

加速器质谱技术及其应用

李业祥

(四川大学原子核科学技术研究所, 成都 610046)

本文简要地叙述了加速器质谱技术的发展历程、基本工作原理、实验设备、技术特点以及在各科学领域中的应用。

本世纪初,人们认识到利用放射性同位素的衰变特性,可以对自然界发生的许多过程进行时间绝对刻度。在考古学、地球科学和人类学的研究中,40年代初开始了用 ^{14}C 衰变计数法来测定生物样品和地质样品的年代。但是,采用这种方法,即使对现代样品,每克样品每分钟也只能得到14个计数。对古老样品,计数率会更低,必须采用相当大的样品和很长的测量时间,才能获得精确的年代。对半衰期更长的核素,因其比活度很小,这个问题就更加严重。因此长期以来,人们一直在寻求某种能直接测量 ^{14}C 原子的方法。一些人试图通过不断地改进传统的质谱仪来达此目的。但对 ^{14}C 丰度比小于 10^{-10} 的测量来说,强烈的同量异位素干扰本底始终难以克服。70年代末期发展起来的加速器质谱技术(简称AMS),以它独有的技术特点,实现了对待测同位素原子的直接测量。

加速器质谱技术的基本工作原理是利用串列式静电加速器或回旋加速器,把待测同位素原子转变成离子并加速到几十—几百MeV,再用核物理实验中发展起来的带电离子探测技术,迅速而准确地对待测同位素原子进行计数。

加速器质谱技术的优点是测量灵敏度极高,待测同位素的丰度比可以低至 10^{-12} — 10^{-15} ,而且测量速度快,样品用量少,测量的年代范围广。例如对 ^{14}C 的测量,1—100mg样品,可以测至40000—100000年;对 ^{10}Be 的测量,1mm³—1cm³的岩样,可以测至10—30百万年;对 ^3H 的测量,1l的水样品可以测至160年。G. M. Raisbeck等人^[1]用AMS技术测量南极冰层中

^{10}Be ,只用了10l冰,每个样品只需测量5—20min。在此之前,R. Mccorkell等人^[2]用衰变计数法测量格陵兰冰层中 ^{10}Be ,竟用了 1.2×10^3 l冰,花了几十天时间,更不用说还要花大量时间对样品进行化学分离处理。由于加速器质谱技术直接测量待测同位素的原子,因而不受其衰变特性的影响。正是由于这些特点,加速器质谱技术才得以迅速发展并在微含量长寿命放射性同位素分析方面显示出巨大的生命力和广阔的应用前景。

一、历史的回顾

1939年,美国加利福尼亚大学的L. W. Alvarez和R. Cornog在伯克利新建的60英寸回旋加速器上,试图通过直接测量 ^3He 原子来测量 ^3He 的半衰期。但是,他们没有达到预期的目的。当他们用天然氦来检验 $^3\text{He}^{+2}$ 离子区域的本底时,意外地发现了 ^3He 。由于他们所使用的天然氦是从一个具有一亿年历史的天然气井中取来的,这就足以说明 ^3He 是稳定的了。Alvarez和Cornog测量了天然气井中氦和大气中氦的 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值,发现两者的绝对值分别为 10^{-8} 和 10^{-7} ,可见加速器作质谱分析的效力。

在Alvarez和Cornog之后近40年,由于重粒子探测技术和加速器束流品质等条件的限制,人们一直把加速器提供束流进行各种物理实验作为加速器应用的唯一目的,对加速器自身所具有的巨大分析能力,一直没有给予足

够的重视。1977年,美国劳伦兹实验室 R. A. Muller^[3] 提出用回旋加速器直接测量放射性同位素原子并在加州大学 88 英寸回旋加速器上成功地测定了水样品中的 $^3\text{H}/^2\text{H}$ 值,从而确定了水样品的年代。与此同时, Muller^[4] 和 A. Z. Schwarzschild 等人^[5] 又分别发表了他们用 AMS 技术寻找夸克和超重元素的报告。尔后,美国罗切斯特大学的 C. L. Bennett 等人^[6] 和加拿大西蒙·弗莱塞大学与麦克马斯特大学的 D. E. Nelson 等人^[7] 又分别发表了他们使用 AMS 技术测量 ^{14}C 的报告。美国通用离子公司的 K. H. Purser 等人^[8] 发表了利用 ^{14}N 不能形成稳定的负离子的特性,消除了 ^{14}C 测量中 ^{14}N 干扰本底的报告。1977 年发表的这两篇报告,引起了国际核物理学界的广泛重视。1978 年,在美国罗切斯特大学召开了以“应用加速器进行放射性碳年代测定”为题的 AMS 技术首届国际会议^[9]。1981 年,在美国阿贡国家实验室召开了 AMS 技术的第二次国际会议^[10]。1984 年,在瑞士苏黎世召开了 AMS 技术的第三次国际会议^[11]。1987 年在加拿大多伦多召开了 AMS 技术的第四次国际会议^[12]。这几次国际会议,充分反映了近十年来 AMS 技术的丰硕成果。

