300 kV 多核素低能加速器质谱仪对 ^{14}C、^{129}I 及锕系核素的测量性能

原 妮[1,2] 邬 洋[1,2] 罗茂益[1,2,3] 杨永刚[1,2] 彭 彤[1,2]

1（中国辐射防护研究院 太原 030006）

2（核药研发转化与精准防护山西省重点实验室 太原 030006）

3（苏州大学放射医学协同创新中心 苏州 215006）

摘要 中国辐射防护研究院（China Institute for Radiation Protection，CIRP）引进一台 300 kV 多核素低能加速器质谱仪（Multi-Isotope Low-Energy Accelerator mass spectrometry，MILEA），可用于各种基体样品中超低含量的 ^{14}C、^{129}I 和锕系核素（Pu 同位素、^{237}Np、Am 同位素、Cm 同位素及 U 同位素）的测量。在对该系统进行现场验收及调试测量中，通过对稳定核素从低能端到高能端的传输效率及高能端的电流强度、空白样品中稀有放射性核素与其稳定核素的比值及丰度灵敏度、标准样品中单个样品及多个样品测量的弥散度等关键参数的测试，结果显示：$^{14}C/^{12}C$ 最小比值为（1.3±0.1）×10^{-15}，测量精度为 0.2%；WWI $^{129}I/^{127}I$ 最小比值为（3.76±0.2）×10^{-14}，测量 $^{129}I/^{127}I$ 比值为 10^{-12} 的样品，测量精度为 0.41%；针对超铀核素的测量，239/238 的丰度灵敏度为（1.5~2.7）×10^{-13}，Pu 同位素、^{237}Np 和 ^{244}Cm 的最低探测限低至 10^{-18} g 水平。证明该系统已具备对 ^{14}C、^{129}I 和锕系核素的超灵敏测量能力，所获得的测量水平与高能加速器质谱仪（Accelerator Mass Spectrometry，AMS）系统相比具有竞争力。

关键词 加速器质谱仪，^{14}C，^{129}I，锕系核素

中图分类号 TL817+.4

DOI: 10.3724/j.0253-3219.2026.hjs.49.250158

CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2026.49.250158

The performance of 300 kV multi-isotope low-energy AMS system (MILEA) for ^{14}C, ^{129}I and Actinides

YUAN Ni[1,2] WU Yang[1,2] LUO Maoyi[1,2,3] YANG Yonggang[1,2] PENG Tong[1,2]

1(*China Institute for Radiation Protection*, *Taiyuan 030006*, *China*)

2(*Shanxi Provincial Key Laboratory of Nuclear Drug R&D*, *Transformation and Precision Protection*, *Taiyuan 030006*, *China*)

3(*Collaborative Innovation Center of Radiation Medicine of Jiangsu Higher Education Institutions*, *Soochow University*, *Suzhou 215006*, *China*)

Abstract **[Background]** Accelerator Mass Spectrometry (AMS) is a powerful technique for ultra-trace analysis of long-lived radionuclides whilst the performance is the mean concern for practical application. **[Purpose]** This study aims to evaluate the performance of a 300 kV multi-isotope low-energy accelerator mass spectrometry (MILEA) system installed at the China Institute for Radiation Protection (CIRP) for measuring ^{14}C, ^{129}I, and actinide nuclides.

国家自然科学基金(No.12375317, No.12175201)、山西省中央引导项目(No.YDZJSX2024D078)和中国辐射防护研究院创新团队基金资助

第一作者：原妮，女，1993 年出生，2019 年于兰州大学获硕士学位，从事长寿命放射性核素质谱测量研究

通信作者：罗茂益，E-mail：luomaoyi@cirp.org.cn

收稿日期：2025-04-07，修回日期：2025-09-22

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 12375317, No. 12175201), Shanxi Provincial Central Guidance Project (No. YDZJSX2024D078) and Innovation Team Fund of China Institute for Radiation Protection

First author: YUAN Ni, female, born in 1993, graduated from Lanzhou University with a master's degree in 2019, focusing on the research of mass spectrometry for long-lived radionuclides

Corresponding author: LUO Maoyi, E-mail: luomaoyi@cirp.org.cn

Received date: 2025-04-07, revised date: 2025-09-22

[Methods] The system was systematically tested through on-site acceptance and tuning measurements. Firstly, the transmission efficiency from the low-energy end to the high-energy end and current intensity were measured for stable isotopes. Then, the ratios of rare radionuclides to stable nuclides and abundance sensitivity were determined using blank samples. Finally, the measurement precision was evaluated by analyzing multiple standard samples. **[Results]** Measurement results show that the $^{14}C/^{12}C$ blank ratio achieved is $(1.3\pm0.1)\times10^{-15}$. The $^{129}I/^{127}I$ blank ratio in Woodward iodine is $(3.76\pm0.2)\times10^{-14}$. For actinide measurements, the abundance sensitivity of $^{239}Pu/^{238}U$ is $(1.5\sim2.7)\times10^{-13}$, and the detection limits for Pu isotopes, ^{237}Np, and ^{244}Cm reached the 10^{-18} g level. **[Conclusions]** Evaluation results of this study demonstrate that the CIRP-AMS system achieves excellent performance competitive with larger AMS facilities, making it suitable for ultra-sensitive analysis of ^{14}C, ^{129}I, and actinide nuclides in various applications.

