



^{239}Pu 的紧凑型AMS系统测量技术方法研究

赵庆章 张文慧 何明 修诚利 郭巍 李建良 李康宁 包轶文 游曲波 苏胜勇

The Measurement Technology Method of ^{239}Pu with the Developed Compact AMS System

ZHAO Qingzhang, ZHANG Wenhui, HE Ming, XIU Chengli, GUO Wei, LI Jianliang, LI Kangning, BAO Yiwen, YOU Qubo, SU Shengyong

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.41.2023CNPC86>

引用格式:

赵庆章, 张文慧, 何明, 修诚利, 郭巍, 李建良, 李康宁, 包轶文, 游曲波, 苏胜勇. ^{239}Pu 的紧凑型AMS系统测量技术方法研究[J]. 原子核物理评论, 2024, 41(1):426–432. doi: 10.11804/NuclPhysRev.41.2023CNPC86

ZHAO Qingzhang, ZHANG Wenhui, HE Ming, XIU Chengli, GUO Wei, LI Jianliang, LI Kangning, BAO Yiwen, YOU Qubo, SU Shengyong. The Measurement Technology Method of ^{239}Pu with the Developed Compact AMS System[J]. Nuclear Physics Review, 2024, 41(1):426–432. doi: 10.11804/NuclPhysRev.41.2023CNPC86

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

^{129}I 的紧凑型AMS测量技术研究

Compact AMS Measurement Technology for ^{129}I

原子核物理评论. 2023, 40(4): 560–565 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.40.2023110>

紧凑型强流重离子CH型漂移管直线加速器动力学设计

Dynamics Design on a Compact High Intensity Heavy-ion CH-DTL

原子核物理评论. 2023, 40(3): 362–369 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.40.2022052>

基于紧凑型D-D中子发生器的热中子照相慢化准直器设计

Design of Moderator-collimator for Thermal Neutron Radiography Based on Compact D-D Neutron Generator

原子核物理评论. 2023, 40(2): 251–256 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.40.2022072>

小型加速器质谱系统研制及分析技术研究

Development the Miniaturized AMS System and Its Analysis Technique

原子核物理评论. 2020, 37(3): 784–790 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.37.2019CNPC01>

氮气低温除氡技术与极低水平氡测量方法研究

Study of Low Temperature Radon Removal Technology and Low Background Radon Measurement in Nitrogen

原子核物理评论. 2021, 38(2): 175–181 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.38.2020063>

加速器质谱及其小型化技术

Accelerator Mass Spectrometry and Its Miniaturization Technology

原子核物理评论. 2022, 39(1): 54–64 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.39.2021011>

文章编号: 1007-4627(2024)01-0426-07

^{239}Pu 的紧凑型 AMS 系统测量技术方法研究

赵庆章, 张文慧, 何明[†], 修诚利, 郭巍, 李建良, 李康宁, 包轶文, 游曲波, 苏胜勇

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要: 随着技术的不断改进, 中国原子能科学研究院在前期研制的低能量 AMS 装置的基础上, 又研制了紧凑型 AMS 装置。本工作就是基于新建立的紧凑型 AMS 装置, 开展 ^{239}Pu 的测量技术研究。为了实现 ^{239}Pu 的 AMS 系统传输, 利用 ^{238}U 系统性研究了剥离气体种类、剥离价态选择、剥离气体厚度、预加速电压与传输效率的关系, 建立了紧凑型加速器质谱装置的 ^{239}Pu 最佳传输条件; 通过系列标准样品和空白样品的测定, 验证了装置测量线性 $R^2=0.9997$, 得到了紧凑型加速器质谱对 ^{239}Pu 的探测限为 0.1 fg。为开展 ^{239}Pu 在环境、地质等方面的广泛应用奠定了基础。

关键词: 紧凑型 AMS; ^{239}Pu ; 测量技术研究

中图分类号: O571.1

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.41.2023CNPC86

0 引言

^{239}Pu 是一种放射性裂变核素, 半衰期 $T_{1/2}=24\ 110\ \text{a}$, 环境中 ^{239}Pu 极少量是自然成因的, 大部分的 ^{239}Pu 由人类核活动产生。人为产生的 ^{239}Pu 通过 ^{238}U 俘获中子和两次 β^- 衰变生成。全球大气核武器试验向全球环境中排放了 7.4 PBq 的 ^{239}Pu , 占环境中人工来源钚同位素的 90% 以上 [1]。 ^{239}Pu 作为放射性核素, 主要释放高能量的 α 粒子, 对生物体不会造成显著的外辐射照射, 但可能造成内辐射损伤。钚具有极强的亲颗粒性, 不易挥发。陆地环境中, 绝大部分的钚保留在土壤中, 可用于量化近几十年土壤侵蚀速率, 不足 0.1% 的钚会迁移至植物中 [2]。利用钚同位素等亲颗粒性进行土壤侵蚀研究是目前基于质谱技术而量化土壤侵蚀速率和研究土壤迁移的方法 [3]。测定钚环境水平对辐射安全监控和评估具有重要意义。同时, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比携带着明确的人工核活动来源的指纹信息, 可用于区域环境的辐射溯源和量化来源的比例, 评估区域的环境放射性水平。

