4 \times 10^{-5}$,样品测量值为 $^{236}\text{U}/\text{U} \sim 7 \times 10^{-9}—1.5 \times 10^{-8}$ 。同年,以色列希伯来大学 Berkovits 等^[28]以 $^{197}\text{Au}^{10+}$ 通光路和 $^{238}\text{U}^{11+}$ 进行束流模拟传输。同位素本底 ^{238}U 和 ^{235}U 干扰很强,而其 TOF 的时间分辨为在 700—900 ps,对以色列国家标准中心的 3 个样品测量值分别为 $(7.5 \pm 1.3) \times 10^{-10}$, $(4.8 \pm 0.5) \times 10^{-8}$ 和 $(8.20 \pm 0.60) \times 10^{-6}$,测量结果误差较大。2002 年,奥地利 VERA 实验室 Steier 等^[29, 30]开始在其 3 MV 专用 AMS 装置上开展测量 ^{236}U 的研究工作。VERA 针对重核素(^{210}Pb , ^{236}U , ^{244}Pu 和 ^{182}Hf)测量的需要,对 AMS 系统升级改造,提高注入系统质量分辨至 ~ 900 ,在 高能分析端增

加高分辨 90°静电分析器($E/q = 4.4 \text{ MeV}$, $r = 2.000 \text{ m}$)和开关磁铁($B = 1.66 \text{ T}$),TOF 采用 DLC 类金刚石膜(Diamond-like carbon foil, $\sim 0.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)减少能散,提高时间分辨。2002 年改造后测量灵敏度由原来的 $^{236}\text{U}/\text{U} \sim < 10^{-10}$ 提高到 5×10^{-12} 。美国 LLNL 实验室^[31]2004 年对锕系元素 ^{239}Pu , ^{236}U 和 ^{237}Np 进行 AMS 测量研究, ^{236}U 的探测限为 10^5 个原子。2007 年,澳大利亚 Wilcken 和奥地利 Barrows 等^[32]合作测量同一个样品中的 ^{236}U 和 ^{239}Pu , $^{236}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ 同位素的比值 $\sim 0.05—0.50$ 。

3.4 CIAE ^{236}U -AMS 的测量

CIAE HI-13 串列加速器在 AMS 测量中能提供高的端电压,有利于束流传输和能量分辨,但是端电压的增大受高能分析磁铁磁刚度($200 \text{ MeV} \cdot \text{u}$)的限制。本工作中选用的端电压为 7.800 MV,

$^{236}\text{U}^{11+}$ 的剥离几率为 14.3%，能量为 93.3 MeV。HI-13 串列加速器所采用的剥离膜厚度为 $3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的碳膜，以减小散射，提高传输效率。

锕系元素 ^{236}U 的 AMS 测量不存在同量异位素的干扰，主要是同位素的干扰。对于 ^{236}U 的同位素干扰及其来源有：(1) 同位素 ^{238}U 的干扰。 ^{238}U 的干扰一方面来源于与 $^{236}\text{U}^{16}\text{O}^-$ 具有相同质量的 $^{238}\text{U}^{14}\text{N}^-$ 和 $^{238}\text{U}^{12}\text{CH}_2^-$ 。在加速器的端电压 $V_T = 7.800\text{ MV}$ ，电荷态 $q=11^+$ 的情况下，经加速器剥离后 ^{238}U 与 ^{236}U 的能量相差只有 1/1500。另一方面，被测核素 ^{236}U 与其高丰度同位素 ^{238}U 在样品中的含量相差极为悬殊，对于分析过程中的各种非理想因素(溅射过程、散射过程、电荷交换过程和退激过程)所产生的同位素动量连续谱干扰必须予以考虑。这些非理想因素使得一些高丰度同位素的离子改变其能量或运动方向，从而有可能通过分析器，混入被测核素的束流中。虽然这些离子所占高丰度同位素的份额非常小，但其数量与被测核素相比仍然是十分可观的。上述各过程所产生的同位素动量连续谱干扰必须在探测器之前得到有效的抑制。对于重核素，这往往难度更大。(2) 同位素 ^{235}U 的干扰。干扰主要来源于与 $^{236}\text{U}^{16}\text{O}^-$ 具有相同质量的 $^{235}\text{U}^{17}\text{O}^-$ 和 $^{235}\text{U}^{16}\text{OH}^-$ 。 ^{236}U 与其同位素 ^{238}U ， ^{235}U 的能量相接近，无法用能量探测器进行区分。由于它们的飞行速度存在差异，TOF 是 ^{236}U 同位素鉴别的最好探测器。飞行时间法鉴别同位素或质量邻近核素的原理为能量相同但质量不同的粒子在一定距离上的飞行时间也不同。离子的飞行时间由下面公式决定：

$$t = 72d \sqrt{\frac{M}{E}},$$

式中， t 为飞行时间，单位为 ns； d 为飞行距离，单位为 m； M 为质量数； E 为离子的能量，单位为 MeV。

CIAE-AMS 对现有天然铀样品进行测量，初步结果为 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} (8.9 \pm 0.9) \times 10^{-9}$ ，误差主要来源于探测总计数的统计误差。目前的灵敏度约为 10^{-10} 。实验中 TOF 长为 1.8 m，时间分辨为 $\sim 800\text{ ps}$ ，图 4 给出了飞行时间-能量双维谱。样品中 ^{236}U 含量偏高的原因可能为(1)在保存过程中受污染；(2)铀矿中的天然裂变反应，这个因素影响较少。重核素 ^{236}U AMS 测量的主要问题是效率低、束流传