Key words Accelerator Mass Spectrometry (AMS), ^{14}C, ^{129}I, Actinide nuclides

加速器质谱仪（Accelerator Mass Spectrometry，AMS）通过结合传统质谱技术、离子加速器系统及核探测技术，将待测粒子加速到较高能量，并利用高能加速管内的气体/膜剥离技术，排除传统质谱难以突破的相邻质量数核素干扰、分子团本底和同质异位素的干扰，实现长寿命宇宙成因核素（如：^{10}Be、^{26}Al和^{14}C）及人工放射性核素（如^{129}I、^{239}Pu、^{240}Pu、^{233}U和^{236}U）的超痕量测量。AMS在分析探测限（可低至10^4原子）、丰度灵敏度（达到10^{-15}或更低）[1]等方面具有无可比拟的优势，且其对样品需求量低，可显著减少样品的制备体积或用量，同时减少复杂的前期化学制样工作。

加速器质谱仪早期主要用于^{14}C在定年中的测量[2]。1977年，加拿大McMaster大学[3]和美国Rochester大学[4]同时在《Science》发表了利用串列加速器技术通过测量原子个数获取样品中^{14}C含量的方法，两项研究均使用溅射负离子源技术抑制同质异位素^{14}N干扰。自此，加速器质谱分析技术因其样品用量少、分析速度快、探测限低等优势得以迅速发展。初期，AMS主要由原用于核物理实验研究的串列加速器改造而来，其端电压为5~14 MV。1980年，美国通用离子公司（General Ionex Corporation）制造了基于串列加速器原理的专用系统MACS（Mass And Charge Spectroscopy），其加速器端电压为3 MV[5]。随着技术的发展，20世纪90年代瑞士苏黎世联邦理工学院（Swiss Federal Institute of Technology Zurich，ETH Zurich）分别在0.5 MV和1 MV的端电压下实现了^{14}C的测量，$^{14}C/^{12}C$比值探测下限均低于10^{-13}，将加速器质谱的发展推向小型化[6]。随后专用于^{14}C测量的小型AMS系统走向市场，如0.2 MV的微型碳定年系统（Mini Carbon Dating System，MICADAS）（瑞士Ionplus AG公司）、0.25 MV的单级加速器质谱系统（Single Stage AMS，SSAMS）（美国国家静电公司，National Electrostatics Corporation）等，其应用也从考古定年拓展到大气污染物示踪[7]和生物医学[8]等领域。同时基于地学、药学、年代学和核科学等领域应用中超低水平长寿命放射性核素分析测量需求，现已逐步建立了^{10}Be、^{26}Al、^{36}Cl、^{41}Ca、^{129}I以及锕系核素（An）等的AMS分析方法。Fifield等[9]在苏黎世联邦理工学院（ETH Zurich）0.5 MV AMS上开展了Pu同位素低能量测量，研究结果表明加速器端电压为0.3 MV时，Pu同位素的测量灵敏度优于大型加速器质谱仪系统。Vockenhuber等[10]研究了低能AMS对^{129}I的探测性能，当加速器端电压为0.3 MV，氦气做剥离气时，碘本底样品Woodword碘中$^{129}I/^{127}I$比值为$(3.4\pm0.3)\times10^{-14}$，与≥1 MV AMS分析能力一致。自此，低能多核素AMS系统的开发成为一个活跃的研究领域[11]。

为开展^{129}I、锕系核素在环境监测、环境示踪及职业人员内照射污染监测及^{14}C在药代动力学中的微剂量示踪研究，中国辐射防护研究院（China Institute for Radiation Protection，CIRP）引进300 kV多核素低能加速器质谱仪（Multi-Isotope Low-Energy Accelerator mass spectrometry，MILEA），并开发了相关的分析测量能力。

1 实验

1.1 MILEA系统

CIRP的MILEA系统（以下简称为CIRP-AMS）由ETH Zurich和瑞士Ionplus AG公司联合研发，用于^{14}C、^{129}I、锕系核素、^{10}Be、^{26}Al和^{41}Ca等的超灵敏测量[12]，占地面积为7 m×3.6 m，系统结构如图1所示。该AMS采用的是Cs溅射负离子源，注入系统由一个低能静电分析器（Low Energy Electrostatic Analyzer，LE-ESA）和低能双聚焦磁铁（LE Magnet）组成。该仪器加速器部分是一个最大端电压能加载到300 kV的真空绝缘高压平台，内置气体剥离器。高能端分析器由一个三重四级杆、两个质量（Em/q^2）

