

# 长寿命放射性惰性气体同位素检测方法研究进展

游翔宇<sup>1</sup>, 王明东<sup>2</sup>, 董洪松<sup>1</sup>, 曾俊康<sup>1</sup>, 朱亚洲<sup>1</sup>, 冯高平<sup>2</sup>

(1. 中国卫星海上测控部, 江苏 江阴 214400;

2. 航天工程大学 激光推进及其应用国家重点实验室, 北京 101400)

**摘要:**长寿命放射性惰性气体同位素(如<sup>85</sup>Kr、<sup>81</sup>Kr和<sup>39</sup>Ar)物理和化学性质稳定,可以长期稳定地存在于大气中,是理想的示踪同位素,在地球物理与环境科学领域具有广泛应用。惰性气体元素大气含量低,其放射性同位素丰度极低,尚无成熟、高效的定量测量方法,如何对其进行高效、高灵敏检测成为一个亟待解决的技术难题。以激光冷却和囚禁技术为基础的原子阱痕量检测技术,具有单原子级别探测灵敏度、同位素级别分辨率和零本底探测的独特优势,可对长寿命放射性惰性气体同位素进行快速、高效检测。介绍了低辐射计数法、加速器质谱法和原子阱痕量检测技术三种痕量同位素检测方法,重点分析了原子阱痕量检测流程和基本原理,并结合应用前景论述了原子阱痕量检测技术研究现状。

**关键词:**激光冷却和囚禁;惰性气体;同位素示踪;痕量检测

**本文引用格式:**游翔宇,王明东,董洪松,等.长寿命放射性惰性气体同位素检测方法研究进展[J].兵器装备工程学报,2020,41(11):15-22.

**Citation format:**YOU Xiangyu, WANG Mingdong, DONG Hongsong, et al. Research Progress on Long-Lived Radioactive Noble Gas Isotope Detection[J]. Journal of Ordnance Equipment Engineering, 2020, 41(11): 15-22.

中图分类号:O615.2

文献标识码:A

文章编号:2096-2304(2020)11-0015-08

## Research Progress on Long-Lived Radioactive Noble Gas Isotope Detection

YOU Xiangyu<sup>1</sup>, WANG Mingdong<sup>2</sup>, DONG Hongsong<sup>1</sup>,  
ZENG Junkang<sup>1</sup>, ZHU Yazhou<sup>1</sup>, FENG Gaoping<sup>2</sup>

(1. China Satellite Maritime Tracking and Control Department, Jiangyin 214400, China;

2. State Key Laboratory of Laser Propulsion and Application, Space Engineering University, Beijing 101400, China)

**Abstract:** Long-lived noble gas radionuclides (including <sup>85</sup>Kr, <sup>81</sup>Kr and <sup>39</sup>Ar) with stable physical and chemical properties and clear source can exist stably in the atmosphere for a long time, which is ideal tracer isotopes, and has wide applications in geophysical and environmental sciences. The noble gas has low atmospheric content and its radioisotope abundance is extremely low. At present, there is no mature and efficient trace analysis method. High-efficiency and high-sensitivity detection method becomes a technical problem to be solved urgently. Atom trap trace analysis based on laser cooling and trapping technology, with unique advantages of single atom level detection sensitivity, isotope level resolution and zero background detection, enables fast and efficient detection of long-lived radioactive noble gas isotopes. This paper introduced three methods for trace analysis: low level counting, accelerator mass spectrometry and atom trap trace analysis. The basic principles and process of atom trap trace analysis were analyzed, and the research progress of atom trap trace analysis technology was summarized in combination with application prospects.

**Key words:** laser cooling and trapping; noble gas; isotope tracer; trace analysis

收稿日期:2020-02-25;修回日期:2020-03-19

基金项目:国家自然科学基金项目(61505263,61505262)

作者简介:游翔宇(1995—),男,硕士,助理工程师,主要从事原子的激光冷却与囚禁方面的研究,E-mail:younex@163.com。

通讯作者:冯高平(1985—),男,博士,助理研究员,E-mail:lasercooling@163.com。

放射性示踪同位素是自然界的天然时钟,一般只由宇宙射线产生,在大气中迅速混合均匀,自然界中含量比较稳定<sup>[1]</sup>。放射性同位素进入样品后,一旦与外界脱离停止交换,其含量将随时间作指数衰减,通过测量相应同位素含量,根据其半衰期即可计算出样品所处的年代。长寿命放射性惰性气体同位素由于其稳定的化学和物理性质、较长的半衰期,可以长期稳定地存在于大气中,被视为理想的示踪同位素。

大气环境中的长寿命放射性惰性气体同位素主要有<sup>85</sup>Kr(同位素丰度 $2 \times 10^{-11}$ )、<sup>81</sup>Kr(同位素丰度 $1 \times 10^{-12}$ )和<sup>39</sup>Ar(同位素丰度 $8 \times 10^{-16}$ )3种<sup>[2]</sup>。它们的半衰期各不相同,断代年限覆盖了3年到100万年:<sup>81</sup>Kr半衰期23万年,适用于对5~100万年的空气样品(或者溶解空气的水和冰)样品进行年代断定<sup>[3]</sup>;<sup>39</sup>Ar半衰期268年,可用于对50~500年的洋流水样品进行年代断定<sup>[4-5]</sup>;<sup>85</sup>Kr半衰期10.8年,可用于对3~100年的年轻地下水进行年代断定<sup>[3]</sup>。此外,<sup>235</sup>U同位素发生核裂变反应时会产生<sup>85</sup>Kr原子,<sup>85</sup>Kr还可以作为人类核活动的高灵敏度监测计<sup>[6]</sup>。上述3种同位素恰好弥补了<sup>14</sup>C数百年到五万年测年范围的缺陷,3种同位素相结合可以完整地覆盖从1年到100万年的年代断定,在环境与地球科学等领域研究极具应用价值<sup>[7]</sup>。

