

測量快中子能譜的活化法

胡逸文 梅启庸 刘天柱 孙汉城

本文对于測量快中子能譜的活化法的特点、原理、实验方法和存在问题作了综合性的評述。着重討論了表明活化放射性与中子能譜关系的“活化方程”的各种解法。

一、引言

一般來說，到目前为止，快中子能譜測量还是个沒有很好解决的問題。在某些特殊場合下，例如反应堆活性区能譜的測量，情况就更复杂。为了解决这一类特殊情况下能譜測量的問題，近十几年来，发展了一种測量方法，我們叫它为“平均截面法”。

平均截面法的基本依据是：快中子引起的核反应的平均截面与中子能譜有关。測量出若干种核反应的平均截面或其比值（叫做能譜指标），就可以推算得中子能譜。

平均截面或能譜指标通常由小裂变室或活化指示箔来測得。

利用指示箔的活化来測量核反应平均截面的方法即通常所称的活化法。在这种方法中，直接測量的物理量是指示箔中中子引起的核反应产物的放射性。

在測量快中子能譜的活化法中，通常采用某些具有反应阈的 (n, α) 、 (n, p) 、 $(n, 2n)$ 、 (n, f) 反应以及能将原子核激发至同质异能态的 (n, n') 等反应，所以它又常叫“阈活化法”。显然，在慢中子干扰极小的情况下，并不排斥采用某些沒有阈的核反应，如 (n, γ) 等。阈活化法具有很多特点：(1)指示箔体积小，对中子場的扰动不大。可以用在空間狹窄的地点和空間分辨要求高的場合进行測量。(2)活化放射性与中子入射方向关系极小，可以应用于无定向中子能譜的測量。(3)对 γ 射綫不灵敏，可以在 γ 本底很強的場合下应用。(4)由于利用具有一定阈能的反应，可以在有較強低能中子本底存在的場合下探測高能中子。(5)記錄中子时沒有分辨時間的限制，它所能探測的中子通量原則上是沒有上限的。(6)測量設備和技术比較簡便。

由于以上这些特点，活化法在反应堆快中子能譜測量^[1-7]、快中子在慢化介质中的空間和能量分布測量^[8-9]、裂变譜的研究^[10-12]以及快中子通量和剂量的測量^[13-15]等方面得到了相当多的应用。

二、活化方程

設中子作用于薄层指示箔，引起某种核反应 $L(n, x)M$ ，則在中子照射过程中的某一瞬間 $(t, t + dt)$ ，指示箔上由于核反应而产生的M核的数目为 $N(t)\Phi(t)\bar{\sigma}dt$ 。 $N(t)$ 是 t 时刻的L核数目； $\Phi(t)$ 是此时的中子通量； $\bar{\sigma}$ 是这种核反应对所測中子譜的平均截面，即 $\int_0^{\infty} \sigma(E)\phi(E)dE$ ，其中 $\sigma(E)$ 是中子能量为 E 时的核反应截面， $\phi(E)$ 是中子按能量的分布函数，滿足归一化条件 $\int_0^{\infty} \phi(E)dE = 1$ 。若M核是放射性的，其衰变常数为 λ ，則在同一 $(t, t + dt)$ 瞬間，由于衰变而消失的M核的数目为 $\lambda N_M(t)dt$ ， $N_M(t)$ 为 t 时M核的数目。所以，在 $(t, t + dt)$ 瞬間，M核淨增数目为

$$dN_M(t) = [N(t)\Phi(t)\bar{\sigma} - \lambda N_M(t)]dt. \quad (1)$$

通常, $N(t)$ 可视为常数 N , $\Phi(t)$ 也可控制得近似稳定不变, 即为常数 Φ . 在这样的条件下, 将(1)式在时间间隔 $(0, T)$ 内积分, 即得中子照射 T 时后, 指示箔中累积的 M 核数目 $N_M(T)$:

$$N_M(T) = \frac{1 - e^{-\lambda T}}{\lambda} N\Phi\bar{\sigma}. \quad (2)$$

此时, M 核的放射性 A 为

$$A = \lambda N_M(T) = (1 - e^{-\lambda T}) N\Phi\bar{\sigma}. \quad (3)$$

当 $T \gg \frac{1}{\lambda}$ 时,

$$A \simeq A_0 = N\Phi\bar{\sigma}, \quad (3')$$

A_0 称为饱和放射性.

若指示箔受中子照射 T 时后即停止照射, M 核的放射性即按指数规律衰变, 经时间 t 后, 其放射性 $A(t)$ 将为

$$A(t) = Ae^{-\lambda t} = (1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda t} A_0. \quad (4)$$

由(3')和(4)式得

$$\frac{A(t)e^{\lambda t}}{(1 - e^{-\lambda T})} = A_0 = N\Phi \int_0^{\infty} \sigma(E)\phi(E)dE. \quad (5)$$

通常, 实验测得的是计数率 $A'(t) = \epsilon A(t)$, ϵ 是探测效率. 此时(5)式变为

$$\frac{A'(t)e^{\lambda t}}{1 - e^{-\lambda T}} = A'_0 = \epsilon A_0 = \epsilon N\Phi \int_0^{\infty} \sigma(E)\phi(E)dE. \quad (6)$$

(5)式和(6)式分别表示放射性和计数率与中子能谱的关系, 我们把它们统称为“活化方程”.