分析器高能（High Energy，HE）磁铁和一个置于其中间的静电（*E*/*q*）分析器（HE-ESA）组成（*E*为离子能量，*m*为离子质量，*q*为离子电荷态）。在高能磁铁1后面的分析室内配置了7个可移动的、电流测量范围从皮安（pA）到几百微安（μA）的法拉第杯（HE法拉第杯（Faraday Cup，FC）），仪器末端配置一个双阳极气体（异丁烷）探测器（Gas Ionization Chamber，GIC）[13]。样品测量时，Cs^+轰击靶样，引出待测负离子（如C^-、I^-、AnO^-（带负电荷的锕系核素氧化物））进入离子注入系统，负离子束先经LE ESA能量选择和LE magnet质量选择后注入加速器。注入到加速器中的负离子，经过He气剥离器时，负离子外层电子被剥离形成正离子；同时基于库仑排斥效应，分子团离子被解离为各种价态的正离子[14]；通过剥离气压的调节可以选择目标核素剥离效率最高且同质荷比干扰最小的离子形态（如C^+、I^{2+}、An^{3+}等），先后经三重四级杆聚焦选择、HE-ESA能量选择、磁分析器质量选择后进行测量。稳定核素或高丰度核素（^{235}U、^{238}U）由法拉第杯进行电流测量（如^{12}C、^{13}C、^{9}Be、^{40}Ca、^{127}I、^{235}U、^{238}U及^{27}Al等），而含量极低的放射性核素（如^{14}C、^{129}I、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Pu、^{242}Pu、^{241}Am、^{244}Cm、^{233}U、^{236}U等）则进入最后的气体探测器（屏栅电离室）进行计数。

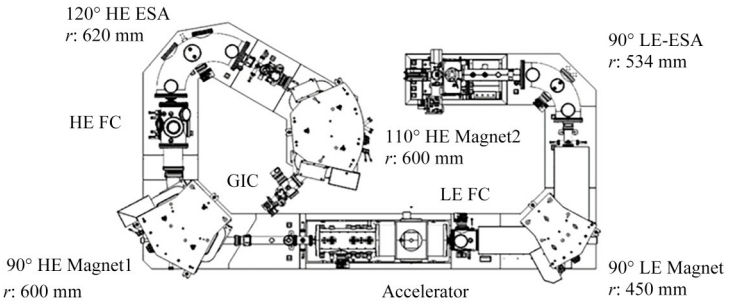


图1　300 kV多核素低能加速器质谱仪MILEA系统结构图
Fig.1　Schematic diagram of the 300 kV multi-nuclide low-energy accelerator mass spectrometer MILEA system

1.2　标准样品和空白样品

表1详细列出了CIRP-AMS性能评估和验收测试所用的空白和标准样品信息，其中用于^{14}C性能评估的OX-I和OX-II为美国国家标准与技术研究院（National Institute of Standards and Technology，NIST）国际标准物质，用于^{129}I性能评估的Woodword碘[10,15]为国际通用的低^{129}I含量的碘试剂，用于U同位素测试的标准为ETH内部标准[16]和维也纳大学维也纳环境研究加速器（Vienna Environmental Research Accelerator，VERA）实验室内部标准[17]，用于^{237}Np、Pu同位素、Am同位素及^{244}Cm的性能评估的样品均由NIST、英国国家物理实验室（National Physical Laboratory，NPL）或者参考物质与测量研究所（Institute for Reference Materials and Measurements，IRMM）标准溶液稀释配置而成。

2　结果和讨论

2.1　^{14}C的分析

^{14}C是AMS分析最多的长寿命放射性核素，全世界约90%的AMS机时用于^{14}C测量。CIRP-AMS所配备的离子源具备固体石墨和气体CO_2两种进样方式。样品靶样在离子源中通过Cs溅射引出C^-离子，同时利用N^-离子不稳定的特性去除同质异位素^{14}N的干扰。引出负离子能量为−39.4 keV。负离子束流经能量和质量筛选器后注入加速器。由于^{12}C、^{13}C和^{14}C在注入磁铁内偏转轨迹不同，因此对低能磁铁真空盒配置脉冲电压系统，使不同C同位素快速交替切换注入加速器。粒子在端电压为192.38 kV的串列加速器中加速，并在位于加速器中部的剥离器中与剥离气（高纯He气）碰撞剥离成正离子，此时^{14}C测量时的主要干扰分子离子（^{13}CH和$^{12}CH_2$）被瓦解去除，C^-离子外层电子被剥离形成C^+离子进入第二段加速空隙再次被加速，其后的高能磁铁1将不同质量数离子束分离，并在其后的法拉第杯中分别测量^{12}C和^{13}C电流，获得其比值。^{14}C离子则继续进入能量过滤器（高能静电分析仪）和高能磁铁2，最后进入气体探测器。针对含1 mg碳样品的测量，高能端法拉第杯测量$^{12}C^+$的电流＞25 μA，低能端法拉第杯与高能端法拉第杯之间的C传输效率＞46%。