惰性气体元素在大气中含量低,同时放射性同位素在各自元素中所占比例极少<sup>[8]</sup>,对于检测方法的效率和灵敏度有着极高要求。传统的低辐射计数法和加速器质谱法在<sup>85</sup>Kr、<sup>81</sup>Kr和<sup>39</sup>Ar检测上存在检测效率低、样品用量大、检测时间长的不足,限制了其在长寿命放射性惰性气体同位素检测中的应用前景。以激光冷却和囚禁技术为基础的原子阱痕量检测技术<sup>[9]</sup>,具有单原子级别探测灵敏度、同位素级别分辨率和零本底探测的独特优势,是唯一一种在<sup>85</sup>Kr、<sup>81</sup>Kr、<sup>39</sup>Ar 3种同位素测量中均能兼具高效率和高灵敏度的检测方法,在地下水年代测定、气候变化、大气环境监测等领域具有广泛应用前景<sup>[7]</sup>。

介绍了低辐射计数法、加速器质谱法和原子阱痕量检测技术3种同位素检测方法,重点分析了原子阱痕量检测流程和基本原理,并结合应用前景概述了原子阱痕量检测技术研究现状。

## 1 低辐射计数法

1949年,W. Libby等首次测量了自然样品中的<sup>14</sup>C同位素(半衰期约为5700年,同位素丰度 $1 \times 10^{-12}$ ),证实了<sup>14</sup>C同位素探测在考古学年代断定中的应用<sup>[10]</sup>。自此,较为成熟的低辐射计数法开始广泛应用于各种同位素(丰度高于 $10^{-6}$ )的检测。低辐射计数法(Low Level Counting, LLC)是一种直接测量放射性同位素衰变次数的方法,可用于检测自然样品(如空气和地下水样品)中的放射性同位素含量。放射性同位素会以 $\alpha$ 衰变、 $\beta$ 衰变、 $\gamma$ 衰变3种方式进行衰变,衰变过程中将以电磁波或高能粒子的形式向外辐射能量,单次衰

变辐射能量约 $10^4 \sim 10^7$  eV,利用高灵敏探测器对衰变能量进行检测,可直接对检测时间内样品中发生的衰变事件进行计数。对于一定量的待测样品,LLC方法检测效率取决于检测时间内衰变发生的次数,其检测效率与检测时长成正比,与半衰期时长成反比,这表明LLC方法对长寿命放射性同位素的检测效率较差。对于半衰期较长的放射性同位素,半衰期远长于检测时长,此时检测效率可以近似为

$$\eta = (\ln 2) \frac{t_D}{t_{1/2}} \quad (1)$$

式中: $t_D$ 为检测时间; $t_{1/2}$ 为半衰期。取检测时间 $t_D$ 为1 d,则LLC方法对于<sup>85</sup>Kr检测效率约 $10^{-4}$ 。通过延长检测时间至1周,可提升检测效率至 $10^3$ 量级。同样检测时长为1周时,<sup>81</sup>Kr检测效率约 $10^{-7}$ ,<sup>39</sup>Ar检测效率约 $10^{-5}$ 。

由于放射性衰变释放的能量较为微弱,检测时需要考虑外部辐射带来的背景干扰,尽可能分辨、消除和减弱与待测原子无关的计数。外部辐射来源主要有三方面<sup>[11]</sup>:一是宇宙射线及次级效应产生粒子所带来的干扰;二是测量环境中的放射性元素(主要为<sup>40</sup>K、<sup>222</sup>Rn以及U、Ac、Th、Np四大衰变链)带来的干扰;三是测量装置和探测仪器材料中放射性杂质(主要有Th、Ra及其子体产物<sup>210</sup>Pb)的干扰。如图1所示,为降低背景干扰,提升测量精度,LLC实验室通常建在约35 m深的地底,其内壁常采用铅、镭和铜板等材料进行多层屏蔽。探测器外设置屏蔽层,并且探测器和屏蔽层必须采用低辐射材料制成<sup>[5]</sup>。待测样品中的其他放射性同位素必须预先除去,避免对检测造成干扰。除上述被动屏蔽方法外,LLC方法还采用了由带孔的塑料闪烁体组成的反符合探测器等主动屏蔽方法,减弱宇宙和环境辐射干扰<sup>[5]</sup>。

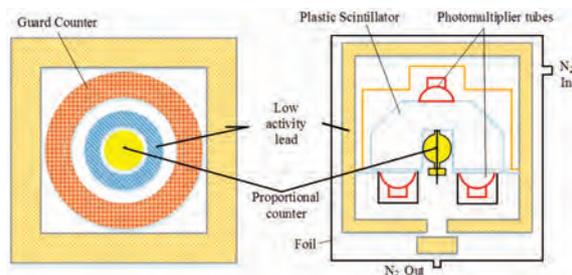


图1 低辐射计数法装置结构示意图

尽管LLC方法实验条件严格,但其优势仍然明显,由于是直接测量样品中放射性元素衰变时间次数,LLC方法目前仍是测量<sup>85</sup>Kr和<sup>39</sup>Ar含量最准确的方法。对于<sup>85</sup>Kr,标准检测时长为1周,标准样品用量为20 L空气或300 L水(约含标准状况下0.02 mL氩气),标准计数1 400个/d(探测器效率70%)。对于<sup>39</sup>Ar,LLC方法标准样品用量为2 000 L水(约含0.7升标准状况下氩气),标准计数70个/d(探测器效率70%),标准检测时长为6周。

瑞士Bern大学的Loosli团队曾经尝试用LLC方法检测<sup>81</sup>Kr原子,并成功实现了1300多个<sup>81</sup>Kr原子计数,但随着20世纪人类核活动增加,<sup>85</sup>Kr丰度迅速提高,已无法从大量的

$^{85}\text{Kr}$  信号中分离出  $^{81}\text{Kr}$  信号,目前无法实现对  $^{81}\text{Kr}$  原子的检测。 $^{81}\text{Kr}$  和  $^{85}\text{Kr}$  原子无法通过化学手段分离<sup>[12]</sup>,  $^{81}\text{Kr}$  的半衰期(23 万年)远长于  $^{85}\text{Kr}$  (10.8 年),其单位时间内的衰变次数远少于  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{81}\text{Kr}$  信号会被大量的  $^{85}\text{Kr}$  信号掩盖,难以区分。

