

加速器质谱学实验技术进展

周善铸

(中国科学院上海原子核研究所)

40多年来,加速器的唯一目的似乎就是提供束流以进行核物理或其他各种实验,对加速器本身所具有的巨大分析能力则一直未被发现和利用。即使在1938年, Alvarez和Cornoy^[1]将美国贝克莱劳伦兹实验室的回旋加速器用作一台质谱计鉴定了³He核素之后,仍然未引起公众的注意。一直到1977年, R. A. Muller^[2], A. Z. Schwarzschild^[3]和 C. L. Bennett^[4]等人几乎同时发表了他们利用回旋加速器和串列加速器来寻找夸克、超重元素和¹⁴C年代测定之后才引起了广泛的兴趣,世界上各加速器实验室随之而风起云涌地开展这项研究。目前在研究自然界的微含量长寿命同位素方面,超灵敏质谱技术已经成为一个有力的分析工具。由于它直接探测被测核素本身,不受其半寿命和衰变特性的影响,对它的兴趣正在日益扩大,已发展成为一门新的学科分支——加速器质谱学。随着新一代,主要是超导加速器的发展,这种技术正在应用到越来越重的同位素上去。近年来,一些力量雄厚的大实验室正在利用这种技术开展基本物理量的测量,例如,极长寿命核的半衰期,阈能附近的核反应截面等,并且已经取得了一些很好的结果。

40年前开始的¹⁴C衰变法测定年代,无疑是一项大的进展,但存在一定的局限性。在一个每分钟只有一次衰变计数的¹⁴C样品中,实际上还存在着 4×10^9 个¹⁴C原子,其效率是非常低的,而且核素的寿命越长效率越低。这就限制了它对某些珍贵的和古老的样品的应用。因此,30多年来一些有远见的科学家一直在探索直接测量的方法。过去他们努力

的主要方向是不断改进传统的质谱仪,但是对于微含量($\leq 10^{-10}$)的测量来说,其同量异位素的干扰本底始终难以克服。例如,¹⁴C和¹⁴N的质量差仅仅是 10^{-6} (157KeV),要能够区分它们,质谱仪的分辨率必须达到 $\frac{M}{\Delta M} \geq 10^5$ 。这就需要大大牺牲质谱仪的效率,实际上就根本难以工作。而加速器质谱法之所以能够脱颖而出,除利用了加速器本身的分析能力外,把离子加速到较高能量是其关键,因而核物理实验中发展起来的一套带电粒子鉴别和探测技术就可以用来干净地排除上述干扰。

七、八年来,这门新技术得到了迅速的发展,除每二年召开一次专题性的国际会议之外,在核物理、加速器及各种分析会议上几乎都有特邀报告,目前开展这项工作的有大约30个实验室遍布世界12个国家。表1列出了这些实验室的分布和研究概况。

国内已有一些文章介绍过这门新技术的基本原理和初期情况^{[5][6]},亦已有二篇初步工作报告^{[7][8]}。本文将着重介绍加速器质谱学的最近实验技术进展及其发展趋势,至于其近期的应用进展概况及其与核物理的关系作者已有另文介绍^[9]。

实验技术进展

进一步提高灵敏度和精度的主要关键在于能够有效地排除掉大量同量异位素的干扰。因为它与欲测的核素在质量和能量上差别极小而相对数量却强得多。分离干扰同位

素的方法有好多种,但尚无一种通用的方法,必须针对具体的核素采用不同的方法。每一种方法往往还有局限性,例如负离子源法只能对于那些干扰核素不能形成稳定的负离子的核素才有效,如 ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl 和 ^{129}I 等。射程分离法除了要求干扰核素的原子序数 Z 必须大于欲测核素外,还只对较轻的核素才较有效,如 ^{10}B 和 ^{10}Be 的分离。对于较重的核素,由于原子序数 Z 的相对差别小,很难分得很干净。化学分离法则只能作为一种辅助的方法,因为要达到高纯度是很困难的。本文将着重介绍一种近年内发展起来的全削电子法。这个方法的关键是将离子加速到较高能量后用削裂箔将二种核素的全部外圈电子全削去,再用静电或磁分析的方法