目前对于钚的测量方法常用 α 谱仪, 但是由于 ^{239}Pu 半衰期相对较长, 同时由于 α 谱仪自身的能量分辨率的原因, 无法区分能量相近的核素的峰, 如 ^{239}Pu (5.15 MeV) 和 ^{240}Pu (5.16 MeV), 只能给出 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 的总活度, 也就无法给出 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比。另外, 也存在样品的

分离纯化和制源要求较高、测量时间较长等短板。尤其环境样品中水平较低, 使用 α 谱仪分析测量则需要极大程度的富集和较长的测量周期 [4]。随着质谱技术的不断发展, 各类质谱仪在锕系核素的分析测量上得到了广泛的应用, 近年来随着技术的不断进步, 电感耦合等离子体质谱 (ICP-MS) 的性能和实用性得到进一步提升 [5]。通过使用改进的高效雾化器提升电离和雾化效率, 同时使用动态碰撞池 [6-7], 使得仪器有更好的灵敏度 [8]。ICP-MS 对于锕系核素的分析也可以达到 fg 量级。随着 Pu 同位素在环境、土壤侵蚀等方面应用的深入, 更低含量和更小样品量分析是钚同位素测量的新需求, 加速器质谱 (AMS) 是目前测量长寿命核素灵敏度最高的核分析技术, 国际上也发展了钚同位素的 AMS 测量技术, 测量灵敏度可达到 0.1 fg [9]。而随着 AMS 技术的不断发展, 基于低能量的 AMS 装置是实现 ^{239}Pu 测量的有效方法, 中国原子能科学研究院在 AMS 装置小型化方面取得了很好的结果, 建立了低能量的 AMS 装置 [10], 尤其是近年来随着技术的不断改进 [11], 又建立了紧凑型 AMS 装置, 本工作就是基于新建立的紧凑型 AMS 装置, 开展 ^{239}Pu 的测量技术研究。

1 紧凑型 AMS 装置介绍及样品制备流程

AMS 装置低能量化是 AMS 发展趋势, 基于前期研制的大气绝缘型 AMS 装置验证了端电压 0.3 MV 的

收稿日期: 2024-01-16; 修改日期: 2024-02-26

作者简介: 赵庆章 (1986-), 男, 山东日照人, 副研究员, 博士, 从事核分析技术研究; E-mail: zqz1102006@126.com

[†] 通信作者: 何明, E-mail: heminghy@163.com

AMS 装置可实现 ^{239}Pu 等锕系核素的高灵敏测量之后, 本工作又研制了结构更加紧凑的低能量串联 AMS 装置。总体结构设计如图 1 所示。它主要包括离子源、低能静电分析器、注入磁铁、紧凑型串联加速器、分析磁铁、高能静电分析器、测量磁铁和探测器。在加速器后设置三单元四极透镜用以对通过加速器之后的粒子进行聚焦, 以提高束流传输效率。

离子源采用 40 个靶位的铯溅射负离子源(型号: NS1-1^[12-13]), 由铯锅产生的铯蒸气经过高温的离子器表面电离, 产生 Cs^+ 流, Cs^+ 经过加速聚焦轰击靶面, Cs^+ 既用来产生溅射, 又附着在靶面表层以降低逸出功, 从而容易溅射形成负离子。离子源台架的工作电压为 -50 kV 左右(可微调与串联加速器端电压进行束流光学最佳匹配); 离子源后面采用偏转半径为 650 mm、偏转角度为 90° 的球面型双聚焦静电分析器用以对离子的能量进行选择, 在静电分析器后面利用偏转半径同样为 650 mm、偏转角度为 90° 的双聚焦二极磁铁对粒子的动量进行选择, 并将离子束送入加速器; 加速器采用的是端电压为 0.3 MV 的真空绝缘紧凑型串联加速器(无加速管的间隙加速器), 其长度为 1.1 m, 相较于 0.3 MV 的大气绝缘型的约 3.5 m 长加速器(由两段加速管组成), 其长度得到了极大缩小, 整套紧凑型加速器质谱仪系统占地面积约 30 m^2 , 较传统低能量 AMS 装置面积缩小 1/3~1/2。此外, 串联加速器高压端密封在真空环境中, 外壳可以地电位操作, 更安全。进入加速器的负离子经串联加速器的前半部分间隙加速后进入加速器中部剥离器(由一小段剥离气体构成), 当负离子穿过剥离气体时, 与这些气体分子碰撞失去电子, 变成多电荷态正离子(此过程同时将分子离子瓦解)后, 再利用加速器的后半

部分间隙对正离子进行再加速。根据束流光学计算, 为实现粒子的高效传输, 在加速器后设定三单元四极透镜以便把通过加速器后的粒子送入高能端分析系统。高能端是 AMS 排除本底的重要环节, 为了满足高质量分辨需求, 同时满足高效传输和紧凑型的特点, 将高能端分析系统设置成 2 个二极磁铁中间加 1 个静电分析器的方式。分析磁铁采用偏转半径 650 mm、偏转角度为 90° 的双聚焦二极磁铁, 静电分析器采用偏转半径为 650 mm、偏转角度为 90° 的球面型双聚焦静电分析器, 测量磁铁采用偏转半径为 700 mm、偏转角度为 110° 的双聚焦二极磁铁, 利用 2 个二极磁铁和 1 个静电分析器的动量和能量的选择能力排除掉干扰粒子(测量 ^{239}Pu 时, 能够有效排除邻近核素 $^{238}\text{U}^{3+}$ 的干扰), 最后将要测量的离子送入探测器, 然后对离子进行分析测定。探测器是类 Bragg 类型的气体探测器, 这种探测器具有电子收集效率高且有电荷放大功能, 可提高探测器的信噪比, 非常适合用于低能量重核素的探测。同时, 为了降低重离子进入探测器时的能量损失, 采用 30 nm 的 Si_3N_4 膜作为气体电离室的入射窗。