测量过程中获取的数据使用BATS（v.4.30）软件进行处理，该软件包括空白、同位素分馏和系统效应（例如时间偏移校正）的自动校正、数据归一化和不

表1 CIRP-AMS性能测试的标准物质及空白样品清单
Table 1 List of reference materials and blank samples tested by CIRP-AMS

核素（比值） Nuclide (Ratio)	靶样物质/ 导电物质 Target materials and conductive materials	标准/空白 Standard / Blank	比值/含量 Ratio / Contents	来源及编号 Source and number
^{14}C/^{12}C	石墨 Graphite / Fe	标准OX-II Standard oxalic acid -II	^{14}C: 134.07 pMC (percent modern carbon)	NIST SRM 4990 C
		标准OX-I Standard oxalic acid -I	^{14}C: 103.98 pMC	NIST SRM 4990 B
		空白PhA（邻苯二甲酸酐） Blank PhA (Phthalic Anhydride)		试剂(reagent)：Sigma-Aldrich 320064
^{129}I/^{127}I	AgI / Ag	标准C2_3-9 Standard C2_3-9	^{129}I/^{127}I=3.952×10^{-12}	ETH内部标准 ETH in-house standard [18]
		空白WWI Woodward Iodine		
^{236}U、^{233}U、 ^{235}U/^{238}U	U氧化物 U oxide / Nb	标准VKkU Standard VKkU	^{236}U/^{238}U= (6.98±0.32)×10^{-11}	维也纳大学VERA实验室内部标准 University of Vienna VERA Laboratory in-house standard [17]
		标准ZUTRI Standard ZUTRI	^{236}U/^{238}U= (4.05±0.10)×10^{-9} ^{236}U/^{238}U= (3.32±0.08)×10^{-8}	ETH内部标准 ETH in-house standard [16]
^{237}Np	锕系核素氢氧化物 Actinide nuclides hydroxide / Nb	^{237}Np标准溶液 ^{237}Np standard solution	—	NPL R21-04
Pu同位素 Pu isotopes		^{242}Pu标准溶液 ^{242}Pu standard solution	—	NIST 4334I
		^{239}Pu标准溶液 ^{239}Pu standard solution	—	NIST 4330C
		^{240}Pu标准溶液 ^{240}Pu standard solution	—	IRMM-083
Am同位素 Am isotopes		^{243}Am标准溶液 ^{243}Am standard solution	—	NIST 4332E
		^{241}Am标准溶液 ^{241}Am standard solution	—	NIST 4322C
^{244}Cm		^{244}Cm标准溶液 ^{244}Cm standard solution	—	NIST 4320B

确定性计算[19]。通过测量本底（由化石源邻苯二甲酸酐经过石墨化制备）靶样（n=7），获得的本底^{14}C/^{12}C的比值在（1.1~1.3）×10^{-15}范围，与国际其他AMS报道水平一致。通过测量NIST OxI（n=7）和NIST OxII标准样品（n=7），不确定度在0.096%~0.11%，测量精度为0.2%。结果表明该AMS具备高精度测量环境及地质定年样品中^{14}C的能力。CIRP-AMS测量^{14}C的主要参数及测试结果见表2。

2.2 ^{129}I的分析

放射性核素^{129}I由于其极长的半衰期（$T_{1/2}$=（15.7±0.4）×10^6 a）、活泼的地球化学特性、复杂的环境行为和独特的来源特性，常被用于核环境安全监测、碘的地球化学循环示踪研究、洋流循环和海水水团交换行为研究，以及2~80 Ma的长尺度地质定年等[20]。海洋环境中^{129}I/^{127}I核活动前的初始值为1.5×10^{-12} [21]，由于人类的核活动（如大气核爆试验、核燃料后处理厂的排放等），使环境中^{129}I/^{127}I比值被显著提高，海洋和陆地环境中^{129}I/^{127}I比值分别被提升到10^{-11}~10^{-6}和10^{-10}~10^{-9}水平[22－23]。加速器质谱仪是唯一能够测量环境^{129}I/^{127}I比值范围的有效手段[24]。

通常不同样品基体中的碘需被制备成mg量级的AgI或者AgI-AgCl沉淀，然后与Ag粉或者Nb粉按1∶3~1∶5的质量比例混合，压入钛、铜或其他电化学惰性材质靶具中。样品靶在离子源中通过Cs溅射以I$^-$离子引出，同时去除同质异位素^{129}Xe的干扰，

