

一门十分活跃的核分析技术 ——加速器质谱(AMS)最新进展*

董克君 何明 姜山[†]

(中国原子能科学研究院核物理研究所 北京 102413)

摘要 文章介绍了一门十分活跃的核分析技术——加速器质谱的基本原理、设备与技术发展,以及在地球科学、生物医学、环境科学、核天体物理应用方面的最新进展。

关键词 加速器质谱,应用,发展

A activity nuclear analysis technology ——the last development of accelerator mass spectrometry

DONG Ke-Jun HE Ming JIANG Shan[†]

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract The basic principle and the last developments of accelerator mass spectrometry are described. Its applications in the fields of geosciences, biomedicine, environmental science and nuclear astrophysics are also discussed.

Keywords accelerator mass spectrometry, application, development

1 引言

南非的几个石灰岩山洞堪称人类的摇篮,那里藏有三分之一的已知人类早期化石。但是由于缺乏火山沉积物定年,没有人能够可靠地为它们在人类演化史中定位。2003年,Science杂志第300期刊登了一篇轰动整个考古学界的文章^[1],文章主要内容是利用冰河退却的时间,通过测量山洞样本中²⁶Al与¹⁰Be比值的定年方法为一个含有最完整人类祖先骨骸化石的山洞——南非的Sterkfontein山洞来定年。研究结果认为:在南非发现的南猿化石比已知的还要古老,有四百万年历史。而在此项工作中,起着决定性作用的测量设备就是加速器质谱(AMS)。

其实早在1939年,Alvarez和Cornog就利用回旋加速器测量了自然界中³He的存在^[2],但是由于

种种原因,这种方法被搁置了几乎40年。直到1977年Muller等才首次利用回旋加速器对¹⁴C和³H进行了测量,同年McMaster大学的Bennett^[3]和Rochester大学的Nelson^[4]等领导的两个科学小组,分别利用静电加速器开展了对¹⁴C的测量。从此利用各种类型加速器开展的质谱研究工作迅速开展起来。因为AMS对于研究对象的破坏非常有限,稀有的人工品能够被取样确定年而不造成破坏。近年来,通过对著名的人工品和发现物如耶稣裹尸布、Ice Man、the Dead Sea Scrolls和查理曼大帝王冠等艺术珍品的分析^[5],AMS越来越赢得了广泛的重视。

由于AMS具有测量灵敏度高(同位素原子数之比可以达到 10^{-16})、样品用量少(可以到ng量级)、

* 国家自然科学基金(批准号:10375099)资助项目
2005-07-27收到初稿,2005-12-14修回

[†] 通讯联系人。Email: jiangs@iris.ciae.ac.cn

测量时间短等优点,所以在国际核分析领域中起着越来越重要的作用,其已经发展成了应用范围涉及地球科学、生命科学、环境科学等众多科学领域的一门十分活跃的核分析技术,而目前还在继续向前稳步发展.目前,世界上的 AMS 装置已经接近 60 台,其在许多研究领域都发挥着越来越不可替代的作用.

