

加速器质谱学(AMS)现状

——兼介绍第五届 AMS 国际会议

周善铸

(中国科学院上海原子核研究所)

摘要:本文简单回顾了十三年来 AMS 发展的几个阶段。重点介绍了设备本身的现状、当前的技术水平和可能达到的极限。同时,也介绍了今年四月在巴黎召开的第五届 AMS 国际会议的概况。

一、引言

第五届 AMS 国际会议於 1990 年 4 月 23 日至 27 日在法国巴黎市中心的人类博物馆召开。AMS 国际会议每 3 年召开一次,会议地点由上一届会议代表投票选定。

出席会议的计有 20 个国家的 160 余名代表。从参加人数和报告内容来看,与前几年的蓬勃发展相比,AMS 的发展似乎已趋于稳定。作者 1985 年在本刊的文章中曾统计过全世界约有 30 余家实验室从事这个领域的研究工作,目前大致仍保持着这个数。但这次会议的一个明显特点是中国、苏联和东德等东方国家的代表第一次出现在会议上。苏联 3 名、东德 1 名,但他们远处在刚刚开始阶段,离设备建成,正式测量还有不少路要走。而中国第一次参加就有 7 名代表,他们来自五个科研和高校单位,另有二名是代表外国实验室参加的,占参与国代表人数的第七位,从而引起了与会者的兴趣。不少国外代表提出建议,希望下届会议能在中国召开。

下面,结合这次会议的报告内容介绍目前 AMS 的现状及其技术发展水平,并对 13 年来 AMS 发展的几个阶段就个人的看法做一些简单的评述。

二、概况

自从 1977 年将 AMS 技术用于长寿命

放射性同位素的测量以来,它已经成为不少研究领域的重要工具。

目前,作为地学和考古学研究的一部份,每年全世界大约要分析 5000 到 10000 个样品。另有较少量的测量是关于核物理和天体物理的。亦有一些文章开始探讨 AMS 用于生物——医学示踪研究的可能性。AMS 用于地学和材料科学中的痕量元素的研究的重要性是明显的,然而这方面的工作至今尚未正式开展。

AMS 所涉及的应用面是如此之广,所以要对它作较详细的介绍将是非常困难的。早在六年前的第三届 AMS 会议的总结报告中,W. Henning 就生动地写道:“我们已经得到了太多重要而漂亮的实验结果。由于对所涉及的众多特殊领域的知识的欠缺,要对一次会议的结果作出总结是要进行大量工作的,因而任何评述都将是局限和不完全的。”而现在的实验数据和涉及的领域较之六年前都有较大地充实和扩展。因此,本文将重点介绍 AMS 本身的发展概况。好在第五次会议的会议集,近期内将在 Nucl. Instr. and Meth. 上发表。

目前大约有 30 余个加速器设备正在从事与 AMS 有关的研究,大体上可以分成以下几种类型:

1. 改进了的串列加速器,也就是在原有的主要为核物理实验设计的串列加速器上做一些必要的改进。这在目前运行的 AMS 设备中占最大多数,端电压在 6—16MV 之间,大多是多用途的。对轻离子(Bc, C)有非

常高的削裂效率,对直至 ^{41}Ca 的较重元素亦能得到很好的同质异荷数的抑制。缺点是操作和维护费用大大高于小加速器,它的离子光学性能通常不是很理想的,稳定性和真空条件往往也不能满足 AMS 的要求。为了达到高精度和高灵敏度的要求,还需要对它们作进一步的改进和提高。

2. 新的专用设备,指专为 AMS 设计和建造的专用系统,一般工作在 2MV 左右,它们具有高的光学输运效率并备有终端真空泵。大多数最宜于精确的 ^{14}C 和 ^{10}Be 测量,相对低的维护费用和相对容易的操作都是它的优点。如果能够解决同质异荷数的干扰问题,也许可能对较重的放射性同位素如 ^{26}Al 、 ^{129}I 等进行非常灵敏的测量。这些设备也很适用于材料科学和地学中的痕量稳定同位素测量。对重离子来说,要达到好的质量分辨,则高稳定的端电压是基本的要求之一。

3. 大设备。有几个大设备,如带有后加速的串列加速器或串列—线性加速器系统等主要用于核物理和原子物理研究,它们的能量可以达到 100MeV 以上,因而开辟了一条新的途径,即有可能用 AMS 测量某些用一般方法难以分离同质荷数的重核素。因为 AMS 测量中的一个最大困扰就是去除同质异荷数。那些既能形成稳定负离子,其原子序数 Z 又小于欲测核素的干扰核素就很难用通常的负离子或射程分离法去除,而化学分离法只能做为一种辅助的方法。但是,当能量超过 100MeV 亦即达到“玻尔”能量之后,就可用削裂箔将两种核素的外围电子全部削去,再用静电或磁分析的方法分离,这就是所谓全削裂法。在这些大设备上目前已经完成了一些半寿命的测量和一些较重放射性同位素的探索性实验。

