

# 加速器质谱法测定 $^{129}\text{I}$ 的研究

何明 姜山 蒋崧生 武绍勇

(中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京, 102413)

谢运棉

(中国原子能科学研究院保健物理部, 北京, 102413)

为了排除加速器质谱法(AMS)测量 $^{129}\text{I}$ 时 $^{127}\text{I}$ 的干扰, 采用微通道板获取起始时间信号, 用半导体探测器获取停止时间信号, 建立了飞行时间系统。此系统总的时间分辨为 650 ps, 使 $^{129}\text{I}$ 测量的灵敏度( $^{129}\text{I}$ 与 $^{127}\text{I}$ 原子比)达到  $6 \times 10^{-13}$ , 并应用于环境样品和国际比对样品中 $^{129}\text{I}$ 含量的测定。

关键词  $^{129}\text{I}$  加速器质谱法 飞行时间

自然界中 $^{129}\text{I}$ 主要有两个来源: 宇宙射线引起 Xe 发生的散裂反应和地壳中一些重核素(主要是 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ )的自发裂变或诱发裂变。近几十年来, 核武器试验和核能设施产生了相当多的 $^{129}\text{I}$ , 将自然界中的 $^{129}\text{I}$ 水平提高了几个数量级<sup>[1]</sup>。由于 I 的挥发性和 $^{129}\text{I}$ 具有长的半衰期( $T_{1/2} = 1.57 \times 10^7 \text{ a}$ ), 自然界中的 $^{129}\text{I}$ 会进入人类的食物链并聚集起来, 对人体产生影响。因此, 需要对环境中的 $^{129}\text{I}$ 进行监测。另外, 在核安全评估、地质年代测定、地下水分析等方面 $^{129}\text{I}$ 的测定也有重要的应用前景。 $^{129}\text{I}$ 可用其它方法测定, 如中子活化法(NAA)和电感耦合等离子质谱法(ICP-MS)。由于样品照射时 $^{133}\text{Cs}$ 、 $^{127}\text{I}$ 产生的 $^{130}\text{I}$ 以及 $^{127}\text{I}$ 产生的 $^{126}\text{I}$ 等都会产生干扰从而限制了 NAA 测量灵敏度<sup>[2]</sup>; 由于 $^{129}\text{Xe}$ 和 $^{127}\text{I}$ 的干扰, ICP-MS 法测定 $^{129}\text{I}$ 的最低限为  $10^{10}$  个原子<sup>[3]</sup>; AMS 测定能有效地排除干扰, 提高 $^{129}\text{I}$ 测量的灵敏度。因此, AMS 测定环境中的 $^{129}\text{I}$ 颇受关注, 在其它学科中的应用也在逐步展开。

## 1 AMS 测定 $^{129}\text{I}$ 的主要干扰

中国原子能科学研究院的加速器质谱计系统<sup>[4]</sup>是将被测核素在离子源中转变为负离子, 然后引入加速器加速, 再经磁场和电场的分离排除干扰离子, 最后由探测器记录被测核素的离子数目。因此, 加速器质谱法是对放射性核素的直接测量, 它能有效避免放射性测量的弱点。

在加速器质谱法测量中, 对被测核素产生干扰的主要是被测核素的同位素和它的同量异位素。在 $^{129}\text{I}$ 的测量中, 它的同量异位素是 $^{129}\text{Xe}$ 。由于 Xe 为稀有元素, 且其负离子不稳定, 实验

表明它在 $^{129}\text{I}$ 测量中不会产生干扰<sup>[5]</sup>。而 $^{129}\text{I}$ 的同位素 $^{127}\text{I}$ 将对 $^{129}\text{I}$ 的测量产生干扰。在所测样品中, $^{127}\text{I}$ 的原子数一般是 $^{129}\text{I}$ 的 $10^9$ 以上,且两者质量相差较小。由于偏转磁铁有限的质量分辨仍会有很少量的 $^{127}\text{I}$ 通过偏转磁铁进入加速器。同时, $^{127}\text{I}$ 还会以分子离子 $^{127}\text{IH}_2^+$ 的形式进入加速器。 $^{127}\text{IH}_2^+$ 经碳膜剥离后分解为多电荷态的 $^{127}\text{I}$ 离子和 $\text{H}^+$ ,这些 $^{127}\text{I}$ 离子与直接进入加速器中的 $^{127}\text{I}$ 离子经分析磁铁后绝大部分被排除。但在加速器中,由于电荷交换等原因会使 $^{127}\text{I}$ 离子形成连续动量谱,使一些 $^{127}\text{I}$ 离子的质能积与 $^{129}\text{I}$ 相同(能量比 $^{129}\text{I}$ 高 1.5%)而通过分析磁铁,并部分通过静电偏转器进入探测器形成干扰。因此, $^{129}\text{I}$ 测量中的主要干扰是 $^{127}\text{I}$ 。为此建立飞行时间系统用于排除 $^{127}\text{I}$ 的干扰。

