

文章编号: 1007-4627(2000)04-0231-05

# AMS 重核素测量的入射离子 X 射线探测法\*

蒋崧生, 何明

(中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413)

**摘要:** 介绍了在加速器质谱学中发展的入射离子 X 射线的探测技术, 以便应用于测定中重同位素的同量异位素鉴别. 描述了在中国原子能科学研究院加速器质谱计上建立的入射离子 X 射线探测装置和实验结果. 通过测量入射离子 X 射线, 实现了<sup>64</sup>Cu 测量中对同量异位素<sup>64</sup>Ni 和<sup>64</sup>Zn 的鉴别, 以及<sup>79</sup>Se 测量中对<sup>79</sup>Br 的鉴别.

**关键词:** 入射离子 X 射线探测; 同量异位素鉴别; 加速器质谱

**中图分类号:** TL816+.1, TL817+.4 **文献标识码:** A

## 1 前言

加速器质谱学(AMS)的发展为自然界长寿命同位素<sup>10</sup>Be, <sup>14</sup>C, <sup>26</sup>Al, <sup>36</sup>Cl, <sup>41</sup>Ca 和<sup>129</sup>I, 以及其它微量同位素的测定和应用开创了新途径<sup>[1]</sup>. 加速器质谱法是一种直接记录原子的方法. 加速器质谱计不同于普通质谱计, 其主要点在于它具备同量异位素的鉴别能力, 从而大大地提高了灵敏度. AMS 中常用的同量异位素鉴别方法是基于当离子达到一定能量(约 MeV/u, 越过 Bragg 峰), 通过物质的能量损失大小与原子序数平方成正比而建立的能量损失率法, 其关系式为  $dE/dx = kZ^2/v$ , 其中  $dE/dx$  为能量损失率,  $Z$  为入射离子原子序数,  $v$  为速度和  $k$  为常数. 能量损失率法主要用于原子序数约小于 20 的同位素. 但是, 随着核素的原子序数增大, 要求被加速离子的能量越来越高. 当离子原子序数达到 40, 其能量要求达到约 200 MeV 才能满足前面所述的能量损失率关系式, 这对现有的绝大多数 AMS 系统是很难达到的, 所以 AMS 测定重核依靠能量损失率法是十分困难的. 为了测定重核, 曾发展了充气磁铁法, 这方法是基于当离子通过充有稀薄气体的磁谱仪时, 这些离子将与气体原子发生碰撞, 它们的电荷态将发生变化, 形成一平均电荷态的轨迹. 离子的平均电荷态是原子序数的函数, 对于邻近的同量异位素, 它们的平均电荷态不同, 从而离

子轨迹也不同. 但是, 随着原子序数增大, 鉴别同量异位素的能力变差. 目前有多家实验室开展入射离子 X 射线探测的研究<sup>[7-9]</sup>. X 射线探测技术目前已应用于测定<sup>36</sup>Cl, <sup>59,63</sup>Ni, <sup>63</sup>Cu, <sup>60</sup>Fe, <sup>79</sup>Se 和<sup>126</sup>Sn 等的研究<sup>[3]</sup>. 本文介绍的入射离子 X 射线方法是近年来发展的 AMS 测定重同位素新方法<sup>[2]</sup>.

## 2 基本原理

利用带电离子激发靶物质原子 X 射线的方法 (PIXE) 已被人们所熟悉. 这种方法是基于用加速的质子、 $\alpha$  离子或其它离子轰击样品, 从样品原子中激发出 X 射线. 通过测定特征 X 射线及其强度, 确定待测元素及其强度. 入射离子 X 射线方法则通过对被加速离子(由样品在加速器的离子源产生)的 X 射线分析来确定待测微量元素或用来研究离子束的成分. 同常规 PIXE 方法相比, 入射离子 X 射线方法可以与电磁分析相结合而具有分析同位素的功能, 这是普通 PIXE 方法所不能实现的.