4. 其他。有一些实验是用单级的范德格拉夫加速器进行的,如 ^3H 、 ^3He 和 CH_4 等的测量。虽然最早的 AMS 实验是在回旋加速

器上进行的,但在当前的实际应用中似乎已失去了它的重要性。最近,有人建议可在回旋加速器上配以能产生高电荷态的 ECR 离子源,也许能用来探测惰性气体的放射性同位素(^{39}Ar , $^{81,85}\text{Kr}$)。因为惰性气体形成分子负离子的产额很低,很难在串列加速器上进行。

专用于 AMS 的微型回旋加速器,由于它的小尺寸而吸引人。因为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,若再配以负离子源则对某些测量来说就有可能排除所有的本底干扰,甚至可以不用离子鉴别选择系统(实际上由于能量太低也没法用)。

基于上述思想,美国见克莱组十年前就开始设计制造一台专用的 40keV 微型回旋加速器,轨道半径仅仅 10.5cm。虽然不断见到一些进展报告,但至今尚未正式投入使用。看来,测量的归一化和灵敏度是必须首先解决的问题。上海原子核研究所的一个小组也正在进行这方面的努力,希望能后来居上。

实验结果的精度和可靠度,是与实验安排和所采用的测量方法密切相关。大多数的测量目前仍然是相对一个标准样品进行的,只有当没有标准样品可用或者放射性核素的半寿命未能精确知道的情况下,才使用绝对测量。较之相对测量来说,绝对测量要复杂细致的多,必须精确知道离子源的电离效率、加速过程中的输运效率、计数器的探测效率以及由于两种探测器不同位置的修正、死时间估算和多次散射效应的修正等等。在一些精确的测量中还考虑了诸如由于二种离子或分子的速度不同而导致在终端处的削裂效应的小差别等等。

同位素比的测量。即用稳定同位素的流强来归一化稀有同位素的计数。这种高丰度的稳定同位素有可能是原先就存在的,也有

可能是在制样过程中添加进去的。

实验方法基本上可分为稀有和稳定同位素交替注入循环扫描和两种同位素同时注入分别测量二种。前者还可细分为慢和快循环两种,一些较早的和专用的设备多采用慢循环,所谓慢循环,即 ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C 三种同位素或者 ^{10}Be 、 ^9Be 两种同位素交替注入依次测量。由於测量都是相对的,如 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 或 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$,所以离子源或输运过程中发生的慢变化不会影响比值测量的结果。

为了实现交替注入的方法,必须将注入分析磁铁的真空室与地绝缘,以便在分析磁铁上加一个脉冲电压(或蹦跳电压),从而允许束流能量在磁场区域内可以作为时间的函数而变化。为了使得不同的同位素均能通过磁铁中心线前进,可在磁铁的真空室上加一个调制电压,稍微改变能量,使得不同质量的同位素具有相同的磁刚度(mE),在磁铁内走相同的轨迹,最后以相同的位置注入到加速器中去。不同的实验室使用的循环周期并不相同,即使同一个实验室亦会依样品的浓度有所调节。通常慢循环的周期取60s,前后各5s通过 $^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$,并用法拉第筒记录 ^9Be 离子束,中间50s通过 $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$ 束,在最终的探测器中计数 ^{10}Be 离子。慢循环方法的一个问题是稳定同位素的束流有时过强。为了不致造成加速器过载,往往不得不限束流的强度(有时干扰核素过强也会造成过载)。在一些较老的加速器上这个问题更为突出,如果在离子进入加速器以前,先通过一个精细编织的网络栅格,也可达到降低束流的目的。

已有不少实验室采用快循环的方法来解决过载问题,但在这种系统的设计中必须考虑到脉冲要足够短,以避免影响端电压的稳定性。另一种是同时注入的方法。最早是加拿大的Memaster大学,在他们本校的对称分散一会聚型分析系统上同时注入 ^{13}C 和

^{14}C 。这个系统允许二个同位素先分开再会聚,然后在90°磁铁之后,分别用法拉第筒和望远镜计数器测量 $^{13}\text{C}/^{14}\text{C}$,最后计算得到 $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ 的比值。

同时测量的优点,除了节省时间以外,二种同位素均受到相同的、有时是不可避免的加速器参数变化的影响,如电压的涨落、离子源打火及输出变化等等。由於它们被同时注入并加速,这些瞬变效应带来的影响也就抵消了。