分离。实际上1938年对 ^3He 的首次鉴定就是采用这个原理。但是要削去全部电子就必须使离子的速度超过所有轨道电子的速度,即要达到“玻尔”能量 $^{[10]}$,其值与核的原子序数有关。例如要达到 $^{26}\text{Al}^{13}$ 和 $^{26}\text{Mg}^{12}$ 的分离就至少需要加速到100MeV以上。能量越高,效果越好。已用这种方法分离的核素有: ^7Be — ^7Li , ^{26}Al — ^{26}Mg , ^{36}Cl — ^{36}S , ^{41}Ca — ^{41}K 和 ^{59}Ni — ^{59}Co 等。美国阿贡的Tandem—Linac系统,法国Grenoble的回旋加速器和Orsay的ALICE以及西德Munich的Tandem—P—estacelerator系统均已做了不少这方面的工作。图1是阿贡系统的实验用作加速器质谱仪时的离子束流输运系统示意图 $^{[11]}$ 。他们先用串列加速器把 ^{59}Ni 加速到93.5MeV,再

表一 加速器质谱学研究概况一览表

编号	国别	实验室	加速器类型	已做工作	打算做工作
1	美	Pennsylvania		^{10}Be , ^{26}Al	
2		Rutgers		^{10}Be	
3		Seattle		^{10}Be , ^{14}C	
4		Rochester	串列加速器	^{14}C , ^{36}Cl , ^{129}I , ^{193}Ir 夸克	^{41}Ca
5		Yale		^{10}Be	
6		Arizona		^{14}C	
7		Cal, Tech		夸克	
8		Ohio	静电加速器	夸克	
9	国	Berkeley	回旋加速器	^{14}C	^{10}Be , ^{26}Al
10		Argonne	串列+超导直线加速器	^{26}Al , ^{32}Si , ^{44}Ti , ^{59}Ni , ^{64}Ni , ^{59}Fe , σ , $T_{1/2}$	
11		Washington D.C (NRL)	扇形聚焦回旋加速器	^3H	
12	加拿大	McMaster		^{36}Cl	^{26}Al
13		Chalk River	串列加速器	^{14}C	
14		Toronto		^{14}C , ^{26}Al , 夸克	^{10}Be , ^{36}Cl , 离子微探针
15	法	Saclay	串列加速器		
16		Gif-Sur-Yvette		^{10}Be ^{14}C	
17		Grenoble	回旋加速器	^{10}Be	
18		Orsay	线性+回旋加速器	^{10}Be , ^{26}Al , ^{41}Ca	

续表

19	澳大利亚	Sydney	串列加速器	^{14}C	
20		Lucas Heights		$^{14}\text{C}, ^{36}\text{Cl}$	
21	中国	上海	回旋加速器	^3H	
22		北京	静电加速器	^3H	
23	西德	UNILAC	重离子线性加速器	^{205}Pb	
24		Munich	串列+线性共振后加速器	$^{10}\text{Be}, ^{14}\text{C}, ^{36}\text{Cl}$	^{41}Ca
25	日本	Nagoya	串列加速器	^{14}C	
26		Tokyo	串列加速器	^{10}Be	
27	英国	Oxford, Uni	串列加速器	^{14}C	
28		Oxford	同位素分离超灵敏注入器	$^{194,195,196}\text{Pt}, ^{188,189}\text{Os}, ^{193,194,195}\text{Ir}$	
29	以色列	Rehovot	串列加速器	$^{10}\text{Be}, ^{36}\text{Cl}$	
30	瑞典	Uppsala	串列加速器	^{14}C	
31	瑞士	Zürich	串列加速器	$^{10}\text{Be}, ^{14}\text{C}, ^{26}\text{Al}, ^{36}\text{Cl}$	^{129}I
32	荷兰	Utrecht	串列加速器	$^{10}\text{Be}, ^{14}\text{C}$	
33	新西兰	Wellington	串列加速器	^{14}C	