被加速离子经过磁分析器和静电分析器后, 它具有确定的  $m/q$  值, 其中  $m$  为质量,  $q$  为电荷态(已知). 通过对入射离子的 X 射线的分析则可确定它的原子序数, 从而实现 AMS 的同量异位素的鉴别, 弥补能量损失率法在鉴别重核同量异位素的不足. 除电磁分析器外, 还可以用飞行时间法来确定

\* 收稿日期: 1999-12-02, 修改日期: 2000-10-26

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19675075)

作者简介: 蒋崧生(1938-), 男(汉族), 江西广丰人, 研究员, 从事实验物理研究.

离子质量<sup>[3]</sup>.

理论和实验表明, 入射离子  $K$  壳层电子空穴产额同入射离子的能量与原子序数有关, 而且当入射离子和靶核的原子序数相等时达到峰最大值, 随着靶核原子序数增加, 空穴产额迅速减少, 而后又出现一共振峰. 第一共振是同入射离子  $K$  壳层和靶核  $K$  壳层相匹配, 而第二共振峰则是入射离子  $K$  壳层同靶核  $L$  壳层相匹配. 另一方面, 靶核  $K$  壳电子空穴电子产额随着其原子序数增加而迅速减小. 图 1 是从实验测定 43 MeV Br 和 47 MeV I 入射离子以及靶原子的空穴截面  $\sigma_K$ <sup>[4]</sup>. 表 1 是计算的一些入射离子截面  $\sigma_i$  和靶核的空穴截面  $\sigma_K$ <sup>[5]</sup>.

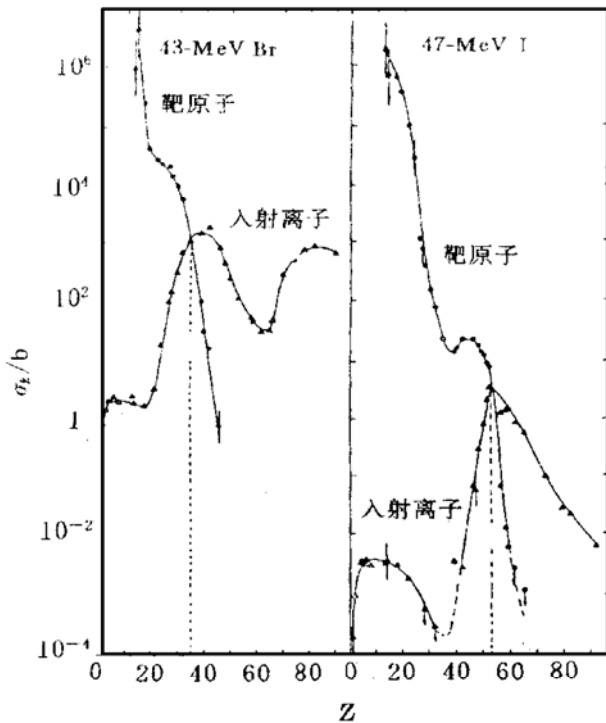


图1 入射离子 Br 和 I 以及靶原子的空穴截面

从图1可以看到, 当靶核原子序数同入射离子的相等时, 入射离子的  $K$  空穴截面同靶核的也相

等. 随着靶原子序数进一步增加, 靶核的截面迅速减少. 靶材料的最佳选择是其原子序数要略高于入射离子的, 这时入射离子的截面仍然处于共振峰附近, 而靶核截面却比入射离子的截面小很多, 从而降低了靶核 X 射线本底.

表1 一些入射离子和靶核的  $K$  空穴截面

$E/\text{MeV}$	$p+t$	$\sigma_i/b$	$\sigma_K/b$
30	Br+ Mg	0.33	
30	Br+ Fe	3.4	5 100
30	Br+ Zr	340	6.4
202	Kr+ Be	600	190 000
202	Kr+ Fe	0.033	8 300
202	Kr+ Zr	4 900	66
47	I+ Al	0.0032	2 800 000
47	I+ Ni	< 0.000 6	400
47	I+ Y	0.003 6	18
47	I+ Pr	1.1	0.005 9
47	I+ Pb	0.021	< 0.000 013
470	Xe+ Al	32	
470	Xe+ Ni	40	180 000
470	Xe+ Y	110	9 300
470	Xe+ Pr	520	160
470	Xe+ Pb	250	26

入射离子  $K$  空穴截面同它的能量, 原子序数与靶原子密切相关<sup>[6]</sup>. 从表2可以看出, 入射离子 X 射线产额随着其原子序数增大而 X 射线产额明显减少, 随着能量增大而增大, 如 100 MeV 的 <sup>80</sup>Se 离子, 其 X 射线产额为 0.05, 能量增至 120 MeV, X 射线产额为 0.08.