紧凑型串联 AMS 的束流光学设计如图 2 所示, 第一个静电分析器的像点就是注入磁铁的物点, 同样第二个静电分析器的像点即是测量磁铁物点。注入磁铁可以排除大量同位素的干扰, 紧凑型加速器中的剥离气体可以瓦解分子同量异位素的干扰, 分析磁铁和测量磁铁对离子进行严格的动量选择, 静电分析器对离子进行能量选择。

样品的前处理分为水体样品的前处理和土壤样品的前处理。这里以水样为例子展开说明, 由于在酸性环境下 Pu 离子不易吸附在容器的表面, 所以将样品存储在

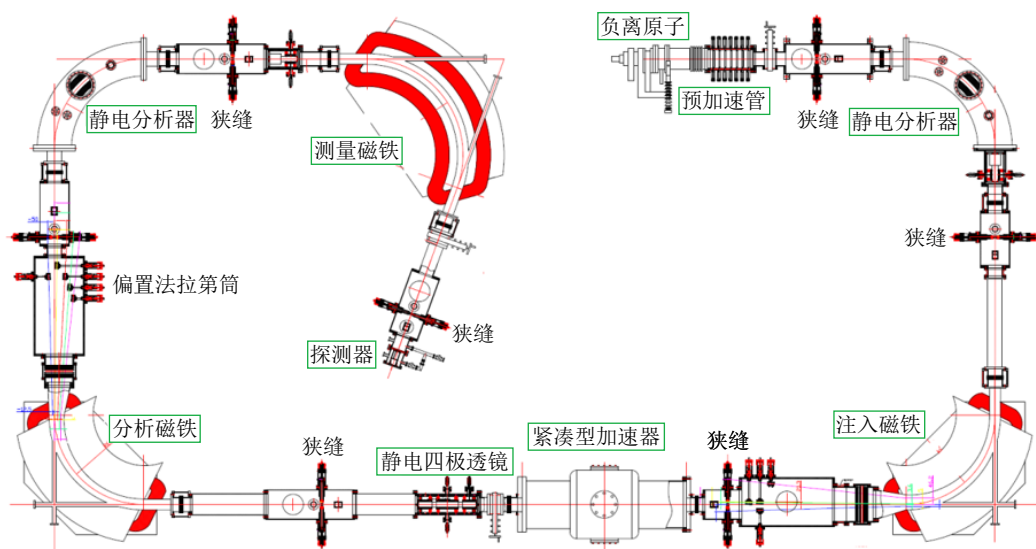


图 1 AMS 系统结构示意图

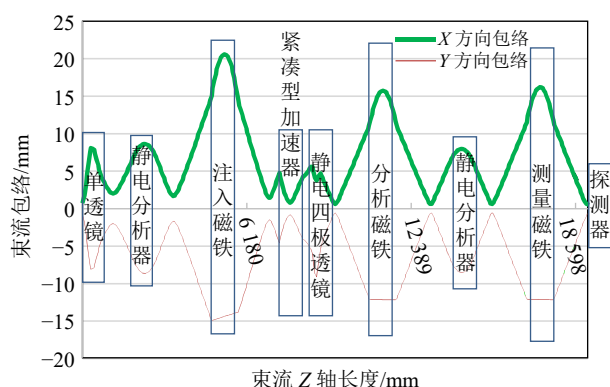


图 2 紧凑型串联 AMS 的束流光学设计

容器之前调节酸碱度 pH 为 1~2, 示踪剂 ^{242}Pu 应在酸化后加入, 就不会导致示踪剂的水解, 环境水体样品中 Pu 的含量远远低于其他环境样品, 因此会采用大量的样品以满足仪器设备的检出限, 故处理环境水体样品的时候会使用共沉淀的方法^[14]。