输入到超导线性加速器加速到328MeV 后用一片厚 $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的碳箔进行削裂，随之用磁分析器分出 ^{59}Ni 离子，其干扰核素 ^{59}Co 原先比 ^{59}Ni 强 10^7 倍，通过这个系统后，很干净地分开了 ^{59}Co 和 ^{59}Ni 离子。图2是测量结果的三维图^[10]。

图3是法国 Orsay 的 ALICE 系统测量 $^{1}\text{Ca}-^{41}\text{K}$ 的实验示意图^[12]。它亦已经用于 $^{9}\text{Al}-^{28}\text{Mg}$ 的分离。

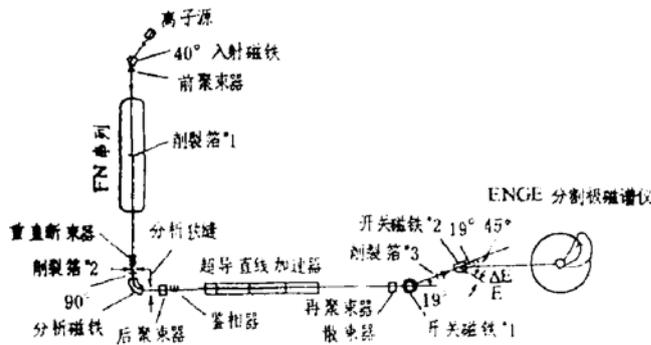


图1 阿贡实验室串列—线性加速器系统

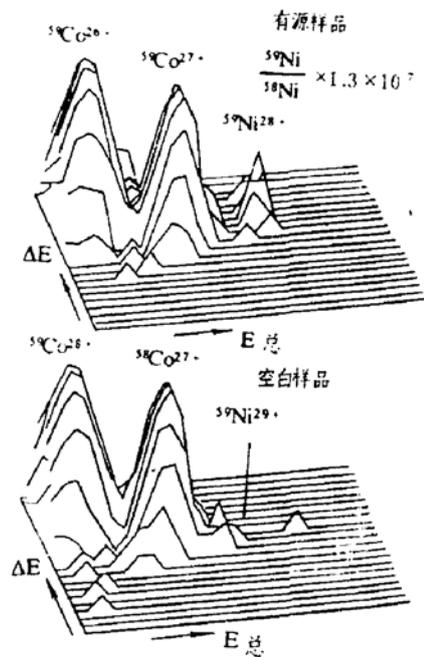


图2 328MeV的离子经 $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 碳箔削裂并经过磁分析后的三维谱图

西德Munich在串列——后加速系统上把 ^{36}Cl 和 ^{36}S （另一个干扰核素 ^{36}Ar 不形成稳定的负离子）加速到155MeV后用三块削裂箔进行全电子削裂，在这个能量下，大约

7%的 ^{36}Cl 离子达到17个电子的全削裂，因而能与全削去16个电子的 ^{36}S 达到干净的分离。因为 ^{36}Cl 形成负离子的效率较高，所以这种方法测 ^{36}Cl 的灵敏度达到 4×10^{-15} 。

^{36}Cl 的应用面很广，其中半衰期为 3.01×10^5 年，可以用来确定地下水的年代以选取核废物贮存地点以及确定陨石坠落年代等。Munich已经测量了不少这方面的样品，例如 ^{36}Cl 在地表水、沉积物、南极及格陵兰冰层以及在陨石、月球和古生物样品中的含量，以及宇宙射线在石灰石的不同深度中产生的 ^{36}Cl 含量变化等。图4是实验示意图^[15]。