纵观 AMS 技术发展的十余年历史,大体经历了三个阶段。70 年代末期是 AMS 技术的初创阶段。这一阶段的设备是借用核物理实验中使用的加速器进行 AMS 的方法学研究,确认其可行性,探索主要的技术问题和解决方

法。到 1984 年召开的 AMS 技术的第三次国际会议,可以认为是 AMS 的建立阶段。在这期间,AMS 的技术装备迅速发展,相当一部分实验室建立了第二代 AMS 设备。其特征是采用大曲率半径 90° 注入磁铁或串列式静电加速器为注入器的后加速系统,采用 Ar 气体循环剥离,实现了同位素的交替注入和完善的高能端分析系统,同时被测核素也大大扩展。1984 年以后,可以认为是 AMS 技术的完善阶段,集中体现在改进技术、提高测量精度、扩展被测核素和研制小型专用设备等方面。现在,除国际上每隔两年要召开一次加速器质谱技术的专业会议外,在核物理、加速器物理和各种分析测量会议上也都有加速器质谱技术内容的特邀报告和研究报告。

二、加速器质谱技术的实验设备

加速器质谱技术的典型实验设备如图 1 所示^[13]。离子源采用铯溅射负离子源,铯束通常为几至几十 keV 的正铯离子束,采用多靶结构,常见的有 8—12 个靶。注入器采用大曲率半径的 90° 注入磁铁。

离子的加速采用串列式静电加速器或回旋加速器。采用回旋加速器的好处是它自身具有质量分辨能力, $\Delta M/M$ 一般可达 10^{-5} ,在离子加速过程中,可以自动抑制荷质比相近的同量异位素离子。目前较为普遍采用的是串列式静电加速器。采用串列式静电加速器有一个显

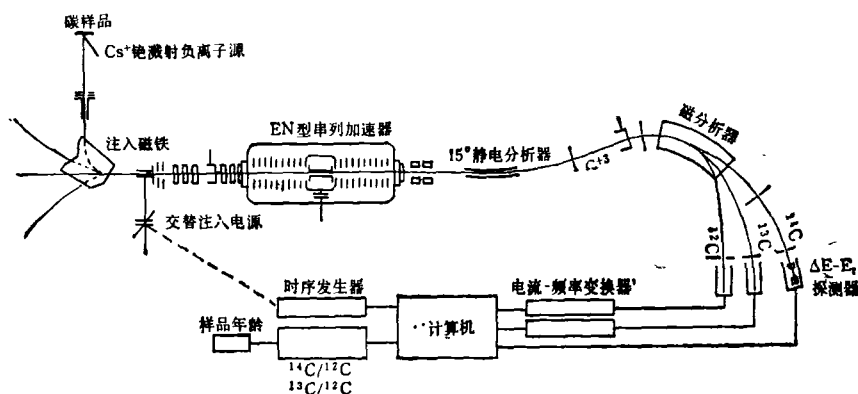


图 1 加速器质谱技术的典型实验设备

著的优点,那就是它能利用某些同量异位素不能形成稳定的负离子的特性,有效地排除同量异位素的干扰。瑞士苏黎世高等工业学院和英国牛津大学^[44]的 AMS 系统就是采用这类装置。不少实验室采用后加速系统,以获得更高的能量。如美国阿贡国家实验室的 AMS 系统^[45]。它采用 FN 串列式静电加速器为注入器和以超导直线加速器为后加速器的系统。这套装置可以把 ^{60}Fe 加速到 360 MeV 电子伏特,铁离子的电荷态可以从 1^- (离子源)— 10^+ (1号剥离箔)— 19^+ (2号剥离箔)— 21^+ (3号剥离箔)。联邦德国慕尼黑加速器实验室的 AMS 系统^[46],采用 MP 串列式静电加速器为注入器,线性共振加速器为后加速器。该系统可以把 ^{36}Cl 加速到 155 MeV,氯离子的电荷态可以为 $^{36}\text{Cl}^{+17}$ 。它的总效率约为 3×10^{-3} ,离子源引出的 $^{36}\text{Cl}^-$ 流强为 $6 \mu\text{A}$,对 ^{36}Cl 的探测极限(定义为每小时探测到一个 ^{36}Cl 事件)为 2×10^{-15} 。还有采用直线加速器为注入器,回旋加速器为后加速器系统的。如加拿大巧克河核科学实验室^[47]和法国奥赛加速器实验室^[48]的 AMS 系统。