探测离子 X 射线方法必须考虑多普勒效应, 因为 X 射线是在入射离子处于运动状态时发射出来的. 由于入射离子能量在靶物质中不断变小, X 射线能谱将发生多普勒展宽, 使得 X 射线能量分辨变

表2 入射离子 X 射线产额同离子质量和靶物质的关系

同位素	$T_{1/2}/a$	相关同量 异位素	测定的 离子	电荷态	靶	$E/\text{MeV}$	$K\alpha X$ 射线产额/ 每入射离子
<sup>32</sup> Si	100	<sup>32</sup> S( $Z+2$ )	<sup>28</sup> Si	7 <sup>+</sup>	CaCO <sub>3</sub>	56	1.0
				7 <sup>+</sup>	Ti	56	0.3
<sup>60</sup> Fe	$1.5 \times 10^6$	<sup>60</sup> Ni( $Z+2$ )	<sup>56</sup> Fe	11 <sup>+</sup>	Cu	102	0.8
<sup>59</sup> Ni	$8 \times 10^4$	<sup>59</sup> Co( $Z-1$ )	<sup>58</sup> Ni	11 <sup>+</sup>	Zn	102	0.5
<sup>79</sup> Se	$1.1 \times 10^6$	<sup>79</sup> Br( $Z-1$ )	<sup>80</sup> Se	10 <sup>+</sup>	Y	100	0.05
				12 <sup>+</sup>	Y	120	0.08
<sup>93</sup> Mo	$4 \times 10^3$	<sup>93</sup> Ni( $Z-1$ )	<sup>92</sup> Mo	11 <sup>+</sup>	Rh	106	0.008
<sup>107</sup> Pd	$7 \times 10^6$	<sup>107</sup> Ag( $Z+1$ )	<sup>106</sup> Pd	11 <sup>+</sup>	Ag	106	0.003

差. 为了获得合适的能量分辨, 要限定靶物质厚度, 以便得到适当的多普勒展宽.

### 3 实验描述

近年来中国原子能科学研究院也在其加速器质谱计上建立的入射离子 X 射线探测装置, 开展了这方面的实验研究. 实验采用的离子探测器为 X 射线探测装置. 经过 $90^\circ$ 磁分析器和静电偏转器选择后, 离子具有一定的质-荷比( $m/q$ ), X 射线探测器可以用来鉴别离子的原子序数. 离子束入射在靶上, 离子束和靶物质相互碰撞的同时, 发出各自的 X 射线. 对于 Se 和 Cu 离子束, 我们选用 Y 作为靶物质, 其厚度分别为 3.8 和 2.0 mg/cm. 用安放在束线 $90^\circ$ 方向上的 Si(Li) 探测器测量 X 射线谱, Si(Li) 探测器的灵敏区面积为 $78.5 \text{ mm}^2$ , 对于 5.9 keV X 射线的能量分辨率为 174 eV (FWHM). Si(Li) 探测器与靶之间用 25  $\mu\text{m}$  Canton 膜作为真空密封. Si(Li) 探测器安置在 $90^\circ$ 方向以避免多普勒展宽和避开静电分析器高压的韧致辐射本底. 当靶移开时, 置于末端的 AuSi 面垒半导体可用于测量离子流强度. 图3是入射离子 X 射线探测系统的示意图(以测定 $^{79}\text{Se}$ 为例).