## 2 加速器质谱法

加速器质谱法(Accelerator Mass Spectrometry, AMS)是将粒子加速器与质谱法结合产生的一种新方法<sup>[13]</sup>。加速器质谱法采用直接计数法取代衰变计数法,直接对待测同位素原子数目进行计数,检测效率不受限于同位素半衰期,在长寿命放射性同位素上优于低辐射计数法<sup>[14]</sup>。

质谱法(Mass Spectrometry)是利用电磁场将离子(带电荷的原子和分子)按照荷质比分离检测的方法。质谱法工作原理如图 2 所示,首先将待测样品电离,产生各种荷质比不同的离子,利用不同荷质比离子在静电场和磁场中作用力不同进行分离,然后针对分离出的某一种离子,进行检测和分析。质谱法灵敏度相当高,可以检测同位素丰度高于  $10^{-9}$  的放射性同位素样品,但是对于同位素丰度更低的放射性同位素样品,常规的质谱法难以奏效。并且,丰度更低的同位素样品往往存在着高丰度同量异位素的干扰,如  $^{14}\text{C}$  检测中 ( $^{14}\text{N}$ )<sup>+6</sup> 对 ( $^{14}\text{C}$ )<sup>+6</sup> 存在干扰,同量异位素之间质量差小于  $10^{-5}$ ,荷质比极为接近,常规质谱法难以区分<sup>[15]</sup>。

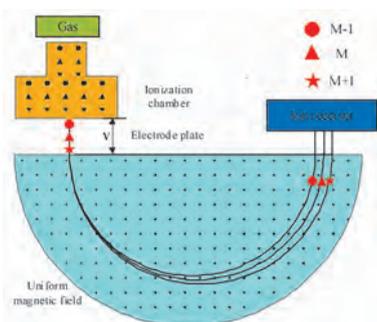


图 2 质谱法工作原理示意图

为了排除同量异位素带来的干扰,1977 年 Muller 提出采用加速器分离  $^{14}\text{C}$  和  $^{10}\text{Be}$  的高丰度同量异位素<sup>[16]</sup>,随后 McMaster 大学和 Rochester 大学结合质谱法和串联加速器,分别完成了对  $^{14}\text{C}$  的测量,形成了集加速器技术、质谱检测方法、粒子分辨和探测技术于一体的新型同位素检测方法,即加速器质谱方法。如图 3 所示,加速器质谱装置通常包括负离子源、低能注入与分析系统、加速器(常用串联加速器)、高能离子传输与分析系统、粒子探测器<sup>[17]</sup>。AMS 检测可划分为以下 5 个阶段:

1) 采用铯溅射负离子源对样品进行电离,样品被铯离子溅射后形成负离子流,并在电场的作用下从负离子源引出;

2) 负离子流经过低能注入系统中磁分析器,对引出离

子的质量进行预选择,然后通过预加速将选定离子加速到 100 keV 左右,再注入加速器中继续加速。这一加速过程将剔除掉一些不稳定的同量异位素;

3) 负离子在第一级加速电场中加速至 MeV 能量后,经膜(或气体)剥离器剥去外层电子成为正离子,随后进行第二级加速得到较高能量的正离子;

4) 从加速器中引出高能离子,通过高能分析传输系统中磁分析器和静电分析器(或速度选择器)可以选定目标离子的质荷比  $M/q$ ;

5) 离子束流经高能分析后,与待测离子具有相同质荷比  $M/q$  的同量异位素仍不能排除,需要借助  $\Delta E - E$  气体探测器或飞行时间探测器等高分辨率离子探测技术进一步区分。

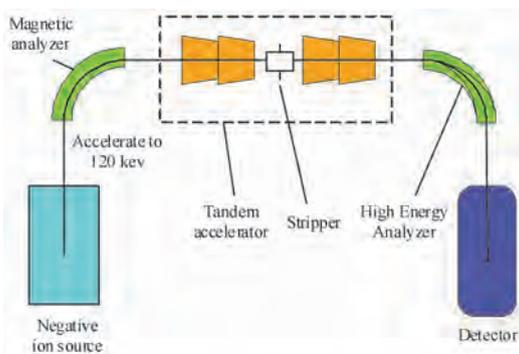


图 3 加速器质谱装置示意图

凭借高灵敏度和高分辨率的优势,AMS 方法已经逐步取代 LLC 方法成为  $^{14}\text{C}$  的标准检测方法,但 AMS 方法在惰性气体同位素检测上遇到了极大挑战。惰性气体原子是闭壳层组态原子,难以再得到电子形成负离子,常规的 AMS 检测手段无法对其进行分析。1997 年,Collon 团队对常规的 AMS 装置做了一些改进<sup>[18]</sup>,其结构如图 4 所示,采用超导回旋电子振荡器正离子源替代传统的负离子源,并选用了能量更高的回旋加速器(约 4 GeV)替代常用的串联加速器,利用改进后的 AMS 装置首次测量到 20 ~ 40 万年前的地下水样品中的  $^{81}\text{Kr}$  同位素,总检测效率约  $10^{-5}$ ,年代测量精度为 15%,共使用了 16 t 地下水(约 0.5 mL 标况下氦气)。Collon 团队采用同样方法在美国阿贡国家实验室的线性加速器平台上对亚特兰大洋流水样品中的  $^{39}\text{Ar}$  原子进行计数,得到  $^{39}\text{Ar}$  的同位素丰度为  $8 \times 10^{-16}$ ,其检测效率约  $10^{-3}$ 。此外,AMS 方法对  $^{85}\text{Kr}$  的检测方法与  $^{81}\text{Kr}$  基本相同。