根据样品的体积加入适量 (0.5~4 mL) 质量分数为 7% 的 TiOCl_2 溶液, 搅拌 3 min, 用浓 $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 调节溶液 pH 至 7~8, 形成白色沉淀。搅拌 20 min, 静置 5 min, 在 3 500 r/min 转速下离心 5 min, 收集沉淀。在强酸性环境下, Ti^{4+} 易水解形成 TiO^{2+} (钛氧离子), 在 $\text{pH} > 0.5$ 时, 水合氧化钛 (HTiO) 胶状沉淀开始生成, 铜系元素在中性或碱性状态下易生成胶状氢氧化物。使用浓 $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 调节溶液 pH 至 7~8, 其作用是大量的 NH_4^+ 为抗衡离子, 可减少氢氧化物对其它金属离子的吸附, 并且存在大量的电解质促进胶体沉淀的凝聚, 可获得含水量少、结构紧密的沉淀。目前此种方法 Pu 的回收率在 95% 以上。用 10 mL 超纯水洗涤沉淀 2 次, 离心收集沉淀, 用 2~10 mL 浓硝酸溶解沉淀, 然后用超纯水调整为 8 mol/L HNO_3 体系。由于 Pu 的氧化态的不同, 其化学行为有着很大的差异, 因此 Pu 在分离和富集的过程中需保持单一的氧化态, 加入 3 mol/L 的 NaNO_2 调节铜系核素的化学价态, 调节为四价的 Pu, 充分反应后, 静止 30 min 待用。目前用层析柱来萃取分离环境中的 Pu 是常用的方法, 因为其具有分离时间短、操作容易和实用性强的优点, 所以把沉淀溶解后的溶液通过 TEVA 树脂和 UTEVA 树脂, 在 8 mol/L HNO_3 介质条件下, TEVA 树脂对四价的 Pu、Np、Th 具有较高容量因子 ($K > 10\,000$) 和较强的吸附能力, 而对 Am ($K < 10$) 容量因子小, 吸附能力弱, Am 会穿过树脂。在低酸度下, Pu 和 Np 的容量因子较低, 因此可用 0.1 mol/L 的 HCL + 0.01 mol/L 的 HF 溶液洗脱树脂上吸附的 Pu 和 Np, 在 8 mol/L HNO_3 介质条件下 UTEVA 树脂容量因子 ($K > 100$), 确保 U 的去除。详细制样过程参见文献^[15]。

分离过后经过再共沉淀步骤, 蒸干样品, 1:1 质量混合银粉, 用压靶器把粉末样品压入靶锥, 装入离子源待测。

2 ^{239}Pu 的 AMS 系统传输条件研究

为了实现微量核素的 AMS 测量, 通常利用被测核素的稳定同位素进行 AMS 系统的传输条件研究。但是, 由于 Pu 含量极低且没有稳定同位素, 实验采用和其质量非常接近的 ^{238}U 来进行 AMS 系统传输条件研究, 在天然铀中 ^{238}U 占 99.274%, 因此, 利用更容易进行测定的 ^{238}U 离子 (束流强度可通过转动靶位置实现自由调节) 进行 AMS 系统的传输条件研究。

2.1 ^{238}U 的 AMS 系统传输

铀和钚的电子亲合势都较小, 对于电子亲和势小的元素, 需要用氢、氧或者氮化合物形式引出离子。因此, 此研究将样品制备成氧化铀或氧化钚的化学形式并与氧化铁和银粉混合后装入离子源的靶锥中。这些样品在铯溅射负离子源中电离成负离子, 经引出和预加速后进入低能端静电分析器, 并经低能静电分析器的能量选择后, 利用注入磁铁将 $^{238}\text{UO}^-$ 注入到加速器, 加速器端电压设定为 0.24 MV, 利用氦气作为剥离气体将 $^{238}\text{UO}^-$ 剥离成不同电荷态的原子正离子, 这些正离子经加速器第二段加速间隙再加速后, 利用高能端分析磁铁选择剥离概率最高的 3+ 的 ^{238}U , 然后再利用高能静电分析器和测量磁铁对 $^{238}\text{U}^{3+}$ 进行能量和动量的选择后, 将 ^{238}U 传输到最后的法拉第筒, 由此完成 ^{238}U 的 AMS 系统传输。在利用 ^{238}U 完成紧凑型 AMS 装置的模拟传输条件优化后, 利用式 (1) 调节三块磁铁的参数后, 即可测量 ^{239}Pu :

$$B_{239} = B_{238} \times (m_{239}/m_{238})^{1/2}, \quad (1)$$

其中: m_{238} 、 m_{239} 分别对应 ^{238}U 、 ^{239}Pu 的原子离子或分子离子的质量; B_{238} 、 B_{239} 分别为 ^{238}U 、 ^{239}Pu 的原子离子或分子离子在磁场中偏转的磁场参数。

2.2 ^{238}U 的优化传输条件研究

1) 剥离气体选择

对于小型 AMS 系统, 由于离子能量低, 对于重离子 (如 ^{239}Pu) 测量时, 角度离散和能量离散成为限制其测量性能的重要因素。

相同入射方向的负离子在穿过剥离气体时, 离子运动方向的角度有一定的分布, 即所谓的角度歧离。角度歧离越小越有利于离子的传输。用角度偏转的均方值来表示角度的歧离程度。角度偏转的均方值为

$$\overline{\theta^2} = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2^2 e^4}{E^2} (NL) \ln \frac{a_0 E}{e^2 Z_1 Z_2^{4/3}}, \quad (2)$$

其中: Z_1 和 Z_2 分别为入射离子和剥离气体靶的原子序数; e 为电子电荷; E 为离子能量; NL 为单位面积的靶原子数, 与靶的厚度关联; a_0 为波尔原子半径; L 为靶的厚度。

而关于角度歧离 (θ) 的计算公式有很多, 其中相对简单而广泛应用的为 Highland 的公式^[16], 其角度歧离 (θ) 为

$$\theta = \frac{12.5Z_1}{2E} \sqrt{\frac{L}{L_R}} \left[1 + 0.125 \log \left(\frac{L}{0.1L_R} \right) \right] \text{rad}, \quad (3)$$