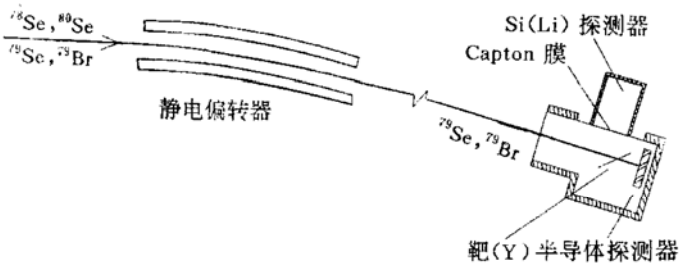


图2 入射离子 X 射线探测系统示意图

### 4 实验结果及讨论

$^{64}\text{Cu}$  是一种放射性核素, 半衰期 12.7 h, 利用这种放射束进行核反应时, 需要知道 $^{64}\text{Cu}$  束流强度, 由于离子源 $^{64}\text{Cu}$  样品中含有 Ni 和 Zn 等杂质元素, 其中 $^{64}\text{Ni}$  和 $^{64}\text{Zn}$  是 $^{64}\text{Cu}$  的同量异位素.  $^{64}\text{Cu}$  放射性束的强度较小, 这时同量异位素本底是不可忽视的. 通常的质谱分析技术(MS) 不能将它们区分开.

在实验中, 进入 X 射线探测器的离子其质量数为 64, 利用探测的 X 射线谱确定离子束中的同量异位素成分. 图3是 $^{64}\text{Cu}$  放射性束的 X 射线谱. 图中

分别呈现出 Ni, Cu 和 Zn 的  $K_\alpha$  和  $K_\beta$  X 射线谱. 从  $K_\alpha$  X 谱线可以得出 $^{64}\text{Cu}$  以及其同量异位素 $^{64}\text{Ni}$  和 $^{64}\text{Zn}$  的相对强度. X 射线探测器探测 $^{64}\text{Cu}$  的  $K_\alpha$  射线的效率为 $5.7 \times 10^{-5}$ . 结果表明了同量异位素 $^{64}\text{Ni}$  和 $^{64}\text{Zn}$  干扰可以被排除.

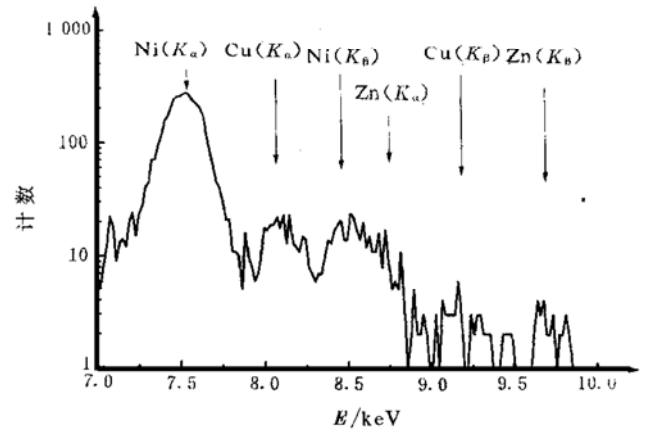


图3  $^{64}\text{Cu}$  放射性束的特征 X 射线谱

$^{79}\text{Se}$  是一种长寿命同位素, 半衰期 $1.1 \times 10^6 \text{ a}^{[10]}$ , 它是裂变产物. AMS 测定 $^{79}\text{Se}$  的困难主要是 $^{79}\text{Br}$  的干扰, 使用入射离子 X 射线探测技术可以将它们区分开. 为了开展 $^{79}\text{Se}$  同位素示踪应用, 我们进行了 $^{79}\text{Se}$  的测定研究, 图4是 X 射线探测器记录的入射离子 X 射线谱, 样品中 $^{79}\text{Se}/\text{Se} = 3.9 \times 10^{-8}$ . 从图中看到, Se 的  $K_\alpha$  X 射线谱同 Br 的能很好地分开, 从而可以求得 $^{79}\text{Se}$  的强度. X 射线探测器探测 $^{79}\text{Se}$  的  $K_\alpha$  射线的效率为 $7 \times 10^{-4}$ . 从图中也看到 Y 靶的  $K_\alpha$  X 射线谱, 但它远离 Se 的 X 射线谱, 其强度未对 $^{79}\text{Se}$  测量产生影响.