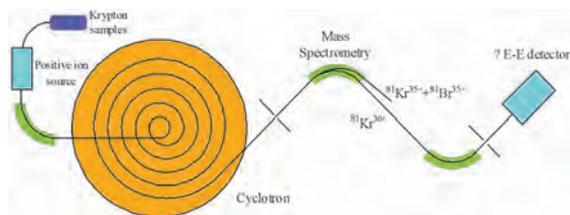


图 4 密西根州立大学加速器质谱装置结构示意图

AMS方法的主要缺点在于其无法完全解决同量异位素的干扰。为分离 $^{81}\text{Kr}$ 的同量异位素 $^{81}\text{Br}$ ,往往需要剥离 $^{81}\text{Kr}$ 和 $^{81}\text{Br}$ 原子所有电子,需要用到超导回旋电子振荡器和回旋加速器等昂贵设备,最终分离效果也不甚理想。同样, $^{39}\text{Ar}$ 的同量异位素 $^{81}\text{K}$ 同样存在干扰情况。同量异位素的干扰限制了AMS方法在长寿命放射性惰性气体同位素检测中的应用前景。

### 3 原子阱痕量检测技术

#### 3.1 原子阱痕量检测技术介绍

除上述两种方法外,基于激光光谱技术还发展了共振电离质谱法(Resonance Ionization Mass Spectrometry, RIMS)和光脉冲质谱法(Photon Burst Mass Spectrometry, PBMS)等质谱分析方法。这类方法基于激光与原子共振作用,利用特定频率激光激发或电离特定的同位素原子,具有“同位素级别”的超高选择性。共振电离质谱法和光脉冲质谱法均可达到高于 $10^{-9}$ 的检测灵敏度,其中共振电离质谱法首次利用激光技术探测到了环境样品中 $^{81}\text{Kr}$ ,但由于技术限制,共振电离质谱法和光脉冲质谱法均未实现对长寿命放射性惰性气体的定量测量。

原子阱痕量检测技术(Atom Trap Trace Analysis, ATTA)是基于原子激光冷却与囚禁技术的全新探测方法<sup>[7]</sup>,利用特定频率的激光将特定的同位素原子冷却并囚禁在磁光阱中

心处,通过原子散射荧光强度测定单位时间内囚禁的原子个数,可以实现单原子水平的计数。ATTA的高灵敏度使得其仅需要十余升空气样品即可在数小时内完成检测。囚禁腔中的磁光阱具有高度选择性,只有激光频率调至目标同位素原子共振线附近时,目标同位素原子才会被俘获,检测中将激光频率从共振频率略微调偏(约10 MHz),囚禁腔计数率瞬间降为零,而同位素之间共振频率一般相差数百MHz,可见即使附近的同位素丰度是目标同位素的数万亿倍,依然不会产生干扰。

目前美国阿贡国家实验室和中国科学技术大学等机构均已实现对 $^{81}\text{Kr}$ 和 $^{85}\text{Kr}$ 同位素的定量检测, $^{81}\text{Kr}$ 和 $^{85}\text{Kr}$ 原子计数率分别为6 000个原子/小时和400个原子/小时左右,标准样品用量为2~10 L的空气或40~200 L水(约0.002~0.01 mL标准状况下氙气),检测效率约 $10^{-3}$ ,检测时长约4 h。此外,德国海德堡大学利用ATTA装置对大气样品中的 $^{39}\text{Ar}$ 含量进行了检测,样品用量为0.1 mL空气或2.5 L水, $^{39}\text{Ar}$ 原子计数率约4.1个/小时,检测时长约10 h。

如表1所示,相比低辐射计数法,原子阱痕量检测技术突破了放射性元素半衰期的限制,实现了6 000个 $^{85}\text{Kr}$ /小时、400个 $^{81}\text{Kr}$ /小时和4.1个 $^{39}\text{Ar}$ /小时的原子计数率,检测效率存在数个量级的提升,样品用量和检测时长大幅缩减。与加速器质谱法相比较,原子阱痕量检测技术的主要突破在于 $^{81}\text{Kr}$ 和 $^{39}\text{Ar}$ 检测,其检测效率同样存在1~2个量级的优势,样品用量优势明显,极大地降低了检测样品的取样难度。

表1 长寿命放射性惰性气体同位素检测方法对比

检测方法	低辐射计数法	加速器质谱法	原子阱痕量检测技术
检测机制	检测待测放射性同位素衰变释放的能量并计数	按照荷质比分离待测同位素离子	利用光与原子的共振作用冷却并囚禁待测同位素原子
适用范围	$^{85}\text{Kr}$ 、 $^{39}\text{Ar}$	$^{85}\text{Kr}$ 、 $^{81}\text{Kr}$ 、 $^{39}\text{Ar}$	$^{85}\text{Kr}$ 、 $^{81}\text{Kr}$ 、 $^{39}\text{Ar}$
干扰因素	宇宙辐射干扰 测量环境放射性元素干扰 测量装置中放射性材料干扰	同量异位素干扰	交叉污染干扰
样品用量	$^{85}\text{Kr}$ :20 L空气或300 L水 $^{39}\text{Ar}$ :2 000 L水	$^{81}\text{Kr}$ :16 000 L水 $^{39}\text{Ar}$ :>100 L水	$^{81}\text{Kr}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ :2~10 L的空气或40~200 L水 $^{39}\text{Ar}$ :0.1 mL空气、2.5 L水
检测时长	$^{85}\text{Kr}$ :1周 $^{39}\text{Ar}$ :6周	$\leq 1$ d	$\leq 1$ d
检测效率	$^{85}\text{Kr}$ :约 $10^3$ $^{39}\text{Ar}$ :约 $6 \times 10^{-6}$	$^{85}\text{Kr}$ :约 $10^3$ $^{81}\text{Kr}$ :约 $10^5$ $^{39}\text{Ar}$ :约 $10^{-3}$	$^{85}\text{Kr}$ :约 $10^3$ $^{81}\text{Kr}$ :约 $10^3$ $^{39}\text{Ar}$ :约 $10^{-3}$
原子计数率	$^{85}\text{Kr}$ :1 400个/天 $^{39}\text{Ar}$ :70个/天	/	$^{85}\text{Kr}$ :6 000个/小时 $^{81}\text{Kr}$ :400个/小时 $^{39}\text{Ar}$ :4.1个/小时
实验条件	地下实验室 铅、镭和铜等多重屏蔽层 低辐射材料制造的实验仪器	超导回旋电子振荡器 回旋加速器	光学洁净间 半导体激光器 超高真空环境
实验成本	>1亿	>1亿	数百万至一千万