L 、 L_R 分别是散射体的质量厚度 (g/cm^2) 和辐射长度 (g/cm^2)。

初始能量为 E 的离子穿过厚度为 L 的介质后能量 E' 为

$$E' = E e^{-\frac{L}{L_R}}, \quad (4)$$

当介质厚度 $L=L_R$ 时, 离子在介质中损失的能量减低至原初能量的 $1/e$, L_R 称为介质的辐射长度。

经过低能端静电分析器选择后的具有相同能量的负离子, 在经过间隙加速后, 穿过剥离气体, 离子的能量损失不相等, 这就是所谓的能量歧离, 能量歧离也不利于加速器质谱的离子高效传输, 能量歧离的 Bohr 理论估算能量歧离的大小 (δ), 其值由下式给出:

$$\delta \approx (4\pi Z_1^2 e^4 N Z_2 L)^{1/2}. \quad (5)$$

由式(5)可见, 对确定的入射离子和气体剥离靶系统, 能量歧离的 Bohr 理论值随靶厚度的平方根而增加, 而与入射离子的能量无关。在低能量下, 对于多种已有的剥离气体种类(氦气、氮气、氩气等), 我们可以预测氦气较好。氦气除了能降低离子的角度歧离和能量歧离外, 氦在元素周期表中是电离能(25 eV 左右)最高的元素, 氮的电离能是 15 eV 左右, 氩的电离能是 16 eV 左右, 这就使得离子在氦气中的电子俘获概率比氮气和氩气等其它气体低, 而其电离截面和其它气体基本相同^[17]。离子能量不变的前提下, 利用氦气作为剥离气体, 可以提高离子的传输效率。故本文实验中使用氦气为剥离气体。

图3为 ^{238}U 穿过氦气时各电荷态的分布概率与能量的关系, 可以看出 ^{238}U 离子能量为 0.3 MeV 时 3+ 电荷态的电荷态产额达到 45%, 这为重核素的小型化 AMS 高效测量奠定了基础。

2) 剥离气体的气压优化

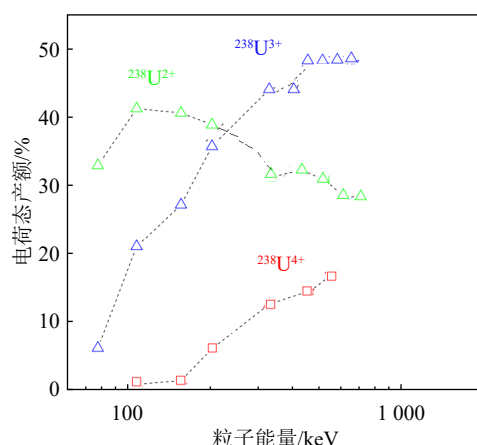


图3 不同能量的 ^{238}U 经氦气剥离后的电荷态分布^[18]

剥离气体压力的高低代表剥离气体的厚度, 剥离气体的厚度与粒子剥离的电荷态分布、粒子的角度歧离和能量歧离有关, 这些因素影响粒子的传输效率。因此, 为了实现较高的传输效率, 需要选择合适的剥离气体厚度。对 ^{238}U 的计数率与剥离气压的关系进行了实验测定, 测量结果如图4所示。从结果可以看出剥离气压与离子传输效率有着很强的关联性, 在从地电位输入紧凑型加速器端部剥离气体输入压力为 $45 \times 10^5 \text{ Pa}$ (高压气起到绝缘作用) 时 ^{238}U 的效率为最佳, 因此对于 ^{239}Pu 测量时从地电位输入紧凑型串联加速器端部剥离气压选择为 $45 \times 10^5 \text{ Pa}$ 。能够有效排除分子本底干扰(如 $^{238}\text{UH}^{3+}$ 等)。

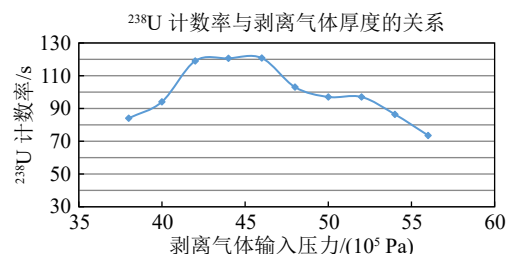
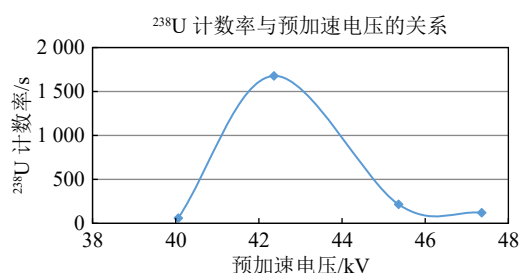