2 AMS 基本原理

典型的 AMS 系统一般由离子源、加速器、磁分析器或电分析器、探测器等几部分组成(图 1 是中国原子能科学研究所的 AMS 系统),它是基于加速器技术与探测器技术而建立的一种高灵敏质谱分析方法,其实质上是一个高能量同位素质谱计.其基本原理是:采用类似普通质谱计的分析方法直接对放射性核素原子进行计数,由于突破了普通质谱的同量异位素与分子本底干扰的限制,使其测量灵敏度大大提高.与普通质谱计不同的是 AMS 通过加速器将离子加速到 MeV 量级,从而有效地抑制了分子离子和同量异位素本底的干扰,使测量灵敏度达到 10^{-15} 以上.通常 AMS 使用的加速器都是串联静电加速器,其采用的剥离技术可以提高被加速离子的能量,该技术在 AMS 中可以用于消除分子离子干扰.在 MeV 级能量下,负分子离子经过剥离器后形成的正离子通常是不稳定的,很快离解并被加速器后面的分析器分离. AMS 对同量异位素的抑制主要体现在以下几个方面:(1)某些核素的同量异位素(如 ^{14}C 的同量异位素 ^{14}N)不能形成负离子,因此对于这些核素来说,AMS 采用负离子源本身就完全消除了同量异位素的干扰;(2)AMS 采用的重离子探测器具有鉴别不同核素的功能,对于较轻核素的同量异位素(如 ^{10}Be 和 ^{10}B)具有较好的分离作用;(3)在较高能量下,还可以采用全剥离、射程吸收、充气磁铁和特征 X 射线测量等同量异位素分离技术. AMS 的测量过程可以简单概括为:首先将待分析样品在离子源中电离并引出,经注入系统进入加速器,然后由加速器将离子的能量加速到 MeV 能量范围,被加速的离子在加速器中通过膜或者气体被剥离,然后经过电荷态的选择,再通过类似于普通质谱所用的一些磁分析器和电分析器排除大量的干扰本底,最后由探测器对待测离子进行鉴别和测量.在离子能量被加速器加速到 $\sim \text{MeV}/\text{核子}$ 时,普通质谱所遇到的局限性就可以得到解决或极大地减小.



图 1 中国原子能科学研究所的 AMS 系统

3 设备和技术发展

3.1 设备发展

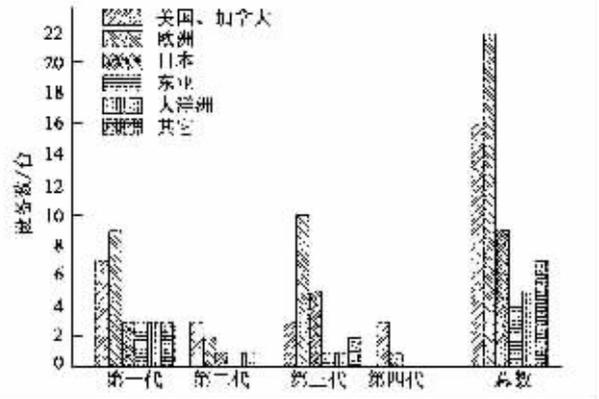


图 2 AMS 系统发展及全球分布[第一代在现有的大型加速器基础上建立的 AMS 系统;第二代为专用 AMS 系统;第三代为复合紧凑型 AMS 系统;第四代小型 AMS 系统(端电压小于 1MV)]

目前,全球 AMS 系统大致经历了 4 个发展阶段(图 2).它可以概括为:AMS 发展初期,大部分系统是在原用于核物理实验研究的加速器基础上改造而成,并且往往只有部分束流时间用于 AMS 测量.近年来,随着 AMS 技术的不断完善和应用需求的增加,一些新建的 AMS 实验室大多引进全套商品化专用 AMS 装置.如美国 Woods Hole 海洋研究所的 NOSAMS 装置,主要用于海洋学研究,而在英国 York 大学建立了一台 AMS 设备专用于药物研究.

另外,由于大型设备运行维护费用非常高,所以近年来 AMS 发展的一个主要趋势是朝着紧凑和低成本的小型化、简单化方向发展。如瑞士苏黎士的 ETH/PSI-AMS 实验室与 NEC 公司合作最新研制建立的端电压 200 kV 专用于 ^{14}C 定年的“桌面”AMS 系统^[6],需要的总面积约为 $2 \times 3\text{m}^2$,其 200 kV 的高压通过真空绝缘产生,可以由商用电直接提供电力,这可谓是目前最小的迷你型 AMS 系统。而 NEC 最近推出的一种新的 AMS 系统——单级 AMS (SSAMS)系统,它不需要加速级,而是直接在离子源或者探测系统部分加上一个高压腔。第一台设备目前已被安装在瑞典的 Lund 地球生物科学中心,专用于考古学研究,其设计目标是达到 5‰ 的测量精度,如果它能达到设计标准,这个系统的下一步发展将很值得关注。AMS 的商业化运营也是目前一个新的发展趋势,从 20 世纪 90 年代末期开始,由 NEC、HVEE 和 Newton Scientific 发展了许多小型 AMS 系统,这些设备大部分都能测量超过 8000 个样品/年。一般来说,每个样品的测试费用约为 500 美元。这对于推动 AMS 的发展无疑是一个非常好的源动力。