表2　CIRP-AMS测量^{14}C的主要参数及测试结果
Table 2　The parameters and results of ^{14}C using CIRP-AMS

^{14}C 参数 Parameters for ^{14}C	参数值/测试结果 Parameter actual value / Measured value
靶电压 Source cathode potential voltage / kV	−8.2
引出电压 Source ion potential / kV	−31.278
Cs温度 Temperature of cesium reservoir / ℃	142
加速器电压 Accelerator potential / kV	192.38
电荷态 Ion charge state	1+
探测窗口尺寸 Size of detector window / mm×mm	10×6
$^{12}C^{+}$高能电流 HE-^{12}C current / μA	25.1~27.3
^{12}C传输效率[1)] Transmission of ^{12}C / %	46.6~47.0
$^{14}C/^{12}C$空白比值 $^{14}C/^{12}C$ blank ratio	$<1.49\times10^{-15}$
所有样品测量的$^{14}C/^{12}C$精度 Overall sample scatter of $^{14}C/^{12}C$ / %	0.2

注：1）传输效率：从低能磁铁后的法拉第杯到高能磁铁1后面法拉第杯之间的效率
Note: 1) Transmission: the efficiency from the Faraday cup after the low-energy (LE) magnet to the Faraday cup after the high-energy (HE) magnet 1

在端电压为256.49 kV的加速器端加速并被He气剥离掉外层电子，选择I^{2+}进行测量。针对含1 mg碘的样品，高能端法拉第杯测量^{127}I的电流＞1 μA，低能端法拉第杯与高能端法拉第杯之间的^{127}I传输效率＞50%。痕量的^{129}I再经过一个高能静电分析器的动能/电荷（E/q）和高能磁铁（Em/q^2）的筛选分离，可实现$^{129}I/^{127}I$比值低至10^{-14}样品的超灵敏测量。MILEA测量^{129}I的主要参数及测试结果见表3。

通过测量超低^{129}I含量的WWI（n=9），获得的$^{129}I/^{127}I$的比值为（2.20~3.76）×10^{-14}，与国际其他的AMS报道水平一致。分析ETH内部标准物质C2_3-9（n=9），$^{129}I/^{127}I$的比值为（3.93~3.97）×10^{-12}，单个样品测量的不确定度为0.40%~0.55%，测量精度为0.41%。结果表明，AMS具备高精度测量环境及地质样品中^{129}I的能力。

表3　CIRP-AMS测量^{129}I的主要参数及测试结果
Table 3　The parameters and results of ^{129}I using CIRP-AMS

^{129}I 参数 Parameters for ^{129}I	参数值/测试结果 Parameter actual value / Measured value
靶电压 Source cathode potential / kV	−8.2
引出电压 Source ion potential / kV	−31.2
Cs温度 Temperature of cesium reservoir / ℃	120
加速器电压 Accelerator potential / kV	259.49
电荷态 Ion charge state	2+
探测窗口尺寸 Size of detector window / mm×mm	10×6
$^{127}I^{2+}$高能电流 HE-^{127}I current / μA	＞1
^{127}I传输效率[1)] Transmission of ^{127}I / %	＞50.9
$^{129}I/^{127}I$空白比值 $^{129}I/^{127}I$ blank ratio	(2.20~3.76)×10^{-14}
所有样品测量的$^{129}I/^{127}I$精度 Overall sample scatter of $^{129}I/^{127}I$ / %	0.41

注：1）传输效率：从低能磁铁后的法拉第杯到高能磁铁1后面法拉第杯之间的效率
Note: 1) Transmission: the efficiency from the Faraday cup after the low-energy (LE) magnet to the Faraday cup after high-energy (HE) magnet 1

2.3　锕系核素的分析

针对^{236}U和^{233}U的测量，MILEA测量采用3个慢交替循环序列结合高丰度^{238}U的快循环设置[25]。第一个慢交替循环序列测量$^{233}U/^{238}U$，在低能磁铁端选择$^{233/238}U^{16}O^{-}$注入，通过设置加速器、四级杆透镜和HE-ESA参数使$^{233}U^{3+}$到达GIC测量，基于^{233}U（示踪剂或目标待测核素）的计数率选择测量时长（5~60 s）。第二个慢交替循环序列测量$^{236}U/^{238}U$，选择$^{236/238}U^{16}O^{-}$注入，高能端所有的设备均设置为^{236}U的测量参数，使$^{236}U^{3+}$到达GIC测量，基于^{236}U的计数率选择测量时间（通常为30 s）。第三个慢循环序列测量$^{235}U/^{238}U$，选择$^{235/238}U^{16}O^{-}$注入，设置加速器和四级杆透镜为$^{235}U^{3+}$测量参数，$^{235}U^{3+}$则使用高能端的FC 5测量，测量时间通常设置为5 s。在这三个循环系列测量过程中，低能端的法拉第杯测量$^{238}U^{16}O^{-}$的电流，高能端的法拉第杯用超灵敏模式测量$^{238}U^{3+}$电