图4 ^{238}U 计数率与从地电位输入的剥离气体压力的关系

3) 预加速的优化设定

为进一步提高铀系核素的传输效率, 同样利用 ^{238}U 对预加速电压进行了优化研究, 结果如图5所示。可以看出, 预加速电压与 ^{238}U 的探测效率有很大关系。这是因为只有预加速电压和加速器电压达到最佳配合时 ^{238}U 才能被聚焦至剥离管的中心位置, 从而使 ^{238}U 的传输效率达到最佳; 而如果预加速电压过高或过低都会使束流聚焦到剥离管中心位置的前面或后面(按照束流传输方向), 同时由于 ^{238}U 具有较高的粒子发散度, 它对束流的聚焦位置更加敏感, 从而使得效率有很大的变化。实验结果表明, 在预加速电压为 42.5 kV 时 ^{238}U 的测量效率达到最佳, 因此, 对于 ^{239}Pu 测量时采用的预加速电压也为 42.5 kV。

图 5 ^{238}U 计数率与预加速电压关系

3 ^{239}Pu 的探测限

3.1 粒子探测技术

^{239}Pu 的低能量探测是 AMS 小型化的关键。在保证测量灵敏度的前提下, 由于加速器的电压越低越有利于 AMS 装置的小型化, 故本项目研制的 AMS 装置 ^{239}Pu 的能量不到 1 MeV, 而要实现这样低能量下 ^{239}Pu 的测量, 粒子探测器的研制就尤为重要。为此研制了特别适合低能量重离子测量的类布拉格型的探测器。整体的结构设计为氮化硅膜窗口贴在窗口盖上, 内部探测室是一个直径为 20 mm 的圆柱形空腔, 阳极是 7 mm 的圆角紫铜面, 这样的设计有效降低电容^[13]。在将探测器外壳设置为地电位、阳极设置为 500 V 的情况下, 得到了如图 6 所示的电场分布模拟结果。模拟结果显示电场呈现梯度分布, 阳极附近的电场强度比入射窗口处的电场强度高约 20 倍, 这使得探测器在阳极附近处于正比区工作。这样的设计可以更多地收集入射窗附近的电子, 探测器介质用的是 16.0 hPa 的高纯 (99.99%) 异丁烷气体, 并实现适当的信号放大。实验利用此探测器对能量约为 1 MeV 的 ^{239}Pu 进行了测量, 同时利用系列

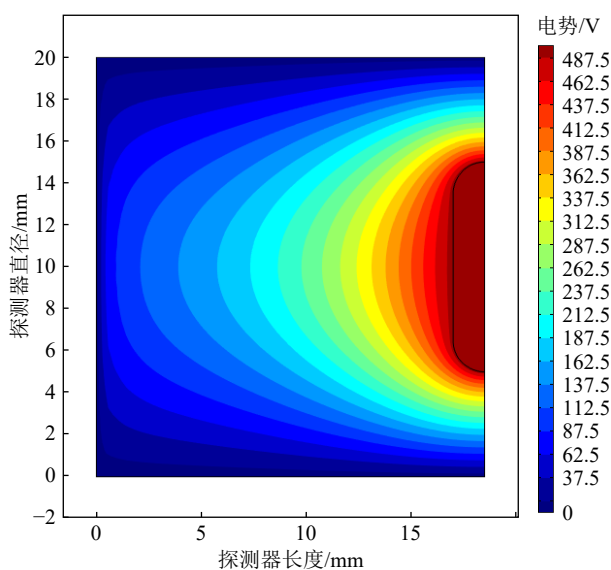
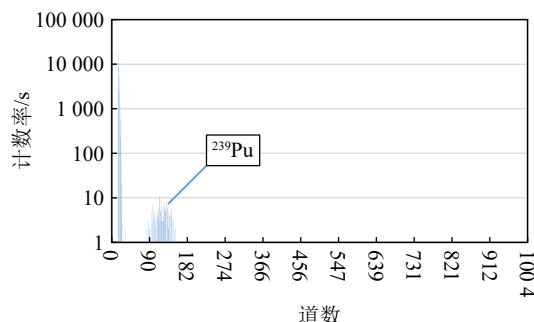
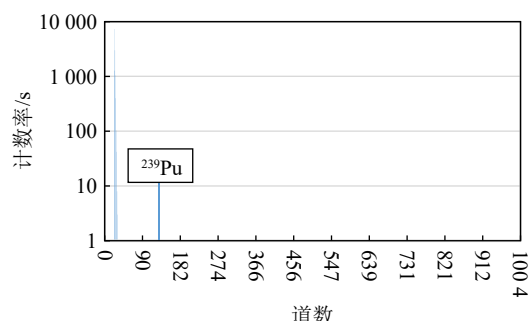


图 6 类布拉格探测器内部的电场分布

^{239}Pu 标准样品和空白样品分别进行了测定, 测量能谱图如图 7 和图 8 所示, 对比标准样品和空白样品的能谱可以明显看出探测器能很好实现 ^{239}Pu 离子的测定。