AMS 近年来在我国也得到了较大的发展,如北京大学在已有的端电压为 6MV 的 AMS 基础上,于 2004 年引进的一台端电压 0.5MV 专用于 ^{14}C 测量的 AMS 装置,中国科学院西安地球环境研究所也在最近引进了一台专用于 ^{14}C 和 ^{10}Be 测量的端电压为 3MV 的 AMS 装置。另外,中国原子能科学研究院目前正在筹建一台端电压为 6MV 的 AMS 装置,其目标是测量目前 AMS 所能测量的全部核素。

3.2 技术发展

技术发展主要涉及离子源改进、简化制样流程和提高测量灵敏度。由于固体溅射负离子源可以降低同量异位素的干扰,交叉干扰低,而且对于 AMS 经常测量的核素有较适用的负离子产额,所以至今仍被大多数 AMS 系统所采用。在过去几年没有较大变化,其性能和可靠性目前仍在继续完善。对于 ^{14}C 的测量来说,气体源能直接把 CO_2 气体转换成碳负离子束,可以简化样品制备。虽然 Middleton 在大约 20 多年前就已经介绍了此类 AMS 气体源^[7]。但是直到最近才由 Paul L. Skipper 等调试完成,其测量的样品量可以减小到 50ng ^[8]。样品制备属于 AMS 整体系统的一部分,是非常关键的环节。在 AMS 测量中,一般需要在样品制备过程中加入载体把需要测量的核素提取出来,这样一方面影响了对样品的

测量灵敏度,另一方面不可避免地会引入干扰。所以无载体样品分析亦是一个重要的发展趋势。如 Maden 等^[9]发明了一种方法将小量的无载体 Be (100ng)沉积在洁净的基体上,然后材料被一个聚焦非常好的 Cs 束(SIMS 离子源)溅射。使用这种方法,样品中原始的 $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ 比值能够被直接测量。另外一个优点是使用这种方法测量的 $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ 比值比加载体要低 3—5 个数量级。

目前,AMS 系统的发展逐渐趋向于小型化和低能化。对于小型的系统,本底是一个限制因素,同量异位素 m/q 不容易区分,同时,相邻同位素的干扰也不得不考虑。所以,能够提供好的能量分辨或离子鉴别的探测器对于 AMS 测量是非常重要的。随着薄的类金刚石碳膜 ($0.5\text{—}0.7\mu\text{g}/\text{cm}^2$)的发明,AMS 测量技术也在不断取得令人瞩目的进展^[10]。另外,非常薄的氮化硅膜也已经被发展用于半导体探测器技术,这种类型的薄膜对于低能 AMS 非常重要^[11]。对于一个气体探测器,相对于 Mylar 膜或者聚丙烯膜,通过窗的能量损失被减少 3—5 倍。近年来中国原子能科学研究院的 AMS 实验室在探测技术的发展方面开展了大量的工作。如 PX-AMS(入射粒子 X 射线)方法^[12]以及 GF-TOF(充气飞行时间)等对于 AMS 测量中的粒子鉴别都是十分有效的新型方法^[13,14]。

4 应用进展

近年来,随着试验设备与技术的不断发展和试验设计灵活性的增加,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。由于 AMS 应用范围非常广泛,本文不可能对其进行全面总结,仅就近年来其应用的最新进展举例作一简要说明。

4.1 考古学研究

AMS 在地学中的应用较为广泛,涉及地质、考古、水文、海洋、冰川、古气候、古地磁等多个方面。宇宙射线在大气表层引发核反应生产的 ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 等放射性核素,经过沉降过程到达地球表面,地球上许多物质中很好地保存着这些放射性核素数万年以来的连续记录。放射性核素的产率和沉降过程受太阳活动、地磁变化、气候等因素的影响。利用 AMS 对这些物质中放射性核素的浓度进行高灵敏测量,可以获得地形演变、古地磁、太阳活动、古气候等的相