流，最大的测量量程为10 nA，单次的测量时间＜1 ms。MILEA测量U同位素的主要参数及测试结果见表4。

样品靶样中的An在离子源由Cs溅射以AnO^-离子引出，在端电压为260 kV的加速器端加速并被He气剥离掉外层电子，选择An^{3+}进行测量。对于含10 μg U的ZUTRI标准样品，高能端法拉第杯测量^{238}U的电流大于0.5 nA，^{236}U/^{238}U的比值为(2.97~3.03)×10^{-9}，单个样品测量的不确定度为0.85%~0.92%，测量精度为0.77%。低能端法拉第杯与高能端法拉第杯之间的^{238}U传输效率＞36%。^{236}U测量的干扰主要来自^{235}U的拖尾，由于尚无不含^{236}U的U材料，用低^{236}U/^{238}U比值((69.8±3.2)×10^{-12})的The Vienna KkU-standard material(VKkU)通过测量高束流的238质量数拖尾对质量数239的影响，间接推测获得该系统测量锕系核素的丰度灵敏度[21]。测量的^{239}Pu/^{238}U丰度灵敏度为(1.5~2.7)×10^{-13}，与已报道的4×10^{-13}在一个水平[26]。

针对低含量超铀核素的测量，不同核素的测量则是通过将每种核素逐个引入GIC来完成。为实现不同核素间按顺序的循环切换，3个磁铁(Em/q^2)应保持在恒定的磁场，这就意味着不同质量的核素应加载不同的能量使其动量一致进行分析。因此，加速器端和HE-ESA应同步调整并与不同核素的E/q比例一致。^{237}Np、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Pu、^{242}Pu、^{241}Am、^{243}Am、^{244}Cm测量的主要参数及探测限见表5。由数据软件MPANT处理获得的^{242}Pu谱图如图2所示。以1 pg的^{242}Pu为示踪剂，测量8 450 s，^{237}Np、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Pu的计数在0~2之间，其探测限在10^{-18} g水平。以0.2 pg的^{243}Am为示踪剂，测量5 876 s，^{244}Cm的探测限在10^{-18} g水平。然而由于每pg的^{243}Am(NIST 4332E)中含有约0.1 fg的^{241}Am杂质，使对^{241}Am的探测限仅为10^{-17} g的水平。因此针对^{241}Am(＜10^{-15} g)的超低水平分析，应严格控制示踪剂^{243}Am的加入量。

表4　CIRP-AMS测量^{236}U、^{233}U、^{235}U及^{238}U的主要参数及测试结果
Table 4　The parameters and results of ^{236}U, ^{233}U, ^{235}U and ^{238}U using CIRP-AMS

U同位素参数 Parameters for U isotopes	参数值/测试结果 Parameter actual value / Measured value
靶电压 Source cathode potential	−8.2
引出电压 Source ion potential	−31.2
Cs温度 Temperature of cesium reservoir / ℃	135
加速器电压 Accelerator potential / kV	260
电荷态 Ion charge state	3+
探测窗口尺寸 Size of detector window / mm×mm	4×4
^{238}UO高能端电流 HE-^{238}UO current	—
^{238}U传输效率[1] Transmission of ^{238}U / %	36.7~38.6
^{239}Pu/^{238}U丰度灵敏度 Abundance sensitivity of ^{239}Pu/^{238}U	(1.5~2.7)×10^{-13}
所有样品测量的^{236}U/^{238}U精度 Overall sample scatter of ^{236}U/^{238}U / %	0.9

注：1) 传输效率：从低能磁铁后的法拉第杯到高能磁铁1后面法拉第杯之间的效率
Note: 1) Transmission: the efficiency from the Faraday cup after the low-energy (LE) magnet to the Faraday cup after the high-energy (HE) magnet 1

表5　CIRP-AMS测量^{237}Np、Pu同位素、^{244}Cm及Am同位素的主要参数及测试结果
Table 5　Main parameters and detection limits of ^{237}Np, Pu isotopes, ^{241}Am, ^{243}Am and ^{244}Cm measured by CIRP-AMS

核素 Actinide nuclides	质量数 Mass	加速器电压 Accelerator potential / kV	HE ESA输入值 HE ESA actual value	探测限 Detection limit / fg
^{237}Np	237.048	257.58	29.18	0.005
^{239}Pu	239.052	255.16	28.92	0.005
^{240}Pu	240.054	254.07	28.79	0.002
^{241}Pu	241.057	252.95	28.68	0.003
^{242}Pu	242.059	251.87	28.56	—
^{243}Am	243.061	250.63	28.43	—
^{241}Am	241.057	252.95	28.68	0.030
^{244}Cm	244.063	249.47	28.31	0.004