图 7 ^{239}Pu 标准样品 30 s 测量能谱图 8 ^{239}Pu 空白样品 200 s 的测量能谱

3.2 ^{239}Pu 的探测限

对于没有稳定同位素的核素来讲一般通过探测限来表示 AMS 系统对此核素的测量灵敏能力。由于钚没有稳定的同位素, 为了实现 ^{239}Pu 的定量, 实验利用 ^{242}Pu 作为内标载体, 通过测量 ^{242}Pu 和 ^{239}Pu 比值来测定, 并根据 ^{242}Pu 内标载体的含量即可实现 ^{239}Pu 含量的测定, 同时为了实现样品的载带, 需要利用铁离子通过共沉淀方法进行样品的制备。为了得到 ^{239}Pu 的探测限, 需要利用 ^{239}Pu 和 ^{242}Pu 已知含量的标准样品与载体 ^{242}Pu 含量已知且没有 ^{239}Pu 的空白样品共同进行测定。首先换上 $^{239}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ 标准样品, 调节 AMS 系统将 $^{242}\text{Pu}^{3+}$ 粒子送入探测器, 并进行系统优化使得 ^{242}Pu 的计数率达到最大, 并记下系统的参数; 然后调节 AMS 系统将 $^{239}\text{Pu}^{3+}$ 粒子送入探测器, 并对注入 AMS 系统进行优化, 使得 ^{239}Pu 的计数率达到最大, 并记下系统参数; 交替改变 AMS 系统参数对 ^{239}Pu 和 ^{242}Pu 的计数率进行测定, 得到 n_{242}/n_{239} 的比值并与标称比值 (N_{242}/N_{239}) 进行对比。实验对三个标准样品进行了测定, 标准样品的数据和测量数据列于表 1 和图 9, 显示测量结果和标称值在误差范围内完全符合, 表明 ^{239}Pu 和 ^{242}Pu 具有相同的测量效率, 验证了装置的线性 $R^2=0.9997$ 。在此基础上对空白样品进行了测量, 测量结果也显示在表 1

表 1 ²³⁹Pu/²⁴²Pu 系列标准样品数据及测量结果

样品	样品制备数据			样品测量数据			
	²³⁹ Pu 的质量/fg	²⁴² Pu 的质量/fg	²³⁹ Pu/ ²⁴² Pu	核素	计数率	测量时间/s	²³⁹ Pu/ ²⁴² Pu
1 [#]	54.17	1 150	(4.71±0.24)×10 ⁻²	²³⁹ Pu	0.31	100	(4.92±0.81)×10 ⁻²
				²⁴² Pu	4.43	30	
				²³⁹ Pu	0.24	100	
				²⁴² Pu	4.81	30	
				²³⁹ Pu	0.16	100	
				²⁴² Pu	4.26	30	
2 [#]	10.52	1 090	(9.65±0.52)×10 ⁻³	²⁴² Pu	38.54	20	(8.86±1.12)×10 ⁻³
				²³⁹ Pu	0.34	100	
				²⁴² Pu	28.20	20	
				²³⁹ Pu	0.31	100	
				²⁴² Pu	20.16	20	
				²³⁹ Pu	0.15	100	
3 [#]	5.28	1 150	(4.59±0.25)×10 ⁻³	²⁴² Pu	44.05	20	(4.38±0.69)×10 ⁻³
				²³⁹ Pu	0.18	100	
				²⁴² Pu	37.38	20	
				²³⁹ Pu	0.14	100	
				²⁴² Pu	28.00	20	
				²⁴² Pu	15.56	20	
空白样品	0.10	1 070	(1.22±1.25)×10 ⁻⁴	²³⁹ Pu	0	200	
				²⁴² Pu	24.36	20	
				²³⁹ Pu	1	200	
				²⁴² Pu	31.54	20	
				²³⁹ Pu	1.00	200	
				²⁴² Pu	37.88	20	

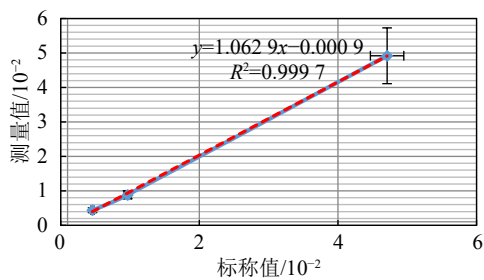


图 9 ²³⁹Pu 系列标准样品测量值与标称值的关系图

当中。利用空白样品中加入的²⁴²Pu载体的质量(m_{242})、测量空白样品中²³⁹Pu和²⁴²Pu的计数率 V_{239} 、 V_{242} 。利用式(6)即可得到²³⁹Pu的探测限(L_{239})为0.1 fg。

$$L_{239} = m_{242} \times \frac{V_{239}}{V_{242}} \times \left(\frac{n_{239}}{n_{242}} \right) / \left(\frac{N_{239}}{N_{242}} \right)。$$

(6)

4 总结和讨论

本工作研制了紧凑型 AMS 装置。基于研制的紧凑

型 AMS 装置通过剥离气体种类、电荷态的选取、剥离气压的优化设定、预加速的电压优化选择等的系统研究，建立了²³⁹Pu AMS 系统的高效传输条件，为了实现低能量高灵敏²³⁹Pu的测定，研制了适用于低能量²³⁹Pu测量的类布拉格型探测器^[13]，实现了能量为0.96 MeV的²³⁹Pu测定，并通过分子本底和邻近质量核素的本底排除实现了²³⁹Pu的高灵敏测定；通过以上研究并通过系列标准样品和空白样品的测定，得到了原子能院研制的紧凑型 AMS 装置对²³⁹Pu的测量灵敏度达到0.1 fg。这些研究结果表明，对于²³⁹Pu而言低能量 AMS 装置是实现²³⁹Pu测量最有效的分析装置，它在传输效率、系统稳定性和测量灵敏度方面均优于能量较高的 AMS 装置，显示出低能量紧凑型 AMS 装置在²³⁹Pu测量方面所具有的独特优势。随着²³⁹Pu在环境、地质等领域研究的推广，本工作研制的 AMS 装置所具有灵敏度高、结构紧凑、占地面积小、运行成本低、操控简单等优点，将使其在相关²³⁹、²⁴⁰、²⁴¹Pu研究发挥广泛应用。