原子阱痕量检测技术的另一个巨大优势在于其实验成本较低。低辐射计数法存在宇宙辐射干扰、测量环境放射性元素干扰和测量装置中放射性材料干扰,因此对于实验环境和装置要求较高,需要特制的地下实验室、多重屏蔽层和低辐射材料制成的实验仪器,低辐射计数法实验室建设成本极高。此外,加速器质谱法中为避免同量异位素干扰,采用超导回旋电子振荡器和回旋加速器完成待测同位素和同量异位素的分离操作,而超导回旋电子振荡器和回旋加速器造价极其昂贵,限制了加速器质谱法的推广应用。相比之下,原子阱痕量检测技术既不需要特殊设计的实验室,也不需要价格昂贵的粒子加速器,对于实验环境和装置的要求不高。原子阱痕量检测技术只需要一般的光学洁净间、数台半导体激光器和超高真空装置,即可在桌面设备上完成检测,实验室造价约数百万至一千万,成本优势明显。

### 3.2 原子阱痕量检测技术检测流程

原子阱痕量检测流程如图5所示,可以分为亚稳态氦原子激发、横向准直、二维聚焦、塞曼减速和亚稳态氦原子囚禁,共五部分<sup>[2,12,19]</sup>。

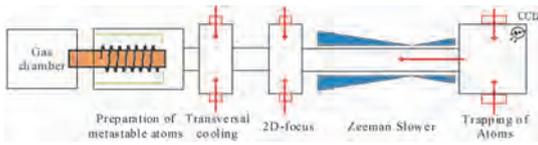


图5 原子阱痕量检测流程示意图

#### 1) 亚稳态氦原子激发

基态氦原子到第一激发态 $2P_{3/2}5s[3/2]_1$ 符合跃迁选择规则,属于循环跃迁,理论上可用于氦原子的冷却与囚禁,但是这一跃迁要求波长 $123.6\text{ nm}$ 的真空紫外激光器,目前在技术上难以实现。此外,亚稳态 $2P_{3/2}5s[3/2]_3$ 到激发态 $2P_{3/2}5p[3/2]_3$ 符合跃迁选择规则同属于循环跃迁,跃迁波长为 $811.5\text{ nm}$ ,目前已有商用激光器。亚稳态氦原子寿命长达 $40\text{ s}$ ,时间上足够完成对于氦原子的冷却、囚禁和检测,现常采用基于螺旋谐振腔的射频等离子体放电方法(激发效率约 $0.1\%$ )产生亚稳态氦原子。螺旋谐振腔结构如图6所示,在一定气压下,输入一定频率、一定功率的射频信号到螺旋谐振腔中可以产生气体等离子体,等离子体中的高能电子与基态氦原子碰撞激发产生亚稳态氦原子,实验时可通过正交分析法优化射频频率、射频功率和放电腔气压等放电参数,得到最强的亚稳态氦原子束流。

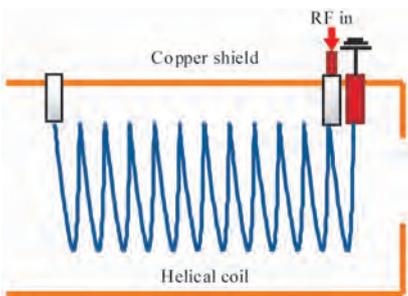


图6 螺旋谐振腔结构示意图

基于射频等离子体放电的亚稳态氦原子束流制备受限于电子碰撞激发机理,激发效率低下,提升空间有限,是限制原子阱痕量检测技术检测效率和灵敏度的主要因素。射频等离子体放电中,除碰撞激发产生亚稳态氦原子之外,还会碰撞电离产生相当一部分氦离子。氦离子经电磁场加速后会与真空管道壁面碰撞,嵌入内壁中,并在下次检测中被碰撞置换出来,出现样品交叉污染,因此每次测量样品之后,需要采用氙气放电清洗 $30\text{ h}$ ,拉长了循环检测周期。

#### 2) 横向准直

亚稳态氦原子从放电管中飞出时,横向速度较高,束流发散角较大,需要进行横向准直,限制其束流发散角。若不对亚稳态氦原子束流进行横向准直,大部分亚稳态氦原子将与真空腔体壁面碰撞损失,只有很少一部分原子可到达囚禁腔中磁光阱。横向准直部分利用二维光学黏胶对原子束流横向速度进行减速,其结构如图7所示。二维光学黏胶由两对两两垂直的激光束组成,其激光光强相同,频率一致且为负失谐。取相对传播的两束激光分析,两束激光作用力合力可表示为<sup>[20]</sup>

$$\vec{F} = \frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{s}{1+s+4\frac{(\delta - \vec{k}v)^2}{\Gamma^2}} - \frac{\hbar k \Gamma}{2} \frac{s}{1+s+4\frac{(\delta + \vec{k}v)^2}{\Gamma^2}} \quad (2)$$

式中: $v$ 为原子横向速度; $\hbar$ 为约化普朗克常数; $k$ 为激光波矢;激光频率失谐 $\delta = \omega_L - \omega_0$ , $\omega_L$ 和 $\omega_0$ 分别为激光频率和二能级系统共振频率(均为圆频率);饱和因子 $s = I_0/I$ , $I$ 为激光光强, $I_0$ 为能级饱和光强; $\Gamma$ 为跃迁的自然线宽。其中第一项为同向激光对原子作用力,第二项为相向激光对原子作用力。原子运动速率较低时,忽略多普勒频移,两作用力合力可近似为

$$\vec{F}' = \frac{8\hbar k^2 \delta}{\Gamma} \frac{s}{\left(1+s+\frac{4\delta^2}{\Gamma^2}\right)^2} \vec{v} = \alpha \vec{v} \quad (3)$$

根据式(3),激光频率失谐 $\delta < 0$ ,则其合力为阻尼力,大小与原子速度 $v$ 成正比。光学黏胶对原子作用力随速度变化关系如图8所示,原子进入光学黏胶后在阻尼力作用下横向往持续减速冷却至多普勒极限速度,原子束流发散角被限制。