输困难和同位素本底干扰，这是以后工作的重点。同时由于现有样品的 ^{236}U 丰度偏高，将寻找更好的空白样品检测系统的探测限。

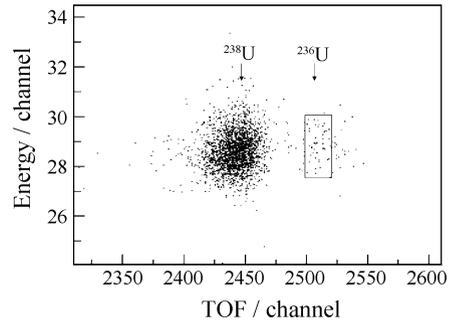


图 4 飞行时间-能量双维谱

总之，锕系重核素 ^{236}U 的 AMS 测量不存在同量异位素的干扰，主要是同位素的干扰，TOF 是 ^{236}U 同位素鉴别的最好探测器。但是对于重核素 ^{236}U -AMS 测量，TOF 时间分辨较差和传输效率低严重影响了其探测限。目前 AMS 探测限 $^{236}\text{U}/\text{U} \sim 10^{-12}$ ，还没有达到 ^{236}U 的天然水平 ($\sim 10^{-14}$)。要对自然界中的 ^{236}U 进行深入的研究，目前只有 AMS 才能胜任。这要求 AMS 注入磁分析磁铁有很高抑制相邻强峰拖尾的能力，采用大半径 ($R > 50\text{ cm}$) 的双聚焦磁铁，质量分辨至少大于 500，当注入 $^{236}\text{U}^{16}\text{O}^-$ 时，能把 $^{235}\text{U}^{16}\text{O}^-$ 给抑制掉。另外，高能分析器应该包括高分辨的磁分析器和静电分析器，使得对同位素分辨能力好于 10^8 。

4 结束语

^{236}U 在自然界的含量极微， $^{236}\text{U}/\text{U}$ 的原子个数比 $\sim 10^{-10} - 10^{-14}$ ，地壳中的 ^{236}U 粗略估算为 11.7 t，宇宙射线产生的 $\sim 20\text{ kg}$ ，海水中 ^{236}U 的量相对要小于 0.5 kg，核应用事业的发展是地球上 ^{236}U 的主要来源 $\sim 10^3\text{ t}$ 。

^{236}U 的半衰期很长，而且其自然含量很低，是一个很好的 100 万年中子注量率积分器。 ^{236}U 含量水平的提高可以被用作人类从事核活动的指纹，通过测量 ^{236}U 可以知道核裂变反应产物对环境的污染、监督地下核试验和监测来自核设施的释放。如果能测定 ^{236}U 的分布，将会为水文学、水文地理学和海洋学等研究领域提供很多有用的信息，或者可以应用到对于非常古老地层表面暴露年龄和灰岩侵

蚀速率的研究。目前地球上自然和人工的²³⁶U分布还未能确定,这需要进一步的研究。

加速器质谱技术是准确测量痕量²³⁶U($^{236}\text{U}/\text{U} < 10^{-8}$)的最好办法,国际上主要AMS实验室都正在发展重核素²³⁶U-AMS测量方法。锕系元素²³⁶U的AMS测量不存在同量异位素的干扰,主要是同位素的干扰。TOF是²³⁶U同位素鉴别的最好探测器,但是对于重核素²³⁶U-AMS测量,TOF时间分辨率较差和传输效率低严重影响了其探测限。高分辨的注入磁分析器和高能分析尤其重要。目前AMS探测限约为 $^{236}\text{U}/\text{U} \sim 10^{-12}$ 。CIAE加速器质谱小组通过对同位素干扰鉴别的多方面研究,已经初步建立了²³⁶U-AMS测量方法,得到了灵敏度约为 10^{-10} 的初步结果。

参考文献(References):