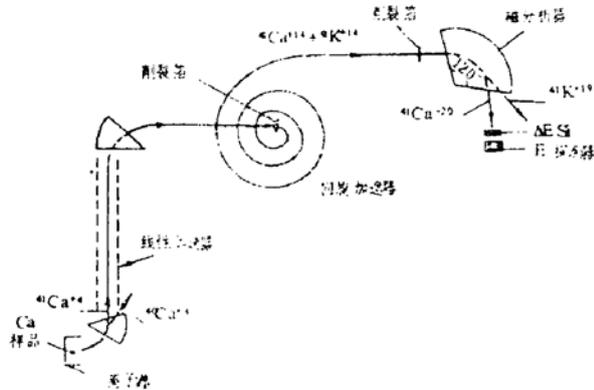


图3 法国Orsay的ALICE系统实验示意图

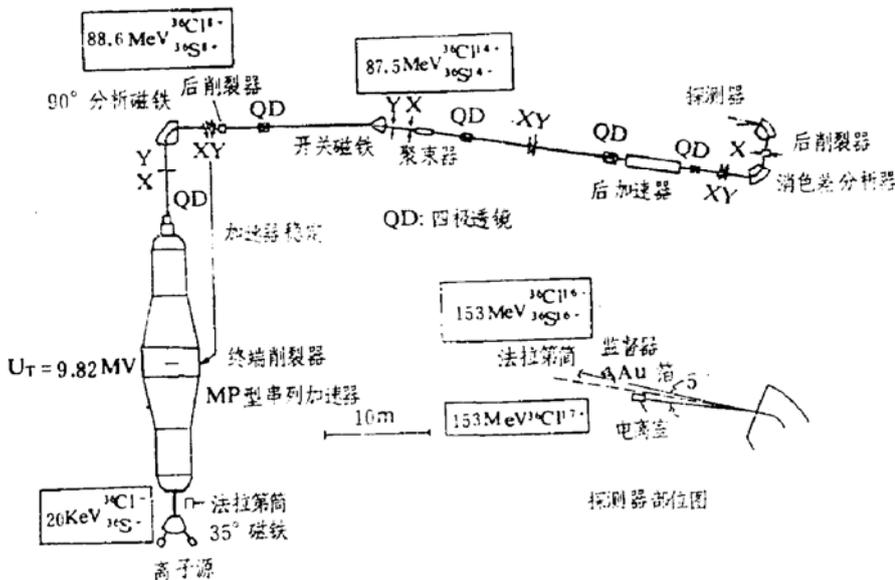


图4 西德慕尼黑的串列——后加速系统的离子束流运输过程

发展趋势

提高测量精确度和灵敏度，降低费用，建造更经济方便的专用加速器是当前主要的努力方向。不同的实验室正在分头进行努力。

1. 提高精度

与传统的衰变法相比，在灵敏度方面是远远地超出了，但在精度方面还不能超过，只是接近。衰变法经过数十年的不断改进，一般已达到 $\pm 1\%$ 的精度，对某些现代的样

品甚至达到0.2%。由于加速器法的相对复杂性，在样品的制备、溅射、电离和加速过程中其同位素比都可能产生变化，其次在运输过程中还可能发生电荷交换，这些通常称之为分馏现象都可能导致误差。另外，样品制成后只能测量一次，不像衰变法可以多次重复测量，因此统计误差也是一个主要贡献。多年来，一些实验室致力于这方面的改进，做了不少细致的工作，如加拿大的Toronto组，美国的Rochester组、费城大学组等对1万年以内的 ^{14}C 测量已经接近或者达到

1%的精度。对于更古老或者珍贵的样品来说，即使10%甚至更大的误差也是可贵的。新建的一些专用加速器已经在设计时就注意到这个问题。目前，不同的加速器倾向于有一个分工，凡大量的或者高精度的测量一般在专用的小加速器上进行，而原有的大加速器实验室则利用他们相对雄厚的人力和设备去提高灵敏度和处理应用于核物理或其他领域中的新问题。