离子的探测通常采用 ΔE - E_i 探测器望远镜。一般称 ΔE 探测器为透射探测器, E_i 探测器为停阻探测器。 ΔE - E_i 探测器望远镜是重离子物理实验中常用的探测器。它适用的离子能量范围为 0.1—10 MeV/每个核子。由于离子在 ΔE 探测器中的电离损失率 dE/dx 基本上与离子的 MZ^2/F 成正比(M 为离子的质量, Z 为离子的原子序数, E 为离子的动能),因此,具有相同动能 E 的离子,只要 MZ^2 的值不同, ΔE 探测器的输出信号就不会相同。而 E_i 探测器又可以给出离子的动能。利用这两个信号的组合,就能达到测量和鉴别离子的目的。 ΔE 探测器一般采用电离室, E_i 探测器可以选用电离室或硅面垒探测器。

鉴于 AMS 的基本工作原理,在其束流中不可避免地还存在高丰度同位素离子、同量异位素离子、分子离子碎片及散射和电荷交换过程产生的离子等干扰本底。但 AMS 技术可以

采用多种手段来抑制这些干扰本底。其方法有:(1)利用某些同量异位素不能形成稳定的负离子的特性,由负离子源自动抑制它们。如与 ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl 和 ^{129}I 相对应的同量异位素 ^{14}N , ^{26}Mg , ^{36}Ar 和 ^{129}Xe 均不能形成稳定的负离子。在某些情况下,还可以采用负分子离子来抑制同量异位素干扰本底。如 ^{32}Si 的测量,可以在离子源中经铯离子束作用把 ^{32}Si 和 H_2 转变成 $^{32}\text{SiH}_3^-$,从而抑制掉 $^{32}\text{S}^{[49]}$ 。(2)采用射程分离法。当干扰同位素的原子序数大于待测同位素的原子序数时,在相同动能的条件下,原子序数较大的干扰同位素离子的穿透能力较弱,可以选择适当厚度的阻止膜来抑制它。对端电压 $U_T \leq 10\text{MeV}$ 的串列式静电加速器来说,此法仅适用于 $Z \leq 20$ 的核素。(3)采用全剥离技术。高能离子束与某些物质发生电荷交换碰撞过程会失去一部分核外电子,对能量足够高的离子,通过多次电荷交换碰撞过程,可以把离子的核外电子全部剥去而成为裸核。这种方法要求待测同位素的原子序数大于干扰同位素的原子序数,且能量在 1 MeV—1 GeV/每个核子范围。此外,还可以采用速度分析器或飞行时间技术等措施来选择感兴趣的离子。在某些情况下,还可以在制样时采用化学分离来降低干扰同位素本底。

计算机控制和数据获取系统在 AMS 技术中有十分重要的作用。样品的选择切换、交替注入电源和加速器端电压等的控制、数据的获取与处理一般都是由计算机完成的。计算机的使用,有利于 AMS 测量过程的自动化和标准化,有利于提高测量精度和产率。美国吉拿斯(Genus)公司和加拿大多伦多大学联合研制的第三代 AMS 装置,据称测量精度好于 0.5%,年产率可以超过每年 3000 个样品^[50]。

目前,AMS 的技术水平大致是:(1)测量精度: ^{14}C 现代样可达 0.3%, ^{10}Be 一般可以达 2—3%, ^{36}Cl 一般可达 1%,而 ^{26}Al ,因其束流仅有 0.1—1 μA ,故其测量精度只能达 5—10%。(2)效率:它定义为离子源的转换效率、电荷剥离效率与束流传输效率三者的乘积。 ^{14}C