- [1] Li M Q. Nuclear Industry Conspectus. Beijing: Atomic Energy Press, 1995. 6(in Chinese).
(李民权. 核工业生产概念. 北京: 原子能出版社, 1995, 6.)
- [2] Marsden O J, Livens F R, Day J P, *et al.* *Analyst*, 2001, **126**: 633.
- [3] Richard B F, Virginia S S. Table of Isotopes, 1996.
- [4] Fabryka-Martin J T. Production of Radionuclides in the Earth and Their Hydrogeologic Significance, with Emphasis on Chlorine-36 and Iodine-129. Ph. D Dissertation, University of Arizona, 1988.
- [5] Peter Steier, Max Bichler, Keith Fifield L, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2008, **266**: 2246.
- [6] Distilling Uranium from Seawater. Beijing: Atomic Energy Press, 1980(in Chinese).
(海水提铀译文集. 北京: 原子能出版社, 1980.)
- [7] Ivanovich M. *Radiochim Acta*, 1994, **64**: 81.
- [8] Vance R. In: What 40 Years of Red Books Can Tell Us? Proceedings of the 31th WNA Annual Symposium, World Nuclear Association, 2006.
- [9] Mironov V P, Matusevich J L, Kudrjashov V P, *et al.* *J Environ Monit*, 2007, **4**: 997.
- [10] Hotchki M A C, Child D, Fink D, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B172**: 659.
- [11] Boulyga S F, Heumann K G. *J Environ Radioact*, 2006, **88**: 1.
- [12] Ketterer M E, Hafer K M, Link C L, *et al.* *J Environ Radioact*, 2003, **67**: 191.
- [13] Donhue D. *J Alloys Comp*, 1998, **271**: 11.
- [14] Peter Steier, Robin Golser, Walter Kutschera, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2002, **B188**: 283.
- [15] Kenneth H P, Linas R K, Albert E L, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 1996, **B113**: 445.
- [16] Peter Steier, Franz Dellinger, Oliver Forstner, *et al.* Analysis and Application of Heavy Isotopes in the Environment. 11th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry. Rome, Italy. September 14-19, 2008.
- [17] Richter S, Alonso A, De Bolle, *et al.* *Int J Mass Spectrom*, 1999, **193**: 9.
- [18] Buchholza B A, Brown T A, Hamilton T F, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2007, **B259**: 733.
- [19] Muller R A. *Science*, 1977, **196**(4289): 489.
- [20] Pырser K H, Liebert R B, Litherland A E, *et al.* *Rev Phys App*, 1997, **12**: 487.
- [21] Jiang S H, Jiang S, Ma T J, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 1990, **B52**: 285.
- [22] Jiang S, Jiang S H. *Atomic Energy Science and Technology*, (3): 1991, **25** (3): 40(in Chinese).
(姜山, 蒋崧生. 原子能科学技术, 1991, **25** (3): 40.)
- [23] Jiang S, He M, Jiang S H, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B172**: 87.
- [24] He M, Jiang S, Chen Q, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B172**: 177.
- [25] Jiang S, He M, Dong K. J, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2004, **B223—224**: 750.
- [26] Jiang S, He M, Yuan J, *et al.* *Journal of Chinese Mass Spectrometry Society*, 2007, 28: 21(in Chinese).
(姜山, 何明, 袁坚等. 质谱学报, 2007, **28**: 21.)
- [27] Zhao X L, Nadeau M J, Kilius L R, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 1999, **B92**: 249.
- [28] Berkovits D, Feldstein H, Ghelberg S, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B172**: 372.
- [29] Steier P, Golser R, Kutschera W, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2002, **B188**: 283.
- [30] Vockenhuber Ch, Ahmad I, Golser R, *et al.* *International J Mass Spectrometry*, 2003, **223—224**: 713.
- [31] Brown T A, Marchetti A A, Martinelli R E, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2004, **B223—224**: 788.
- [32] Wilcken K M, Barrows T T, Fifield L K, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2007, **B259**: 727.

^{236}U and Its Measurement with Accelerator Mass Spectrometry^{*}

WANG Xiang-gao¹, HE Ming¹, LI Chao-li¹, WANG Wei¹, ZHANG Da-wei^{1, 2},
HUANG Chun-tang^{1, 2}, SHI Guo-zhu^{1, 2}, SHEN Hong-tao^{1, 2}, WU Shao-lei^{1, 2},
HE Guo-zhu^{1, 2}, GONG Jie¹, LU Li-yuan¹, WU Shao-yong^{1, 2}, JIANG Shan^{1, #}

(1 *China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;*

2 *College of Physics Science and Technology, Guangxi University, Nanning 530004, China*)

Abstract: ^{236}U is a long-lived radionuclide with half-life of $2.342(3) \times 10^7$ a. The ratio of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ is about 10^{-14} in the natural Uranium. The origin and production of ^{236}U in globe are introduced and estimated in this paper, respectively. The major applications of ^{236}U as a 100-million year neutron flux integrator, as a “fingerprint” for monitoring nuclear environment and nuclear activity, and as a tracer in geological studies are briefly summarized. The accelerator mass spectrometry(AMS) measurement of ^{236}U in the world and the research on HI-13 tandem accelerator at China Institute of Atomic Energy(CIAE) is also mentioned in this paper.

Key words: ^{236}U ; accelerator mass spectrometry; environment monitor

* **Received date:** 18 Feb. 2009; **Revised date:** 18 Jun. 2009

* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China and China Academy of Engineering Physics Foundation(10576040)

Corresponding author: Jiang Shan, E-mail: jiangs@ciae.ac.cn