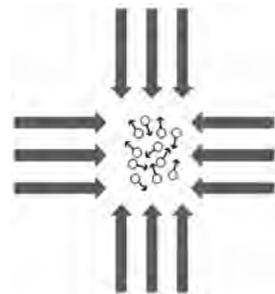


图7 二维光学黏胶示意图

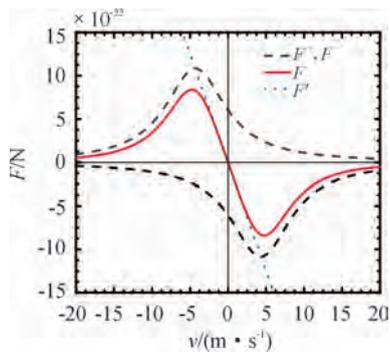


图8 一维光学黏胶作用力与原子速度关系曲线

### 3) 二维聚焦

塞曼减速中原子束流的纵向减速伴随有横向加热效应,原子每吸收一个反向运动光子的动量实现纵向减速,就会自发辐射出一个光子,并且辐射方向在空间上随机,其反冲动量会导致横向加热效应。原子纵向速度减小的同时横向速度增大,原子束流发散角不断增大,导致大部分原子与真空管道壁面碰撞退激,或是未能到达三维磁光阱区域。为避免塞曼减速过程中,束流发散角增大造成原子束流发散损失,需要预先进行二维聚焦。二维聚焦部分利用二维磁光阱产生指向原子束流中心的作用力,对原子束流预先聚焦,可降低亚稳态氮原子发散损失。二维磁光阱由反赫姆霍兹线圈和两对两两垂直的光束组成,其工作原理与亚稳态氮原子囚禁中采用的三维磁光阱一致。

### 4) 塞曼减速

常温下原子束流纵向速度一般高达数百米每秒,难以被囚禁腔中的三维磁光阱俘获,故需采用塞曼减速对原子束流纵向减速至磁光阱俘获速度<sup>[21]</sup>。常采用通电螺线圈产生特定的磁场分布,补偿原子减速过程中的多普勒频移,使原子与纵向减速光始终处于共振状态,可持续减速原子至 50 m/s 左右。如图 9 所示,通电螺线圈塞曼减速器由主减速线圈、副减速线圈和偏置线圈组成,每个线圈由数层不同匝数(几十匝至上百匝)的绝缘皮铜导线绕制而成。3 个通电螺线圈的电流分别由 3 个直流电源精密控制,3 个线圈产生的磁场叠加,构成了塞曼减速所需磁场。每层线圈在  $z$  方向产生的磁场可以表示为

$$B_{\text{coil}}(z) = \frac{\mu_0 n I}{2} \left( \frac{z_1 - z}{\sqrt{r^2 + (z_1 - z)^2}} - \frac{z_2 - z}{\sqrt{r^2 + (z_2 - z)^2}} \right) \quad (4)$$

式中:  $n$  为每厘米的匝数;  $I$  为通电线圈电流强度;  $z_1$  和  $z_2$  分别为线圈起始段和末端位置,每个线圈产生的磁场可以通过叠加各层线圈产生的磁场得到。

### 5) 亚稳态氮原子囚禁

图 10 所示三维磁光阱(3D-Magneto-Optical Trap)是一种囚禁中性原子的有效手段,由三对两两垂直具有特定偏振态的负失谐激光束和一对反赫姆霍兹线圈构成<sup>[22]</sup>。如图 11

所示,原子激发态能级在弱磁场中会分裂为  $m_j = 0, \pm 1$  三个子塞曼能级。如图 9(a)所示,  $x, y, z$  轴方向上均有一对强度相同、相对传播的  $\sigma^+$  和  $\sigma^-$  振光,分别对应  $J_g = 0 \rightarrow J_e = 1, m_j = +1, J_g = 0 \rightarrow J_e = 1, m_j = -1$  的跃迁。以  $z$  轴为例,在  $z > 0$  处,原子与右旋圆偏振光  $\sigma^-$  作用较强,由于偏振态相反,不与左旋圆偏振光  $\sigma^+$  作用,两束光作用力合力指向零坐标位置。同样,在  $z < 0$  处,原子与左旋圆偏振光  $\sigma^+$  作用较强,由于偏振态相反,不与右旋圆偏振光  $\sigma^-$  作用,两束光作用力合力指向零坐标位置。可以发现,在不均匀磁场和负失谐激光束的共同作用下,磁光阱内的原子受到一个处处指向中心的作用力,被囚禁在磁光阱中心。被囚禁的亚稳态氮原子每秒钟散射约  $10^7$  个光子,采用高灵敏 CCD 相机探测荧光强度,即可对单位时间被囚禁原子个数进行计数。

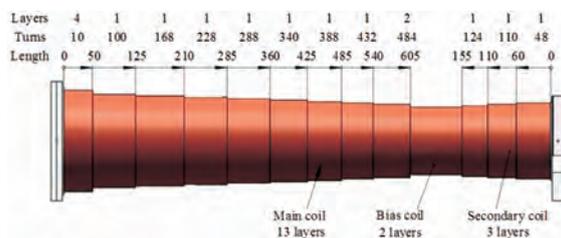


图9 通电螺线圈塞曼减速器

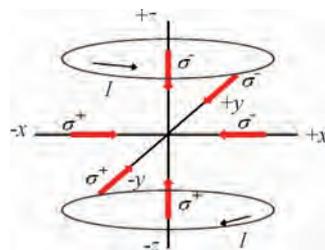


图10 三维磁光阱结构示意图

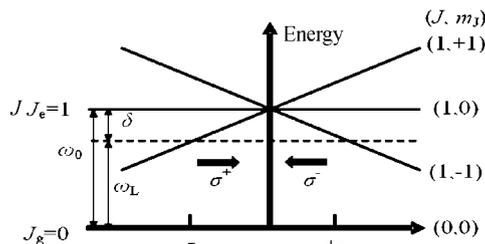


图11 二能级原子在磁光阱中能级结构

### 3.3 原子阱痕量检测技术研究现状

原子阱痕量检测技术具有单原子级别探测灵敏度、同位素级别分辨率和零本底探测的独特优势,在长寿命痕量放射性同位素检测上具有巨大的技术优势,国内外很多院校和科研机构都开展了相关的理论和应用研究。