1984年,东京大学的Imamura等提出了另一种同时测量 ^{10}Be 和 ^9Be 的新的实验安排,他们称之为内束监督方法。其基本原理是:从离子源来的 BeO^- 分子离子中, $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$ 和 $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$ 具有相同的质量数26,所以在负离子阶段它们具有相同的轨道和速度,在通过碎裂箔时亦有相同的电荷分布,也就是说,被击碎后的 $^9\text{Be}^{3+}$ 基本上具有和 $^{10}\text{Be}^{3+}$ 一样的输运效率,於是就可以在高分分析磁铁之后同时对它们进行测量。不用交替扫描,既可节省时间又提高了精度。后来,他们又将这种方法扩展到了 ^{14}C 和 ^{26}Al 的测量中。这次会议上他们提供的报告表明,内束监督方法对 ^{10}Be 和 ^{26}Al 的测量精度已达到2%,对 ^{14}C 达到1%。

这种方法的缺点是 $^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$ 的质量数也是26,这种不稳定的分子离子与样品的含水量有关,因而 ^9Be 的产额就将随样品而异。为了解决这个问题,他们采用增加 $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$ 含量的办法,以便使 $^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$ 的含量可以略而不计(普通样品中, $^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$ 的含量约是 $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$ 的千分之几)。所以他们就在含有2% ^{17}O 的重水中制样(^{17}O 的天然丰度为0.375%),先制成 $\text{Be}(\text{OH})_2$,后再烧成 BeO 。这个想法和安排很漂亮。当然在实际操作时还会遇到其它问题,例如,含有2% ^{17}O 的重水在制样过程中其 ^{17}O 的含重还会产生变化,需要再加修正等等。

1986年6月,美国 Pennsylvania 大学的 R. Middleton 和 J. Klein 在英国牛津召开的一次 AMS 技术专题讨论会上,报道了他们在东京大学方法的基础上经过改进后的同时测量方法。他们避开 ^9Be 而用 $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$ 被击碎后的 $^{17}\text{O}^{5+}$ 来归一化 $^{10}\text{Be}^{3+}$,这样就消除了由于样品中 $^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$ 的不稳定而引起的麻烦,从而也不需使用浓缩 ^{17}O 的重水。这个改进方案相当巧妙,因为碰巧 $^{17}\text{O}^{5+}$ 和 $^{10}\text{Be}^{3+}$ 具有差不多的速度,可以同时通过速度选择器。而更巧的是它们的磁刚度也只相差1.1%,故又能同时通过高能磁分析器。目前,上海原子核研究所在他们自制的6MV串列加速器上,也正在采用这种方案。

三、当前技术水平和理论极限

一般来说,当设备调到较佳的情况下,大多数 AMS 的测量要达到百分之几的精度已不成问题,这对大多数长寿命核素的应用来说已可以满足。但对 ^{14}C 测量,由于其相对不太长的半衰期和已有的相当成熟的衰变测量方法,故要求有更高的精度,必须仔细抑制多种沾污和仪器的本底,小心地将整个加速器和探测系统调到最佳状态。做了这些努力之后就可能达到千分之二或三(也即传统衰变法的较好精度)。再要提高时则可能受制于统计误差或者说可能得到的束流强度。一种新的高强度源, ^{12}C 流强在100 μA 左右,将能大大地减少测量时间并降低统计误差。它含有较大的表面电离层, Cs 蒸汽能在上面直接扩散。通常工作在较高的 Cs 电流(mA范围)和较小的能量(1—8keV)下,对某些核素,这个设计的流强比原有的源要大一个数量级。对这种源作某些修改后,还可用于气体输入,这对 ^{14}C 来说特别有利,因为将 CO_2 转换成石墨是既费时又费钱的。高强度源的主要问题是交叉沾污,特别是在使用

气体或高蒸汽压的材料时,若使用较开阔的设计和良好的泵抽能大大地减少这些效应。气体源目前已成功地应用于常规的测量中。

R. Middleton 已经用他们的高强度源测量了某些负离子的形成产额。 C^- (石墨):9%, C^- (CO_2 气体):7.7%, BeO^- (BeO_2):1.8%, Al^- (Al_2O_3):0.25%, Cl^- (AgCl):16%, CaH_3^- (CaH_2):0.2%。但这种高强度源的其它性能,如过载的可能性、空间电荷效应和其它系统误差等还有待于进一步探讨。

为了充分利用加速器的运行时间,有些实验室已经或正在设备上安装几个离子源。当一个在工作时,另一个就可以进行维修和保养。离子源是整个 AMS 的一个重要组成部分,如何使样品的装卸快速易行,亦是需要考虑的一个基本因素。