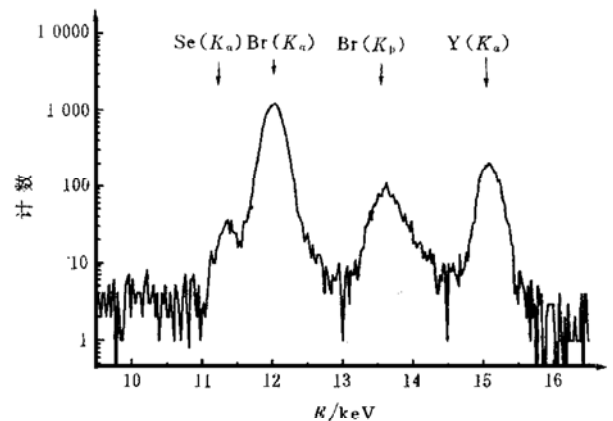


图4 测量 $^{79}\text{Se}$  的入射离子 X 射线谱

入射离子 X 射线探测技术的主要问题是它探测离子的效率低, 通常 AMS 是一种直接记录原子的方法, 它的最高灵敏度可达到 $10^{-15} - 10^{-16}$  (如测定 $^{14}\text{C}$ ). 由于引进了 X 射线探测技术, 大大降低了

离子探测效率, AMS 灵敏度相应降低 4、5 个数量级, 约为  $10^{-10}$ , 可见 X 射线探测技术用测定  $^{36}\text{Cl}$  等较轻核素没有优势. 但是, 这样的灵敏度对于重核素的测定仍然有其应用的价值.

放射性废物安置要求测定长寿命核素的含量, 有些长寿命核素 ( $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{93}\text{Mo}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ) 含量小于  $10^{-6}$  Bq/kg, 用放射性方法测量还有困难. 目前放射性计数法的探测极限为 0.001–0.1 Bq/kg. 基于入射离子 X 射线探测的 AMS 技术在排除分子、邻近同位素和同量异位素干扰的能力上要比 MS 强得多, 测定上述长寿命同位素含量的灵敏度可达  $10^{-6}$ – $10^{-8}$  Bq/kg. 有的长寿命较重核素(如  $^{79}\text{Se}$ ) 作为示踪剂在生物医学中具有潜在应用. 此外, 入射离子 X 射线探测应用于离子束的分析也是令人瞩目的, 利用放射性束进行核反应研究, 其束流强度低, 有时只能达到  $10^6$  ions/s, 这比稳定同位素束流强度小 5 个数量级以上. 这

时, 束流中含有的杂质成分会对被研究的核反应造成不可忽略的影响. 如前所述, 经过电、磁分析器后的主要杂质成分是同量异位素. 在  $^{64}\text{Cu}$  放射性束的核反应研究中, 我们成功地测量到  $^{64}\text{Ni}$  和  $^{64}\text{Zn}$  的杂质成分. 目前我院正在进行  $^{64}\text{Cu}$  的库仑激发函数测量, 测定  $^{64}\text{Ni}$  和  $^{64}\text{Zn}$  的本底成分是该实验中的重要环节.

## 5 结束语

入射离子 X 射线探测方法是中重核同量异位素鉴别的一种新方法. 它不仅可以开拓 AMS 的应用新领域, 而且对微弱离子束中的同量异位素本底成分的鉴别提供一种新手段. 在探测稀有离子和微束核反应测量中, 同量异位素本底的鉴别具有十分重要意义.