美国阿贡国家实验室是最早开始原子阱痕量检测技术相关研究的团队,目前美国阿贡国家实验室的 ATTA 装置已经发展到第三代,可靠性和检测效率得到了稳步提高,并且

首次对自然样品中的 $^{81}\text{Kr}$ 原子进行了单原子计数<sup>[7,23]</sup>。美国阿贡国家实验室的 ATTA 装置主要用于检测地下水样品中的 $^{81}\text{Kr}$ 含量,通过计算 $^{81}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$ 比例对地下水样品进行年代断定。 $^{81}\text{Kr}$ 的有限断代年限在 15 万年到 150 万年间,氦气标准用量为 5  $\mu\text{L}$ (100 ~ 200 L 水样品或 40 ~ 80 kg 冰样品),标准检测时长 2 h。

中国科学技术大学的胡水明小组<sup>[2,3,12,19,24]</sup>与美国阿贡国家实验室合作,在中国科学技术大学和阿贡实验室分别搭建了一套第三代 ATTA 装置。两套装置结构和性能指标基本一致,其主要区别在于阿贡实验室采用了实时测量 $^{83}\text{Kr}$ 原子俘获率的直接测量方案,而中科大采用了以猝灭光源作光开关,间接测量原子俘获率的测量方案。中国科学技术大学的 ATTA 装置同样用于检测地下水样品中的 $^{81}\text{Kr}$ 含量,并对地下水样品进行年代断定。

德国海德堡大学的 Welte 小组<sup>[4,25]</sup>搭建了一套 ATTA 装置用于检测 $^{39}\text{Ar}$ 原子,目前已实现每小时 4.1  $\pm$  0.3 个 $^{39}\text{Ar}$ 原子的俘获率,具备对标况下 1ml 氦气样品进行检测的能力。 $^{39}\text{Ar}$ 半衰期 269 年,可对 50 ~ 1500 年的环境样品进行年代断定,填补了其他同位素测年范围的空白,目前主要用于全球洋流循环研究。

美国哥伦比亚大学物理系的 Aprile 小组<sup>[26]</sup>搭建了一套 ATTA 装置,用于测量高纯度氦气样品中 $^{84}\text{Kr}/\text{Xe}$ 比例(约 $10^{-12}$ )。尽管通过低温蒸馏从 Xe 中去除 Kr(包括 $^{84}\text{Kr}$ 和 $^{85}\text{Kr}$ )的技术已经十分成熟,但对于大体积(约 100 L)的液态氦暗物质探测器而言, $^{85}\text{Kr}$ 的放射性衰变污染仍是探测器灵敏度的主要限制,急需发展一种可用于标定 $^{85}\text{Kr}$ 的放射性衰变污染水平的方法。 $^{84}\text{Kr}$ 同位素丰度 57%, $^{85}\text{Kr}$ 同位素丰度约 $2 \times 10^{-11}$ , $^{85}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ 通常稳定,那么通过测量 $^{84}\text{Kr}/\text{Xe}$ ,再结合 $^{85}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ 比例,即可计算出 $^{85}\text{Kr}/\text{Xe}$ 。

德国洪堡大学的 Daerr 小组<sup>[27]</sup>搭建了一套 ATTA 装置,用于检测核燃料后处理厂释放的 $^{85}\text{Kr}$ ,其性能指标与美国阿贡实验室 ATTA 装置基本相同。如被国际原子能机构采用,该装置将用于核查《不扩散核武器条约》的实行情况。

航天工程大学的洪延姬小组<sup>[28-29]</sup>与中国科学技术大学的胡水明小组合作搭建了一套第三套 ATTA 装置,主要用于检测大气中的 $^{85}\text{Kr}$ 含量,可应用于核活动和核反应堆泄漏的日常监测。

## 4 结论

相比低辐射计数法和加速器质谱法,原子阱痕量检测技术既不需要特殊设计的实验室,也不需要价格昂贵的粒子加速器,仅需要几台价格相对低廉的半导体激光器和桌面设备即可完成检测,在地下水年代测定、气候变化、大气环境监测等领域具有广泛应用前景。目前原子阱痕量检测技术已实现对于 $^{81}\text{Kr}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ 和 $^{39}\text{Ar}$ 原子的检测,但检测效率和检测灵敏

度仍存在一定提升空间,下一步可通过研究亚稳态氦原子光学激发方法和永磁体塞曼减速器进一步提高检测效率。

### 1) 亚稳态氦原子光学激发方法

2002 年,L. Young 等提出了一种真空紫外光激发方法。基态氦原子首先共振吸收波长 123.6 nm 真空紫外光子,从基态跃升到第一激发态 $5s[3/2]_1$ ,随后利用 819.2 nm 激光照射得到激发态原子 $5p[3/2]_2$ ,随后将自发辐射出一个光子落到亚稳态 $5s[3/2]_2$ 。相比等离子体放电约 0.1% 的激发效率,光学激发效率最高可达 5%,对于原子阱痕量检测技术来说是飞跃性的提升。此外,光学激发方法对工作气压没有要求,可以任意气压下激发产生亚稳态氦原子束流,可以极大地缩小单次检测的样品用量。此外,光学激发方法不会出现交叉污染问题,检测之后不需要进行氦气放电清洗,样品循环检测周期将进一步缩短至 1 天。

光学激发方法的最大挑战在于 123.6 nm 真空紫外氦灯的获取,受气体杂质和 $\text{MgF}_2$ 窗片退化影响,真空紫外灯的寿命只有数小时。此外,氦气较强的自吸收效应限制了紫外光强度,仅有 10% 的 123.6 nm 光子可以出射。需要进一步优化真空紫外光源的结构设计与激励方式,延长工作寿命,提高真空紫外光强度,并在此基础上开展真空紫外光激发各参数对亚稳态氦原子激发效率的影响规律研究。