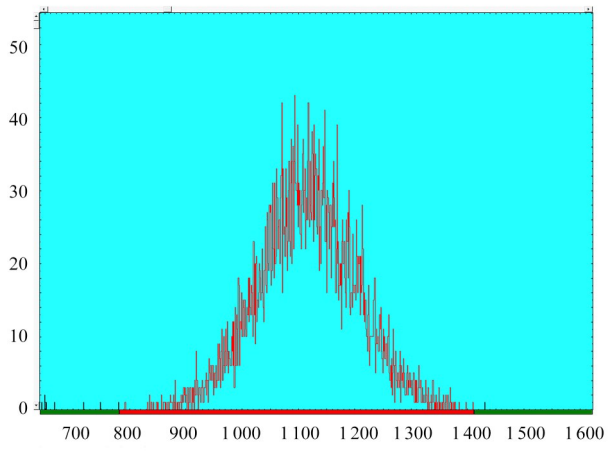


图2 数据软件MPANT处理获得的^{242}Pu谱图
Fig.2 The spectrum of ^{242}Pu in the data acquisition program MPANT

3 结语

中国辐射防护研究院配置的300 kV多核素低能加速器质谱仪(CIRP-AMS),通过对不同核素测量关键参数的系统调试及测试空白及标准样品,验收获得的^{14}C/^{12}C空白比值为(1.3±0.1)×10^{-15},测量^{14}C/^{12}C比值为10^{-12}的样品,测量精度为0.2%;WWI ^{129}I/^{127}I空白比值为(3.76±0.2)×10^{-14},测量^{129}I/^{127}I比值为10^{-12}的样品,测量精度为0.41%;针对超铀核素的测量,^{239}U/^{238}U的丰度灵敏度为(1.5~2.7)×10^{-13},Pu同位素、^{237}Np和^{244}Cm的最低探测限低至10^{-18} g水平。结合CIRP已建立的^{14}C、^{129}I和锕系核素化学前处理方法,该系统将应用于核环境监测、环境示踪、职业人员内照污染监测、^{14}C微剂量示踪等领域中^{14}C、^{129}I和锕系核素(Pu同位素、^{237}Np、Am同位素、Cm同位素及U同位素)的超灵敏分析。

作者贡献声明 原妮负责CIRP-AMS性能评估和验收测试数据的采集和整理、起草文章;邬洋负责锕系核素的AMS分析实验设计和实施;罗茂益负责对文章的知识性内容作评论性审阅、技术支持,获取研究经费;杨永刚和彭彤负责CIRP-AMS系统运维。

参考文献

1 刘克新, 李坤, 马宏骥, 等. 加速器质谱与环境科学[J]. 核技术, 2001, **24**(9): 783 – 786.
LIU Kexin, LI Kun, MA Hongji, *et al*. Accelerator mass spectrometry and its applications in environmental science [J]. Nuclear Techniques, 2001, **24**(9): 783 – 786.

2 Muller R A. Radioisotope dating with a cyclotron[J]. Science, 1977, **196**(4289): 489 – 494. DOI: 10.1126/science.196.4289.489.

3 Nelson D E, Korteling R G, Stott W R. Carbon-14: direct detection at natural concentrations[J]. Science, 1977, **198** (4316): 507 – 508. DOI: 10.1126/science.198.4316.507.

4 Bennett C L, Beukens R P, Clover M R, *et al*. Radiocarbon dating using electrostatic accelerators: negative ions provide the key[J]. Science, 1977, **198** (4316): 508 – 510. DOI: 10.1126/science.198.4316.508.

5 Purser K H, Liebert R B, Russo C J. Macs: an accelerator-based radioisotope measuring system[J]. Radiocarbon, 1980, **22**(3): 794 – 806. DOI: 10.1017/s0033822200010171.

6 Suter M, Jacob St, Synal H A. AMS of ^{14}C at low energies [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 1997, **123**: 148 – 152. DOI: 10.1016/S0168-583X(96)00613-1.

7 Zhang G, Liu J W, Li J, *et al*. Radiocarbon isotope technique as a powerful tool in tracking anthropogenic emissions of carbonaceous air pollutants and greenhouse gases: a review[J]. Fundamental Research, 2021, **1**(3): 306 – 316. DOI: 10.1016/j.fmre.2021.03.007.

8 孙红芳, 王海芳, 刘元方. ^{14}C-AMS在生物医学研究中的应用[J]. 核技术, 2001, **24**(9): 748 – 754.
SUN Hongfang, WANG Haifang, LIU Yuanfang. Applications of ^{14}C-AMS in biomedical sciences[J]. Nuclear Techniques, 2001, **24**(9): 748 – 754.