关信息,如北京大学的 ^{14}C -夏商周断代研究^[15],中国原子能科学研究院目前正在开展的洛川黄土中 ^{10}Be 与 ^{26}Al 的测量^[16]等.这方面的一个典型应用是通过断层崖中个体滑落事件的定年重新构建当地地震的历史.因为研究地质构造活动区域发生的断层崖、河道截流和山体的迅速上升等都可以推演出地貌景观的迅速演变过程.由于这些宇宙成因核素的含量非常低,为了对模型进行详细验证,需要密集的采样和非常高的测量灵敏度,所以 AMS 是开展这类工作的理想方法. Benedetti 等通过在斯巴达地区间隔 10 km 的两个断层崖高度约 10m 处,每间隔 10 cm 取样,使用 ^{36}Cl 进行定年,取得了令人振奋的研究结果^[17].即在全新世(地质年代)期间,断层平均大约每 2000 年发生一次,每次事件形成一个 2 m 的断层滑落.最近的事件距今 2800 年,这个结果在不确定度内与公元前 464 年比较相符.根据希腊历史学家记载,当时这里曾发生过人类历史上规模最大的地震,除了五间房屋外,城镇所有建筑全部倒塌,紧接着爆发了斯巴达人的起义.根据断层尺寸,可以估计当时的地震大约为里氏 7 级.所以说,地貌演变的历史被记录在岩石中,这为研究历史事件提供了新的信息.

4.2 生物医学示踪

AMS 在生物医学中的应用开展于 20 世纪 90 年代初期. Felton 等首次采用 ^{14}C -AMS 方法研究致癌物 MeIQx 与小鼠体内 DNA 的加合作用^[18].随后,AMS 应用于生物医学的研究迅速发展,相关的核素有 ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{32}Si , ^{99}Tc , ^{244}Pu 等.其内容涉及到毒理学、药理学、生理学、营养学以及生物化学等诸多领域,并在研究的广度和深度上不断扩展和创新.近年来,随着 Bio-AMS 技术与设备的不断发展,AMS 在生物医学中的应用研究也朝着低剂量示踪与高灵敏方向发展,并呈现出多元化倾向.如李宏利等在北京大学 AMS 系统上开展的环境级有毒物质与生物大分子加合作用研究,可以检测出 10^{11} 个 DNA 分子中的一个加合毒物分子,比常规放射免疫分析方法可接受的最低剂量要低 3—4 个数量级^[19].最近使用老鼠为研究对象,研究了 ^{14}C 标记的硝基苯与小鼠肝 DNA、血红蛋白的加合作用.结果显示,硝基苯与血红蛋白、DNA 在体内存在加合,并且随着剂量的增加,加合数也明显增加^[20].另外, ^{41}Ca 、 ^{26}Al 等核素的生物医学应用也不断出现新的发展趋势,如姜山等利用 HI-13 串列 AMS 装置开展的使用 ^{41}Ca 作为生物示踪剂,以人体肺细胞为研究对象,研究细胞

在致癌物(石棉)作用下细胞胞浆内 Ca^{2+} 增加的来源^[21].研究表明,当细胞受到致癌物(石棉)刺激时,细胞胞浆内 Ca^{2+} 增加的来源既有细胞外钙的供给,也有细胞内钙库的释放^[22].这为研究致癌物引发癌症的机理提供了非常有意义的试验数据. Yumoto 等使用 ^{26}Al 作为示踪剂研究了哺乳期小鼠体内 Al 的沉积情况^[23],为 Al 导致相关疾病的研究提供了有用的试验依据.

目前,中国原子能科学研究院的 AMS 实验室正在开展 ^{41}Ca 示踪研究镓盐治疗对骨质疏松症的影响^[24], ^{93}Zr , ^{151}Sm 等核素的 AMS 测量和生物示踪方面的工作.这些工作在国际上都属于 AMS 技术应用的前沿课题.