### 2) 永磁体塞曼减速器

塞曼减速所需的梯度磁场常用不同形式的通电螺线圈产生。使用过程中,发现通电螺线圈塞曼减速器存在有效减速区域短、需要直流电源和冷却装置以及安装和拆卸不便等不足。2007 年 Ovchinnikov 等首次报道了采用圆柱形永磁体设计塞曼减速器的方法,这种永磁体塞曼减速器结构简单,便于组装和调节,不需要电流源和冷却装置,可以减小系统尺寸与质量,便于集成以提高系统可靠性,因而获得了越来越多的关注和研究。

塞曼减速中原子束流在纵向上做减速运动,横向上做加速运动。横向加速运动会致束流发散角增大,大部分原子与真空腔面碰撞损失或是未能到达三维磁光阱区域,仅有约 1/20 的原子被俘获囚禁。为降低横向束流损失,可考虑在塞曼减速器中间增加横向准直或二维聚焦部件,抵消横向随机加热效应。由于自身结构限制,通电螺线圈塞曼减速器无法预留出足够的通光孔,难以在束流减速的同时进行准直或聚焦。而永磁体塞曼减速器在设计上可以预留足够的通光孔,将横向准直腔和塞曼减速腔集成为一体的准直减速腔。准直减速腔中,可同时进行纵向减速和横向准直,抵消横向随机加热效应,避免束流横向发散损失,可以实现原子俘获率 5 倍以上的提高。

## 参考文献:

[1] DU X. Realization of radio-krypton dating with an atom trap

- [J]. 2003.
- [2] 程存峰. 激光冷却原子阱方法检测痕量稀有气体同位素[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2012.
- [3] TU L Y, YANG G M, CHENG C F, et al. Analysis of Kr-85 and Kr-81 in a Few Liters of Air[J]. *Analytical Chemistry*, 2014, 86(8): 4002–4007.
- [4] RITTERBUSCH F, EBSER S, WELTE J, et al. Groundwater dating with Atom Trap Trace Analysis of  $^{39}\text{Ar}$ [J]. *Geophysical Research Letters*, 2015, 41(19): 6758–6764.
- [5] LOOSLI H H, M? LL M, OESCHGER H, et al. Ten years low-level counting in the underground laboratory in Bern [J]. Switzerland, 1986, 17(5): 402–405.
- [6] WINGER K, FEICHTER J, KALINOWSKI M B, et al. A new compilation of the atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2005, 80(2): 183–215.
- [7] LU Z T, SCHLOSSER P, JR W M S, et al. Tracer applications of noble gas radionuclides in the geosciences [J]. *Earth-Science Reviews*, 2014, 138: 196–214.
- [8] VERNIANI F. The total mass of the Earth's atmosphere[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1966, 71(2): 385–91.
- [9] LU Z T. Atom Trap Trace Analysis; proceedings of the American Institute of Physics, F, 2001.
- [10] AGENCY I A E. Methods of low-level counting and spectrometry[M]. International Atom Energy Agency, 1981.
- [11] 冯江平, 陈羽, 杨华龙. 低水平  $\gamma$  射线测量中的本底问题[J]. *核电子学与探测技术*, 2009(03): 167–172.
- [12] 杨国民. 原子阱痕量分析方法测量环境样品中的  $^{85}\text{Kr}$  和  $^{81}\text{Kr}$ [D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2015.
- [13] JIANG S, HE M, JIANG S, et al. Development of AMS measurements and applications at the CIAE[J]. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, 2000, 172(1/4): 87–90.
- [14] ELMORE D, PHILLIPS F M. Accelerator mass spectrometry for measurement of long-lived radioisotopes [J]. *Science*, 1987, 236(4801): 543–550.
- [15] BURLINGAME A L, BOYD R K, GASKELL S J. *Analytical Chemistry* [J]. Mass spectrometry, 1976, 60(12): 268R–303R.
- [16] MULLER R A. Radioisotope dating with a cyclotron [J]. *Science*, 1977, 196(4289): 489–494.
- [17] JULL A J T, BURR G S. *Accelerator Mass Spectrometry* [M]. [S. l.]: [s. n.], 2014.
- [18] COLLON P, ANTAYA T, DAVIDS B, et al. Measurement of  $^{81}\text{Kr}$  in the atmosphere [J]. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, 1997, 123(1/4): 122–127.
- [19] 程存峰, 杨国民, 蒋蔚. 激光冷却获得高亮度的亚稳态惰性气体原子束和原子阱[J]. *物理学报*, 2011, 60(10): 246–252.
- [20] 王义道. 原子的激光冷却与陷俘[M]. 北京: 北京大学出版社, 2007.
- [21] PRODAN J V, PHILLIPS W D, METCALF H. Laser Production of a Very Slow Monoenergetic Atom Beam [J]. *Physrevlett*, 1982, 49(16): 1149–1153.
- [22] METCALF H J, STRATEN P V D. *Laser Cooling and Trapping* [M]. Springer, 1999.
- [23] CHEN C Y, LI Y M, BAILEY K, et al. Ultrasensitive Isotope Trace Analyses with a Magneto-Optical Trap [J]. *Science*, 1999, 286(5442): 1139–1141.
- [24] 涂乐义. 地下水溶解氦气分析用于放射性氦同位素测年[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2015.
- [25] WELTE J, RITTERBUSCH F, STEINKE I, et al. Towards the realization of atom trap trace analysis for  $^{39}\text{Ar}$  [J]. *New Journal of Physics*, 2010, 12(6): 065031.
- [26] APRILE E, YOON T, LOOSE A, et al. An atom trap trace analysis system for measuring krypton contamination in xenon dark matter detectors [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2013, 84(9): 181301.
- [27] KOHLER M, DAERR H, SAHLING P, et al. All-optical production and trapping of metastable noble gas atoms down to the single atom regime [J]. *Epl*, 2014, 108(1): 37–48.
- [28] 游翔宇, 冯高平, 王明东. 射频放电方法产生亚稳态氦原子束流技术研究 [J]. *机电产品开发与创新*, 2018, 31(5): 61–64.
- [29] 游翔宇, 冯高平, 王明东. 一种用于氦原子的环形永磁体塞曼减速器 [J]. 2019, 48(5): 520004–0520004(8).

科学编辑 孟卫锋 博士 (西安航天精密机电研究所研究员)  
责任编辑 周江川