致谢 感谢中国辐射防护研究院戴雄新研究员提供的 ^{239}Pu 的标准样品和空白样品。

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2000 report to the General Assembly, Annex C: Exposures from Man-Made Sources of Radiation[R]. New York: United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, 2000.
- [2] DUFFA C, RENAUD P. Science of The Total Environment, 2005, 348(1-3): 1642.
- [3] ALEWELL C, PITOIS A, MEUSBURGER K, et al. *Earth-Science Reviews*, 2017, 172: 107.
- [4] DONG Wei, YANG Yilong, GUO Qiuju, et al. Radiation Protection, 2010, 30(3): 175. (in Chinese). (董微, 杨益隆, 郭秋菊. 辐射防护, 2010, 30(3): 175.)
- [5] Agilent, Agilent 8800 Triple Quadrupole ICP-MS: Understanding Oxygen Reaction Mode in ICP-MS/MS [R]. Agilent Technologies, 2012. https://www.agilent.com.cn/cs/library/technicaloverviews/public/5991-1708EN_TechOverview_ICP-MS_8800_OR mode.pdf
- [6] XING S, ZHANG W, QIAO J, et al. *Talanta*, 2018, 187: 357.
- [7] HOU X, ZHANG W, WANG Y. *Analytical Chemistry*, 2019, 91(18): 11553.
- [8] SUN Xuejie, LI Run, YANG Junqiang, et al. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2017, 39(5): 321. (in Chinese)
- (孙雪杰, 李润, 杨军强, 等. 核化学与放射化学, 2017, 39(5): 321.)
- [9] LOPEZ-LORA M, CHAMIZO E. *Nucl Instr and Meth B*, 2019, 455: 39.
- [10] LUO Zhiping, ZHENG Guowen, PANG Hongchao, et al. Atomic Energy Science and Technology, 2019, 53(11): 2317. (in Chinese) (骆志平, 郑国文, 庞洪超, 等. 原子能科学技术, 2019, 53(11): 2317.)
- [11] HE Ming, ZHAO Qingzhang, ZHANG Wenhui, et al. *Nuclear Physics Review*, 2022, 39(1): 54. (in Chinese) (何明, 赵庆章, 张文慧, 等. 原子核物理评论, 2022, 39(1): 54.)
- [12] GUO Wei, LI Kangning, YOU Qubo, et al. *Nuclear Physics Review*, 2022, 39(3): 311. (in Chinese) (郭巍, 李康宁, 游曲波, 等. 原子核物理评论, 2022, 39(3): 311.)
- [13] ZHANG Wenhui, ZHAO Qingzhang, HE Ming, et al. *Nuclear Physics Review*, 2023, 40(4): 560. (张文慧, 赵庆章, 何明, 等. 原子核物理评论, 2023, 40(4): 560.)
- [14] ZENG Li, WANG Zhongliang. Earth and Environment, 2011, 39(1): 105. (in Chinese) (曾理, 王中良. 地球与环境, 2011, 39(1): 105.)
- [15] LUO Maoyi, HU Ji, XING Shan, et al. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2019, 41(5): 464. (in Chinese) (罗茂益, 胡骥, 邢闪, 等. 核化学与放射化学, 2019, 41(5): 464.)
- [16] HIGHLAND V L. *Nucl Instr and Meth*, 1975, 129: 497.
- [17] SUTER M, MAXEINER S, SYNAL H A. *Nucl Instr and Meth B*, 2018, 437: 116.
- [18] MARCUS-CHRISTL M, GAUTSCHI P, MAXEINER S, et al. *Nucl Instr and Meth B*, 2023, 534: 61.

The Measurement Technology Method of ^{239}Pu with the Developed Compact AMS System

ZHAO Qingzhang, ZHANG Wenhui, HE Ming[†], XIU Chengli, GUO Wei, LI Jianliang,
LI Kangning, BAO Yiwen, YOU Qubo, SU Shengyong
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: With the technology improvement, a compact Accelerator Mass Spectrometry (AMS) device has been developed by China Institute of Atomic Energy on the basis of the low-energy AMS device developed earlier. The measurement method of ^{239}Pu was investigated with newly established compact AMS device. In order to establish the ^{239}Pu transport with the AMS system, the relationships of the transmission efficiency with the type of stripping gas, the selection of charge states, the thickness of stripping gas and the pre-acceleration voltage were systematically studied by using ^{238}U , and then the optimized conditions of ^{239}Pu measurement with the AMS system is established. It is verified that the linear R^2 of the device is 0.999 7 and the detection limit of ^{239}Pu is 0.1 fg through a series of standard samples and blank samples. It lays a foundation for the wide application of ^{239}Pu in environmental and geological fields.

Key words: compact AMS; ^{239}Pu ; study of the measurement technology

Received date: 16 Jan. 2024; Revised date: 26 Feb. 2024

[†] Corresponding author: HE Ming, E-mail: heminghy@163.com