4.3 环境监测

环境监测主要涉及全球环境变化的测定、监测城市气体污染以及监测来自核设施的释放. ^{14}C 是环境监测的主要核素之一,这方面的应用目前仍在继续发展与完善^[25-27],并进一步扩展到多环芳香族的碳水化合物^[28].而近年来随着 AMS 可测量核素的增加,越来越多的核素被应用于全球环境监测.如随着核应用事业的不断发展(如核电站),虽然为人类的生活带来了很多好处,但是放射性核燃料的回收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 世纪五六十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,并且通过人类生活区域的食物链对其进行跟踪,高灵敏的 AMS 起着重要作用.用于这方面研究的主要核素有 ^{236}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{129}I 和 ^{99}Tc 等.如在 Ob 河和 Yenisey 河的交界处发现了前苏联的核武器生产和处理工厂,Mayak 工厂和 Krasnoyarsk 工厂. Mayak 河和 Tomsk 河是 Ob 的支流,而 Krasnoyarsk 位于 Yenisey. 每一个都有可能通过河流系统把长寿命放射性核素带入北冰洋.另外,在 Novaya Zemlya 的大气核测试产生的原子尘也将对北极区产生影响.为了探测目前处理工厂是否产生任何影响,澳大利亚国立大学与挪威农业大学之间合作,对取自 Ob 和 Yenisey 两条河口的水和沉积物中 Pu 的浓度和同位素比值进行了测量.结果显示,Ob 河口的 Pu 元素仅仅来自于原子尘,而 Yenisey 河口的钚则具有明显的武器原料特征,由此推测其来自于 Krasnoyarsk 工厂^[29].另外有资料表明,英国 Sellafield 核废物处理场曾把超过 1 吨的 ^{99}Tc 排放到北部海洋.虽然目前

的计算结果显示 ^{99}Tc 产生的放射性风险不会对当地人们的生活产生影响,但是科学研究表明,甲壳类和贝类在生长过程中从周围的海水中汲取了大量的同位素,生活在爱尔兰海滨的人们食用的海产品中的放射性剂量估计目前大部分来自于 ^{99}Tc 的贡献。然而,人们从这种天然来源摄入的同位素及其后来对身体产生的影响并不是目前就能知道的。因为 ^{99}Tc 已经通过自然过程与海洋环境融为一体,因此可以通过一些与之相关的环境样品或个体研究 ^{99}Tc 的摄入和排泄,这方面的研究工作正在进行中^[30]。由于 ^{99}Tc 在环境或个体中的浓度非常低,高灵敏度的AMS为这方面的研究提供了理想的测量方法。

我国的AMS实验室在此方面也开展了大量的工作,如蒋崧生等曾测量我国连山关铀矿矿床附近地下水中的 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$,从而了解地下水的污染和走向^[31],对高放射性环境周边地区的地表水和地面水中的 ^{129}I 进行了测量,结论认为:高放射性周边环境水中 ^{129}I 的含量为 10^8 atoms/L到 10^9 atoms/L,这为核污染检测提供了非常有用的试验数据^[32];在郭之虞等开展的大气气溶胶污染物来源的研究中,对含有大量环境信息的地质层位进行 ^{14}C 测量,并给出了精细的年代序列,这非常有助于了解过去数万年来环境变化及其发展趋势^[33];最近,何明等正在利用AMS开展反应堆废水中 ^{99}Tc 含量的测定工作^[34]。