## 2 飞行时间探测器系统

### 2.1 飞行时间原理

通过测量在一定距离的飞行时间,可以确定匀速飞行离子的速度,再测出离子的能量,在非相对论情况下可确定离子的质量 $A$ 。

$$A = \frac{2E}{v^2} = 2E \frac{t^2}{L^2}$$

在忽略能量和长度的相对误差情况下,质量分辨由下式给出:

$$\frac{\Delta A}{A} = 2.828 \times 10^{-2} \cdot \sqrt{\frac{E}{A} \cdot \frac{\Delta t}{L}}$$

式中: $A$ 为离子质量数; $E$ 为离子能量(MeV); $L$ 为飞行距离(m); $t$ 为飞行时间(ns)。因此,通过时间分辨 $\Delta t$ 就可区分不同质量的离子。建立飞行时间系统就是利用 $^{129}\text{I}$ 和 $^{127}\text{I}$ 的飞行时间不同将它们区分开。

### 2.2 飞行时间系统

由微通道板(MCP)和金硅面垒型半导体探测器在AMS管道上建立飞行时间系统(图1)。飞行距离为2m,MCP探测器给出起始时间信号,半导体探测器给出停止时间信号和能量信号。

微通道板探测器由碳膜、栅网和一个带50Ω阳极的V形微通道板组成。碳膜的厚度为 $10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ,栅网由直径为 $50\mu\text{m}$ 的镀金钨丝拉成,丝间隔为1mm,碳膜到栅网的距离为4mm,MCP与阳极的间距为1mm。一组负高压给碳膜提供电压,另一组负高压通过分压电路给微通道板加压。当离子穿过碳膜时,从碳膜上打出电子,这些电子经碳膜和栅网之间的电场加速,打在微通道板上,经微通道板倍增产生更多的电子,这些电子被阳极吸收,给出起始时间信号。停止时间信号由直径为12mm的金硅面垒型半导体探测器给出。在测量 $^{129}\text{I}$ 时,微通道板上电压 $V_1 = -1950\text{V}$ ;  $V_2 = -2400\text{V}$ ,半导体上偏压 $V = 180\text{V}$ ,飞行时间系统总的时间分辨(FWHM)为650ps, $^{129}\text{I}$ 和 $^{127}\text{I}$ 在此距离上的飞行时间差为2.6ns。

## 3 $^{129}\text{I}$ 测量

$^{129}\text{I}$ 的测量一般是对样品中 $^{129}\text{I}$ 与 $^{127}\text{I}$ 原子比的测定。为减小离子的传输效率、同位素分馏效应等方面的影响,将待测样品的 $^{129}\text{I}$ 与 $^{127}\text{I}$ 原子比值与标准样品测量值进行比较来测定。

### 3.1 环境水样品制备

取适量水样,加入一定量的KI作为碘载体,用201×7CI型树脂吸附碘,将树脂转入解

吸器中使碘进入解吸液, 在解吸液中加入  $\text{CCl}_4$  进行萃取; 萃取后的有机相经去离子水洗后反萃, 使碘进入水相; 往水相加入适量的  $\text{AgNO}_3$  得到  $\text{AgI}$  沉淀, 将  $\text{AgI}$  烘干可得到 AMS 测量所需的样品。在 AMS 测量前需要将  $\text{AgI}$  与高纯银粉按  $m(\text{AgI}):m(\text{Ag}) = 1:1$  混合后压入靶锥。