9 Fifield L K, Synal H A, Suter M. Accelerator mass spectrometry of plutonium at 300 kV[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2004, **223 – 224**: 802 – 806. DOI: 10.1016/j.nimb.2004.04.148.

10 Vockenhuber C, Casacuberta N, Christl M, *et al*. Accelerator mass spectrometry of ^{129}I towards its lower limits[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2015, **361**: 445 – 449. DOI: 10.1016/j.nimb.2015.01.061.

11 何明, 包铁文, 苏胜勇, 等. 小型加速器质谱系统研制及分析技术研究[J]. 原子核物理评论, 2020, **37**(3): 784 – 790. DOI: 10.11804/NuclPhysRev.37.2019CNPC01.
HE Ming, BAO Yiwen, SU Shengyong, *et al*. Development the miniaturized AMS system and its analysis technique[J]. Nuclear Physics Review, 2020, **37** (3): 784 – 790. DOI: 10.11804/NuclPhysRev. 37.2019CNPC01.

12 Maxeiner S. Optimizing the designs of next-generation AMS systems[D]. ETH Zurich, 2016. DOI: 10.3929/ethz-

a-010859505.

13 Müller A M, Döbeli M, Suter M, *et al*. Performance of the ETH gas ionization chamber at low energy[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2012, **287**: 94 – 102. DOI: 10.1016/j.nimb.2012.06.012.

14 Vockenhuber C, Alfimov V, Christl M, *et al*. The potential of He stripping in heavy ion AMS[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2013, **294**: 382 – 386. DOI: 10.1016/j.nimb.2012.01.014.

15 Fan Y K, Zhou W J, Hou X L. Pre-nuclear level of ^{129}I in Chinese loess-paleosol sections: a search for the natural ^{129}I level for dating in terrestrial environments[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2018, **231**: 64 – 72. DOI: 10.1016/j.gca.2018.04.014.

16 Christl M, Lachner J, Vockenhuber C, *et al*. First data of uranium-236 in the north sea[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2013, **294**: 530 – 536. DOI: 10.1016/j.nimb.2012.07.043.

17 Steier P, Bichler M, Keith Fifield L, *et al*. Natural and anthropogenic ^{236}U in environmental samples[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2008, **266** (10): 2246 – 2250. DOI: 10.1016/j.nimb.2008.03.002.

18 Kučera J, Maxeiner S, Müller A, *et al*. A new AMS facility MILEA at the nuclear physics institute in řež, Czech republic[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2022, **527**: 29 – 33. DOI: 10.1016/j.nimb.2022.07.012.

19 Wacker L, Christl M, Synal H A. Bats: a new tool for AMS data reduction[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2010, **268**(7 – 8): 976 – 979. DOI: 10.1016/j.nimb.2009.10.078.

20 蒋崧生, 何明, 谢运棉, 等. 环境中^{129}I的AMS方法测定[J]. 核技术, 2000, **23**(1): 43 – 46.
JIANG Songsheng, HE Ming, XIE Yunmian, *et al*. AMS measurement of ^{129}I in the environmental samples[J]. Nuclear Techniques, 2000, **23**(1): 43 – 46.

21 Fehn U, Moran J E, Snyder G T, *et al*. The initial $^{129}I/I$ ratio and the presence of 'old' iodine in continental margins[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2007, **259**(1): 496 – 502. DOI: 10.1016/j.nimb.2007.01.191.

22 Liu Y X, Hou X L, Zhao X, *et al*. Reconstruction of the sources and their contributions to ^{129}I in northern Xinjiang, China[J]. Environmental Science & Technology, 2023, **57** (27): 10070 – 10078.

23 Chang C C, Burr G S, Timothy Jull A J, *et al*. Measurements of ^{129}I in the Pacific Ocean at Scripps Pier and Pacific Northwest sites: a search for effects from the 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and Hanford[J]. Science of the Total Environment, 2019, **689**: 1023 – 1029. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.06.372.

24 Kim J, Kim J Y, Bae S E, *et al*. Review of the development in determination of ^{129}I amount and the isotope ratio of $^{129}I/^{127}I$ using mass spectrometric measurements[J]. Microchemical Journal, 2021, **169**: 106476. DOI: 10.1016/j.microc.2021.106476.

25 Christl M, Gautschi P, Maxeiner S, *et al*. ^{236}U analyses with the ETH Zurich MILEA prototype system[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2023, **534**: 61 – 71. DOI: 10.1016/j.nimb.2022.11.009.

26 Maxeiner S, Synal H A, Christl M, *et al*. Proof-of-principle of a compact 300 kV multi-isotope AMS facility [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2019, **439**: 84 – 89. DOI: 10.1016/j. nimb. 2018.11.028.