4.4 核天体物理研究

AMS测量陨星中长寿核素的历史几乎同其技术本身一样长。近年来,利用AMS非常高的灵敏度去搜寻过去几百万年内超新星爆发附近的证据,成为AMS在核天体物理中的主要应用之一。Knie等^[35]曾利用AMS方法对增长率只有几个mm/Ma(Ma为兆年)的南太平洋水下1300 m深处锰铁地壳样品中的 ^{60}Fe 进行了研究。研究结果表明,大约5 Ma前,在距离太阳系大约30 pc(秒差距)远的地方曾经发生过一次超新星爆发。最近,Vockenhuber等正在使用 ^{182}Hf 研究超新星的爆发^[36]。他们认为,在超新星爆发期间,一定量的 ^{182}Hf 将被注入到周围的星际物质。如果此类事件发生在地球附近 ^{182}Hf 的几个半衰期之内,记录下来的信息应该被探测到。事实上,自然界原始产生的 ^{182}Hf 已经衰变完,而超新星爆发是目前知道的 ^{182}Hf 的唯一产生源,这就使得 ^{182}Hf 可以作为一个在地球附近1亿年内理想的超新星爆发指示剂。由于 ^{182}Hf 和 ^{60}Fe 的恒星产生机制不

同,从而导致同位素信号并不相关^[37]。因此,测量一个超新星事件中产生的几个放射性核素信号可以有助于更好地了解爆炸核合成的机制。因为半衰期较长,所以 ^{182}Hf ($t_{1/2}=(9\pm 2)\text{Ma}$)的一个优点是可能探测的来自于超新星的事件信号远长于 ^{60}Fe ($t_{1/2}=1.6\text{Ma}$)。

当然,AMS技术在核天体物理其他方面的应用近年来也取得了显著的成效。如Hiroko Miyahara等通过测量树木年轮中放射性碳的含量,研究太阳的活动性,Miodrag K. Pavicevic等通过测量石英中的 ^{26}Al ,估算LOREX地球化学太阳中微子试验中的宇宙射线本底^[39],姜山、何明等通过AMS方法测量中微子探测器材料中的放射性杂质^[40],以及通过测量 $^{14}\text{N}(^{16}\text{O},\alpha)^{26}\text{Al}$ 的反应截面研究星际 ^{26}Al 的来源^[41]等,都属于当前国际上的热点问题。

5 总结

从AMS二十几年的发展历程看,其已经由刚开始的 ^{14}C 测量,发展到今天 ^{10}Be , ^{129}I , ^{37}Cl , ^{41}Ca , ^{26}Al , ^{63}Ni , ^{99}Tc , ^{32}Si , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{244}Pu , ^{236}U , ^{93}Zr , ^{151}Sm , ^{182}Hf 等众多核素的测量,而应用也由最初的核物理研究发展到目前涉及地球科学、核物理与核天体物理、生命科学、考古学、环境科学等众多科学技术领域,并逐步延伸到放射性药物研究、半导体、矿物勘探和其他科学和技术分支的一门十分活跃的核分析技术。由此可以看出,AMS这种核分析技术巨大的发展潜力与广阔的应用前景。

目前,AMS技术及其应用仍在以不可阻挡之势蓬勃发展,并正在对全球气候、环境污染、公众健康和国际性的核材料安全防护等热点问题的研究做出越来越大贡献。我们有理由相信,AMS必将在以后的科学技术发展中发挥越来越重要的作用。

参 考 文 献

- [1] Partridge T C, Granger D E, Caffee M W *et al.* Science, 2003, 300 : 607
- [2] Alvarez L W, Cornog R. Phys Rev, 1939, 56 : 379
- [3] Bennett C L, Beuken R P *et al.* Science, 1977, 198 : 508
- [4] Nelson D E, Korteling R G *et al.* Science, 1977, 198 : 507
- [5] Fifield L K. Rep. Prog. Phys., 1999, 62 : 1223
- [6] Synal H A, Dobeli M, Jacob S *et al.* Nucl. Instr. Meth., 2004, B223 - 224 : 339
- [7] Middleton R. Nucl. Instr. Meth., 1984, B5 : 193
- [8] Skipper P L, Hughey B J, Liberman R G *et al.* Nucl. Instr. Meth., 2004, B223 - 224 : 740
- [9] Maden C, Dobeli M, Kubik P W *et al.* Nucl. Instr. Meth., 2004, B223 - 224 : 247