2. 提高灵敏度

目前测量同位素比的灵敏度已经达到 10^{-15} ，核反应截面测到毫巴级而且达到微巴级看来也是可能的。但是如果再提高一步的话，其应用前景将是非常吸引人的，但是提高灵敏度的关键是什么呢？美国阿贡组为此进行了一次探索性的实验^[14]。结果表明继续提高的潜力是乐观的，因为结果表明主要困难不在本底而在离子源的效率。他们用42MeV的 α 粒子通过 ${}^9\text{Be}(\alpha, \alpha_2n){}^7\text{Be}$ 反应制备样品，图5是他们测得的二维谱，测量表明 ${}^7\text{Be}$ 与干扰核素的分离是干净的。空白样品在20分钟内仅测到一个 ${}^7\text{Be}$ 计数，所以关键还在于要提高负离子源的效率。通过称量实验前后样品量的减少，测定其溅射率，求得其总的探测效率是 1.7×10^{-5} 。目前不少实验室都在改进离子源的结构以提高效率。一旦总的效率有了重大提高之后，许多过去由于灵敏度不够难以测量而又非常感兴趣的物理量都可以进行尝试。例如， ${}^7\text{Li}({}^7\text{Li}, \gamma){}^{14}\text{C}$ 反应截面，某些双中子俘获截面如 ${}^{127}\text{I}(n, \gamma){}^{128}\text{I}(n, \gamma){}^{129}\text{I}$ 反应以及某些末核是非常长寿命核素的重离子反应都可以进行。

表2是美国阿贡国家实验室W. Kutschera^[14]提出来的非常感兴趣的实验。当然要满足这些实验，其效率要有重大的提高，目前看来还有不少的工作要做，然而一旦这些目的达到之后，加速器质谱仪在研究自然的基本物理量方面将成为一个极其有力的工具。

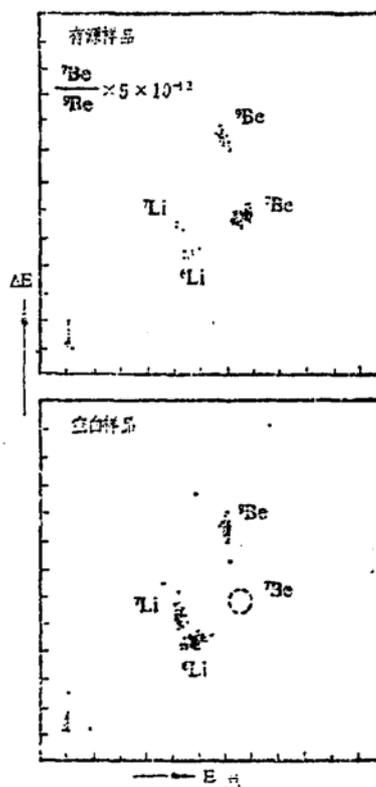


图5 ${}^7\text{Be}$ 实验的粒子鉴别二维能谱。上图数据积累10分钟，下图20分钟

3. 建造高精度、低费用的小型专用加速器

超灵敏质谱技术起始于1977年，几乎同时在回旋加速器和串列加速器上发展起来的，但由于串列加速器使用的是负离子源，对排除干扰本底有特殊的优越性，所以一直得到优惠的发展。目前正在开展这项工作的数十台加速器中，80%以上是串列式的，回旋加速器只有三台。过去建造的专用加速器也全是串列式的。但回旋加速器本身所具有的巨大选择能力是串列加速器所不及的，因为在回旋加速过程中，离子随着所加电场的相位转100—200圈，就相当于经过数百次的选择，离子的荷质比只要相差千分之一就能够完全被排除。

R. A. Muller^[15]曾在劳伦兹实验室的回旋加速器上进行过实验，当束流10微安时高频只要失调1%，就完全没有束流，在半小时没有一个计数，本底压抑因子好于

表 2

高效超灵敏质谱仪上感兴趣的实验

感兴趣的反应	典型反应率	欲测的物理量 (大致范围)
1 辐射俘获:		
$^{48}\text{Ca} (^{12}\text{C}, \gamma)^{60}\text{Fe}$	10 ³ /小时	$\sigma(10^{-8}\text{b})$
$^3\text{He}(\alpha, \gamma)^7\text{Be}$	5/小时	$\sigma(10^{-10}\text{b})$
2 双 β 衰变:		
$^{82}\text{Se} (\beta\beta)^{82}\text{Kr}$	60/小时千克(^{82}Se)	$T^{1/2} (10^{19}\text{年})$
$^{76}\text{Ge} (\beta\beta)^{76}\text{Se}$		
3 地质的太阳 ν 探测:		
$^{41}\text{K} (\nu, \beta^-)^{41}\text{Ca}$	10 ⁴ /吨(KCl)	ν 俘获率