## 参 考 文 献:

- [1] Tuniz Claud, Bird John R, Fink David *et al.* Accelerator Mass Spectrometry [M]. 1998, New York, CRC press.
- [2] 蒋崧生, 何明. 入射离子 X 射线探测及其应用 [J]. 物理, 1998, 27: 744–748.
- [3] Fifield L K. Accelerator Mass Spectrometry and Its Applications [J]. Rep Prog Phys, 1999, 62: 1 223–1 274.
- [4] Meyerhof W E, Anholt R. Saylor TK K-vacancy Production in Heavy-ion Collisions. II multiple and single-collision excitation in the  $2p\sigma$  molecular orbital [J]. Phys Rev, 1977, 16 A: 169–189.
- [5] Meyerhof W E, Anholt Robert, Saylor T K *et al.* K-vacancy Production in Heavy-ion Collisions: I experimental results for  $Z \geq 35$  projectiles [J]. Phys Rev, 1976, 14: 1 653–1 661.
- [6] McAninch J E, Bench G S, Freeman S P H T *et al.* PXAMS-Projectile X-ray AMS: X-ray yields and applications [J]. Nucl Instr & Meth, 1995, B99: 541–545.
- [7] McAninch J E, Hainsworth L J, Marchetti A A *et al.* Measurements of  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{59}\text{Ni}$  by Accelerator Mass Spectrometry using Characteristic Projectile X-ray [J]. Nucl Instr Meth, 1997, B123: 137–143.
- [8] Freeman S P H T, Serfass R E, King J C *et al.* Biological Sample Preparation and  $^{41}\text{Ca}$  AMS Measurement at LLNL [J], Nucl Instr & Meth, 1995, B99: 557–561.
- [9] Wagner Michael J M, Synal Hans-Arno, Suter Martin. Projectile X-ray Detection: Application and limit [J]. Nucl Instr & Meth, 1995, B99: 519–523.
- [10] Jiang Songsheng, Guo Jinru, Jiang Shan. Determination of Half-life of  $^{79}\text{Se}$  with the Accelerator Mass Spectrometry Technique [J]. Nucl Instr & Meth. 1997, B123: 405–411.

# Detection of Characteristic X-ray from Projectile Ions for Identification of Isobars in AMS\*

JIANG Song-sheng, HE Ming

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

**Abstract:** In recent years, a new technique to detect the charteristic X-ray from (下转第254页)

\* Foundation item: NSFC (19675075)

## 参 考 文 献:

- [1] Bowman C D, Arthur E D, Lisowski P W *et al.* Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation Using an Accelerator-driven Intense Thermal Neutron Source[J]. Nucl Instr & Meth, 1992, A320: 336– 367.
- [2] 戴光曦. 加速器驱动的核电站——干净现实的核能源[J]. 核物理动态, 1996, 13(4): 53– 58.
- [3] Schmidt K H, Heinz A, Clerc *et al.* Low-energy Fission Studies of Neutron-deficient Projective Fragments of  $^{238}\text{U}$  [J]. Phys Lett B, 1994, 325: 313– 316.
- [4] Gross K D. Nuclear Waste Transmutation and Incineration [Z]. GSI-Nachrichten, 2/99: 14.
- [5] 戴光曦. 实验原子核物理学[M]. 北京: 原子能出版社, 1995, 389– 390.

## Target Experiment, Radioactive Wastes Transmutation and Incineration of Nuclear Reactor Driven by Accelerator

DAI Guang-xi

(*Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

**Abstract:** The recent progresses in accelerator-driven nuclear subcritical nuclear reactor, especially in target experimental data have been reviewed. The data contained all the isotopes producing cross-sections. The reaction products were identified whether they came from the spallation or fission reaction .

**Key words:** spallation reaction; transmutation; incineration; neutron capture

(上接第234页)

projectile ions in accelerator mass spectrometry (AMS) has been developed. After analysis in the routine AMS system, the ions are stopped in an appropriately chosen target in steat of an ion detector and induced X-ray are detected for identification of ions by atomic number. For the application of AMS to higher mass isotopes with mass number  $> 20$  using small accelerator, the characteristic X-rays technique is better than the energy loss method for identification of atomic isobars. For analysis of heavy isotopes, a detection system of projectile X-ray has been set up at the China Institute of Atomic Energy for identification of isobars in the AMS. Some of results in recent measurement of  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{79}\text{Se}$  were reported here. The  $^{64}\text{Cu}$  ions were separated from its isobars,  $^{64}\text{Ni}$  and  $^{64}\text{Cu}$ , and  $^{79}\text{Se}$  ions were separated from  $^{79}\text{Br}$ .

**Key words:** projectile X-ray detection; isobar identification; accelerator mass spectrometry