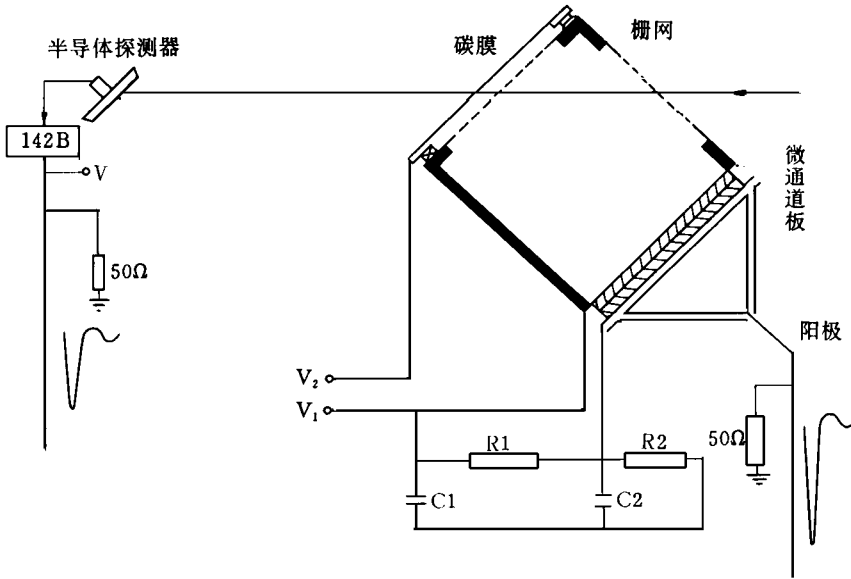


图 1 飞行时间系统

Fig 1 Time of flight system

### 3.2 <sup>129</sup>I 与 <sup>127</sup>I 原子比的测定

实验设置加速器端电压为 8.05 MV, 用分析磁铁选择  $\text{I}^{11+}$  离子作为被测离子。

在 AMS 装置上, <sup>129</sup>I 与 <sup>127</sup>I 原子比的测定需要对 <sup>129</sup>I 和 <sup>127</sup>I 进行交替测量。测量前需进行对光, 即用 <sup>127</sup>I 离子对离子源和束流传输元件进行调节, 直到获得最大的稳定束流。实验中 <sup>127</sup>I 离子束流可达 1—1.8  $\mu\text{A}$ , <sup>127</sup>I 离子从低能端到相点 <sup>127</sup> $\text{I}^{11+}$  离子的传输效率为 2%—3%。<sup>127</sup>I 束流一般用相点的法拉第筒来测量。

由于 <sup>129</sup>I 束流为“零”, 不能用法拉第筒来调节束流传输系统, 故采用 <sup>127</sup>I 模拟 <sup>129</sup>I 的办法, 将加速器的端电压升高 1.5%, 使 <sup>127</sup>I 的磁刚度和 8.05 MV 时 <sup>129</sup>I 的磁刚度相同并以此来刻度开关磁铁的电流值。离子源传输 <sup>129</sup>I 时偏转磁铁的磁感应强度  $B_{129}$  可由传输 <sup>127</sup>I 时的磁感应强度  $B_{127}$  求得:

$$B_{129} = B_{127} \times \sqrt{\frac{M_{129}}{M_{127}}}$$

式中:  $M_{127}, M_{129}$  为 <sup>127</sup>I 和 <sup>129</sup>I 的质量数。

在测量 <sup>129</sup>I 时, 从离子源引出 <sup>129</sup>I 离子, 经加速器加速后进入分析磁铁, 选择 <sup>129</sup> $\text{I}^{11+}$  离子, 经开关磁铁进入静电分析器, 最后进入飞行时间探测器。图 2 为半导体探测器测量的能谱图, 其中, 600 道附近的峰为 <sup>127</sup> $\text{I}^{11+}$  和 <sup>129</sup> $\text{I}^{11+}$  离子共同形成的。为排除其它价态离子的干扰, 在

VAX11/780 上用软件开门的办法只使  $I^{11+}$  离子的飞行时间谱被获取(图 3)。由此可见, 建立飞行时间系统可将  $^{127}\text{I}$  的干扰排除。目前, 测量每个样品的程序是:  $^{127}\text{I}$  束流测量(3—5 m in);  $^{129}\text{I}$  测量(20—60 m in);  $^{127}\text{I}$  束流测量(3—5 m in);  $^{129}\text{I}$  测量(20—60 m in);  $^{127}\text{I}$  束流测量, 最后求得  $^{129}\text{I}$  与  $^{127}\text{I}$  原子比的平均值。