10^{-17} , 其质量分辨本领好于 20000:1, 虽然不是完全分离, 但是可以分辨开 ^{10}Be 和 ^{10}B 。

上述非常优异的对非共振质量粒子的排除能力如果再配以负离子源, 那末对某些测量来说就可以排除所有本底干扰甚至可以不必再用粒子鉴别选择系统。

基于上述思想, 贝克莱组已经建造了一台专用的 40KeV 的小回旋加速器, 使用一个小型的 Cs 负离子源, 最后的轨道半径仅仅 10.5cm。整个体积仅相当于一只书桌大小, 由于能量低, 不存在任何辐射危险, 不需要任何屏蔽, 操作运行亦很简单。据报导, 碳离子流已达 0.1 微安, 要达到几个微安估计是没有问题的, 峰值束流与本底比是 5×10^{10} , 质量分辨大约 30000:1^[16]。

表 3 列出了当前最感兴趣的一些同位素测量中各种可能存在的本底以及分离它们所需要的分辨本领, 从表中比较可以看到, 30000:1 的分辨率加上负离子源可以解决表中所列的多数同位素。目前他们正在这台他们称之为 Cyclotron 的加速器上建造外离子源, 一旦建成之后不但可以迅速变换样品而且可以提高效率。他们的目标是要使所有目前拥有普通质谱仪的地方都有可能使用上这种造价小, 安全方便的 Cyclotron, 当然要达到这个目的, 还有许多工作要做。而且最后还要看它在价格、精度、灵敏度和用途等方面与

表 3 各种感兴趣同位素测量中遇到的本底及其所需要的分辨率

放射性同位素	本底	所需分辨率	讨 论
^3H	^3He	150,000	负离子消除
	HD	230	易分辨
	H_2	400	易分辨
^{10}Be	^{10}B	170,000	可分辨
	^9BH	1500	易分辨
^{14}C	^{14}N	83,000	负离子消除
	^{13}CH	1800	易分辨
	$^{12}\text{CH}_2$	1100	易分辨
^{26}Al	^{26}Mg	6000	易分辨
^{32}Si	^{32}S	15000	可分辨
^{36}Cl	^{36}Ar	47000	负离子消除
	^{36}S	20000	可能(?)
^{39}Ar	^{39}K	64000	非常困难
^{41}Ca	^{41}K	39000	用 CaH_3^+ ions
^{53}Mn	^{53}Cr	82000	困难
^{129}I	^{129}Xe	62000	负离子消除

美国通用离子公司生产的专用小串列加速器的比较竞争上。

总之, 加速器质谱学的发展正方兴未艾, 它既有实际应用的重要价值也有许多基础研究有待探索, 而且无论是在别的领域还是核物理本身的应用方面, 还是实验方法与
(下转 1 页)

(上接11页)

技术的改进都还在向纵深发展, 值得我们拭目以待。

参考文献

- (1) L.W. Alvarez and R. Cornog, Phys. Rev 56 (1939) 379
- (2) R.A. Muller et al, Science, 196 (1977) 521
- (3) A.Z. Schwarzschild et al, Bulletin of the American Physical Society, 22(1977) 94
- (4) C.L. Bennett et al, Science, 198 (1977) 508
- (5) 薛祉纶等, 核技术, 2(1981) 1
- (6) 蒋崧生 俞安孙, 自然杂志, 5 (1981) 378
- (7) 周善铸等, 核技术, 5 (1984) 30
- (8) 蒋崧生等, 核技术, 6 (1984) 8
- (9) 周善铸, 即将发表
- (10) W. Kutschera, Radiocarbon, 25 (1983) 677
- (11) A.E. Litherland, Pso. Int. Nucl. Phys. Florence (1983) Vol I, 705
- (12) G.M. Raisbeck, Proc. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne May 11(1981) 23
- (13) P.W. Kubik et al, Nucl. Instr. and Meth. B5 (1984) 326
- (14) W. Kutschera, Proc. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne May 11(1981) 43
- (15) R.A. Muller et al, Proc. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne May 11 (1981) 342
- (16) J.J. Welch et al, Nucl. Instr. and Meth. B5 (1984) 230