基于目前众多设备上有关离子源效率、削裂产额和离子光学损失方面的经验,人们可以推断现存系统的总探测效率,再考虑近光学输运及削裂产额的理论极限之后,就可以估算出在最佳条件下能够达到的最大总效率:

^{14}C :良好设计系统的典型效率在1%左右,某些有利条件下可能达到百分之几。

^{10}Be :从万分之几(小串列加速器)到千分之几(较大的加速器),某些工作在8—10MV端电压并达到最佳状态的系统有可能连到1%左右。

Al, Ca :约在千分之一的范围,因为它们的溅射产额较低。

Cl :原则上可以达到百分之几,但由于 Cs 束击到靶架上能产生大量的 s 计数,致使实际上能连到的水平要低得多。

高效率当然是好的,但在许多应用中,效率并非制约的条件,因为通常制备和处理毫克级的样品量是相当容易的,比之制备更少量的样品来说它更为容易、可靠和有效。除非那些极微量的珍贵样品才需要高效

率。在许多情况下,是本底因素限制了能探测到的最小同位素计数大致为 10^5 到 10^6 个原子。

四、结论

目前,AMS 已被视为一种具有某些非常有价值有特点的重要分析工具,它的高灵敏度和精度,特别是处理极端小样品的能力为澄清某些珍贵材料的问题打开了一种新的可能途径。

13 年来 AMS 的发展经历了几个阶段。1977 年当它刚开始出现时,人们对它的前景充满了兴奋和憧憬,这表现在 1978 年 4 月在美国 Rochester 召开的第一届 AMS 国际会议上,当时人们更多的是陶醉在丰富多彩的美妙设想之中。三年之后,1981 年在阿贡召开的第二届会议上,人们就冷静多了,这时大家都面临着许多具体问题的挑战,例如 ^{14}C 的测量精度问题, ^{10}Be 、 ^{26}Al 等更长寿命同位素能否用于年代测定的问题等等。但大家的热情和积极性并未减弱,这是一段埋头苦干和努力奋斗的时期,被卷入的设备和人数仍然在增加。1984 年的 Zürich 会议显然获得了很大的进展,人们称这次会议为“许多梦想成为现实”的会议。实验技术以及新建和被卷入的设备还在增长。1981 年,AMS 测 ^{14}C 的设备为 17 台,一年仅测了 16 个数据;1984 年,涉及的设备有 24 台,数据大于 1000 个;1987 年,在第四次会议上庆祝 AMS 发展十周年的时候,人们发现它已经趋于成熟,许多实际的测量问题已被解决,AMS 已被广泛地应用到许多领域。已有相当多的应用领域的代表参加了这次会议,而在前三届会议的代表中,占压倒多数的仅是加速器或物理界的技术专家,这也被认为是已经成熟的标志之一。

今年的第五届会议的特点表明,除中、

苏、东德等国家的介入之外,整个 AMS 的发展趋于稳定,参加人数从上届的 150 人左右到本届的 160 余人,提交的文章从 102 篇到本届的 114 篇。

从目前大多数设备已经达到的水平与前已述及的有可能达到的最佳性能的比较可以看出,仍有可能再作重大改进的余地。此外,目前已经测量的核素还不多,并且都是单元素的测量,是否有可能扩展到更多的元素并同时测量多个元素呢?

财政上的限制也许是近年内 AMS 发展减慢的原因之一,其它如共用的设备不得不顾及其它实验组的需要,而专用设备又非常忙碌无暇,所以,考虑设备本身的改进也是原因之一。

十三年来的发展表明,与物理学其它领域的相互影响和合作对 AMS 的进一步发展是非常重要的。我们可以从实验核物理得到更多的关于粒子鉴别技术和多参数数据获取系统的经验,从原子物理可以得到关于电荷交换过程的信息,这对于了解削裂过程、本底抑制、探测器分辨率以及充气磁铁的性能都是需要的。关于稳定性以及负离子和分子能级的计算和实验将能帮助找到新的同质异荷数的分离技术。在材料和半导体中, MeV 离子的注入的研究将迫使加速器设计者去建造高流强和高稳定性的设备。对于工业应用来说,这种注入必须是非常可靠并易于操作和维护。所有这些,将会大大有益于 AMS 技术的发展。

其它新的应用领域也将促进 AMS 技术的发展,像稳定同位素的测量要求极端干净的离子源和微米束的条件,另一方面,生物医学的应用则要求快速但不一定很精密的分析系统,这也许可以鼓励人们去制造更小和更简单的装置。