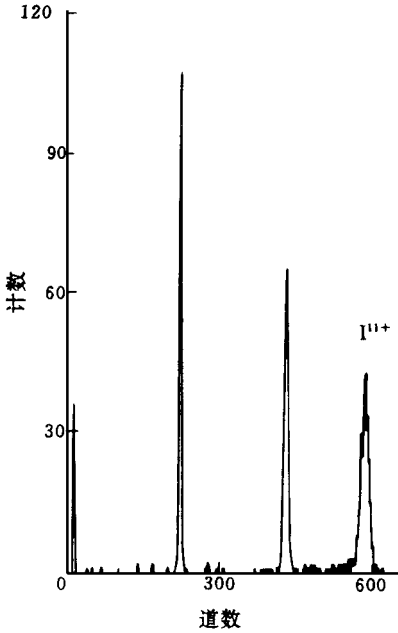


图 2 半导体探测器测量的能谱

Fig 2 Energy spectrum

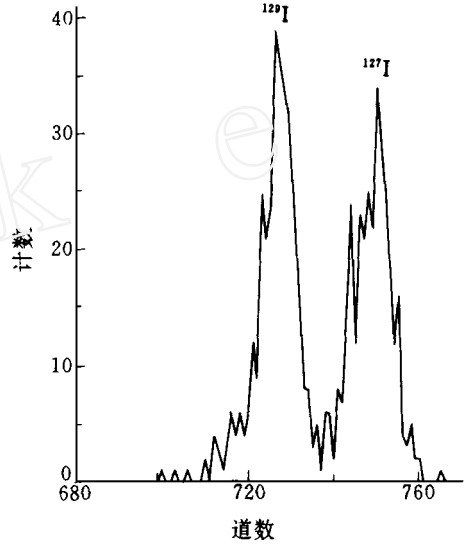


图 3 飞行时间谱

Fig 3 Time of flight spectrum

#### 4 结果和讨论

建立飞行时间系统使测量  $^{129}\text{I}$  的灵敏度达到  $^{129}\text{I}$  与  $^{127}\text{I}$  原子比为  $6 \times 10^{-13}$ , 对多个标准样品的测量表明, 实验测定值误差在 10% 以内, 可以系统地开展  $^{129}\text{I}$  在各学科中的应用。

表 1 某些地区环境中  $^{129}\text{I}$  的测定结果

Table 1 The results of determination of  $^{129}\text{I}$  in the environments

样品编号	采集水样品的体积/L	$R_{129/127}$
1	10	$(2.0 \pm 0.1) \times 10^{-7}$
2	100	$(7.3 \pm 0.3) \times 10^{-10}$
3	100	$(3.1 \pm 0.2) \times 10^{-10}$
4	200	$(2.3 \pm 0.1) \times 10^{-10}$
5	120	$(3.5 \pm 0.2) \times 10^{-10}$
6	120	$(6.7 \pm 0.6) \times 10^{-11}$
7	120	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^{-10}$
8	120	$(4.5 \pm 0.4) \times 10^{-11}$

对首批国际比对样品和我国一些地区环境水样品进行了<sup>129</sup>I的测定。比对样品中<sup>129</sup>I与<sup>127</sup>I的原子比在 $8.6 \times 10^{-11}$ 到 $4.9 \times 10^{-12}$ 之间,有8个实验室参加,本实验室测定值与8个实验室测定值的平均值在5%范围内符合,表明本实验室建立的AMS测定<sup>129</sup>I的可靠性。环境样品的测定结果如表1所示( $R_{129/127}$ 为<sup>129</sup>I与<sup>127</sup>I的原子比)。给出了我国一些地区<sup>129</sup>I的分布情况,为我国进行<sup>129</sup>I的环境评价提供了数据。

### 参 考 文 献

- 1 Wagner M J M, Ditttrich-Hannen B, Synal H A, et al Increase of <sup>129</sup>I in the Environment Nuclear Instrument and Method in Physics Research B, 1996, 113: 490
- 2 Handl J. Concentrations of <sup>129</sup>I in the Biosphere Radiochemical Acta, 1996, 72: 33
- 3 Rosamund J C, Christopher J P. Determination of Iodine-129 in Vegetable Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 1992, 7: 635
- 4 姜山, 蒋崧生, 郭宏, 等. 北京HF-13串列加速器质谱计测定<sup>36</sup>Cl的研究. 核技术, 1993, 16: 35.
- 5 Elmore D, Gove H E, Ferraro R, et al Determination of <sup>129</sup>I Using Tandem Accelerator Mass Spectrometry. Nature, 1980, 286: 138

## DETERMINATION OF <sup>129</sup>I WITH THE ACCELERATOR-MASS-SPECTROMETRY TECHNIQUE

He Ming Jiang Shan Jiang Songsheng Wu Shaoyong

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-49, Beijing, 102413)

Xie Yunmian

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-49, Beijing, 102413)

### ABSTRACT

In order to eliminate the <sup>127</sup>I interference in determining <sup>129</sup>I with the accelerator mass spectrometry technique, a time of flight (TOF) system was set up. The TOF system consists of a microchannel plate detector (MCP) providing start signals and a Si surface-barrier detector providing stop signals. The overall time resolution is 650 ps (FWHM), the determination sensitivity for <sup>129</sup>I (the ratio of the <sup>129</sup>I atomic number to the <sup>127</sup>I atomic number) is  $6 \times 10^{-13}$ . Some environmental samples and international comparison samples are measured.

**Key words** <sup>129</sup>I Accelerator mass spectrometry Time of flight