的测量值可达 1%，²⁶Al 的测量值为 0.02%，其它核素的测量值则介于两者之间。

三、加速器质谱技术的应用

加速器质谱技术的应用是与宇宙成因核素紧密联系在一起的。所谓宇宙成因核素是指直接或间接通过宇宙射线引发的核反应而生成的那一类核素，其中相当一部分半衰期为 10^3 — 10^8 年。人们采用 AMS 技术对某些物质中宇宙成因核素含量及分布进行研究，可以了解漫长历史过程中环境与地质的变化，测定地质事件的年代，研究陨石及宇宙射线的历史，研究人类自身发展和相应的环境变迁以及地球和太阳的许多令人感兴趣的问题。典型的宇宙成因核素如表 1 所示。

宇宙成因核素的一个重要应用就是测定年代，其中以 ¹⁴C 测量最有代表性。¹⁴C 是宇宙射线中子与大气中 ¹⁴N 通过 ¹⁴N(n, p)¹⁴C 核反应产生的。它与碳的其它同位素一起参与碳在生物体与大气之间的循环并保持平衡。由于 ¹⁴C 在大气中的产生速度基本上是恒定的，所以生物组织中 ¹⁴C 与碳的其它同位素的比例是恒定的。¹⁴C/¹²C 值约为 1.2×10^{-12} ，即 1g 生命有机体的碳约含有 6×10^{10} 个 ¹⁴C 原子，相当于每分钟约有 14 个 ¹⁴C 原子发生衰变。当生命过程一停止，¹⁴C 就不再进入生物体，生物体内 ¹⁴C 的含量将随时间的流逝而减少，每经过 5730 年就减少一半。因此，只要测出 ¹⁴C 的含量，就能确定生物体死亡的年代。加速器质谱技术就是通过直接测出生物样品中 ¹⁴C 的原子来确定

其死亡年代的。

加速器质谱技术在考古学中有特别重要的作用，象珍贵的文物、手稿、字画及残骸等样品，它们一般无法进行多量取样以供分析，因而难于采用其它分析手段，唯有 AMS 分析技术最佳。这方面最典型的例子是都灵裹尸布的真伪鉴别。珍藏在意大利都灵大教堂的裹尸布，是一块长 4.36 m、宽 1.1 m 的手织亚麻布，上面印有依稀可辨的 6 英尺高的裸体男子的淡棕色图象——耶稣蒙难图。传说它曾是耶稣遇害时缠裹尸体用过的圣物。由于这块尸布曾经几度消失而后又出现，所以不知其真伪。1988 年 4 月，美国亚利桑那大学、瑞士苏黎世高等工业学院和英国牛津大学三家实验室，同时使用 AMS 技术对都灵裹尸布裁下的邮票大小的样品进行 ¹⁴C 鉴定，最后以 95% 的置信度证明都灵裹尸布是 1260—1384 年间制成的，显然与耶稣遇害的时间相距千年之久。1988 年 4 月 13 日，都灵大主教巴莱斯特雷罗在记者招待会上正式宣布，经科学手段鉴定证明，都灵裹尸布并非圣物，而是中古世纪织出的赝品。

在地球科学、人类科学和环境科学中，人们使用 AMS 技术测定土壤有机物中和人类骨骼中 ¹⁴C 的含量和江河海口悬浮物中 ¹⁰Be 的含量来研究人类环境及人类自身发展变化过程。人们也用这种方法分析地下水中 ³⁶Cl 来确定地下水的年代和地下水的流动。人们还用这种方法分析地下水中 ¹²⁹I 来确认核废料堆放选址是否适宜和核爆炸对人类环境的影响。中国原子能科学研究院用 13MV 串列式静电加速器已测得 ³⁶Ce。北京大学一个研究小组正在该校 6MV

表 1 典型的宇宙成因核素

宇宙成因核素	¹⁰ Be	¹⁴ C	²⁶ Al	³⁶ Cl	⁴¹ Ca	¹²⁹ I
半衰期(年)	1.5×10^6	5730	7.2×10^5	3.0×10^5	1.0×10^5	1.6×10^7
同位素	⁹ Be	¹² C, ¹³ C	²⁷ Al	³⁵ Cl, ³⁷ Cl	⁴⁰ Ca	¹²⁷ I
同量异位素	¹⁰ B	¹⁴ N*	²⁶ Mg*	³⁶ Ar*, ³⁶ S	⁴¹ K	¹²⁹ Xe*
自然丰度上限	10^{-11}	10^{-12}	10^{-13}	10^{-12}	10^{-14}	10^{-15}
总储量(t)	75	300	1.1	15	—	—
AMS 检测下限	10^{-15}	10^{-15}	10^{-15}	10^{-15}	10^{-15}	10^{-14}

* 表示不能形成稳定的负离子。

(下转第 109 页)