在实际工作中, 为了消去通量 Φ , 常用两种指示箔在同样的条件下受中子照射, 实验测出它们的饱和放射性之比 R_{12} 或饱和计数率之比 R'_{12} , 然后再由此出发求中子能谱. 由(5)和(6)式不难看出:

$$R_{12} = \frac{A_{01}}{A_{02}} = \frac{N_1(\bar{\sigma}_1)}{N_2(\bar{\sigma}_2)} = \frac{N_1 \int_0^{\infty} \sigma_1(E)\phi(E)dE}{N_2 \int_0^{\infty} \sigma_2(E)\phi(E)dE}, \quad (7)$$

$$R'_{12} = \frac{A'_{01}}{A'_{02}} = \frac{\epsilon_1 N_1(\bar{\sigma}_1)}{\epsilon_2 N_2(\bar{\sigma}_2)} = \frac{N_1 \epsilon_1 \int_0^{\infty} \sigma_1(E)\phi(E)dE}{N_2 \epsilon_2 \int_0^{\infty} \sigma_2(E)\phi(E)dE}, \quad (8)$$

$\bar{\sigma}_1/\bar{\sigma}_2$ 即能谱指标.

三、活化方程的解法

活化方程是以 $\phi(E)$ 作未知函数的积分方程. 在一般情况下, 由于 $\sigma(E)$ 是一个非常复杂的函数, $\phi(E)$ 很难以解析形式直接求出. 在实际能谱测量中, 通常都用近似法来求解 $\phi(E)$. 各种近似法大体上可分为三类: (1) 解析法. 将 $\phi(E)$ 表成含有几个待测参数或未知量的函数, 用一组活化方程解出这些参数和未知量, 从而得出中子谱. (2) 分道法(多羣法). 将待测能谱分成若干道, 每道的中子谱形以一简单的函数表示. 由一组活化方程解出各道中能谱函数中所含的参数或通量. (3) 积分谱法. 假设 $\phi(E)$ 与某一已知能谱相近, 以此已知谱作基准求出所需的常量, 再以此常量用于待测谱, 求出某几个阈能以上的中子通量得积分谱, 再微分得 $\phi(E)$. 现分述如下.

1. 解析法

(1) **参数测定法** 谱形比较简单的中子谱可以表成已知其函数形式而只含有几个参量的函数。例如,裂变谱可以表成只含一个参量 β 的麦克斯韦分布 $\phi(E) = \frac{2\beta^{3/2}}{\sqrt{\pi}} E^{1/2} e^{-\beta E}$,在这种情况下,对裂变谱的测量,就归结为对 β 的测量了。原则上用一个指示箔就可定出参数 β 值。为此,利用某一指示箔中活化反应的已知截面-能量曲线和所假定的能谱函数,由数值计算可得出该活化反应的平均截面:

$$\bar{\sigma}(\beta) = \frac{2\beta^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} \sigma(E) E^{1/2} e^{-\beta E} dE.$$

给出各种不同的 β ,由此就可得到 $\bar{\sigma}(\beta)$ - β 关系曲线。这样,实验测出 $\bar{\sigma}$ 以后,与曲线比较则可以得到 β 。

显然,如果用两种指示箔,则可以计算能谱指标 $\bar{\sigma}_1(\beta)/\bar{\sigma}_2(\beta)$ 与 β 的关系曲线,用(7)式或(8)式从实验测量数据计算出待测能谱的能谱指标,从而定出 β 值。用这种方法可以避免对 Φ 的测量,但还需要知道探测器的效率或作放射性的绝对测量。实际工作中常采用相对测量法定出 β ,即用两种指示箔同时受已知 β 的标准谱中子照射,得饱和计数率比 $(R'_{12})_{\beta_0}$ 。再用这组指示箔受待测中子谱的中子照射,得 $(R'_{12})_{\beta}$ 。然后就求出比值 $(R'_{12})_{\beta}/(R'_{12})_{\beta_0}$ 。另一方面,根据(7)或(8)式,得

$$\frac{(R'_{12})_{\beta}}{(R'_{12})_{\beta_0}} = \frac{(\bar{\sigma}_1/\bar{\sigma}_2)_{\beta}}{(\bar{\sigma}_1/\bar{\sigma}_2)_{\beta_0}}, \quad (9)$$

其中,能谱指标比 $(\bar{\sigma}_1/\bar{\sigma}_2)_{\beta}/(\bar{\sigma}_1/\bar{\sigma}_2)_{\beta_0}$ 与 β 的关系曲线可以由数值计算得到。故把实验测得的 $(R'_{12})_{\beta}/(R'_{12})_{\beta_0}$ 与能谱指标比- β 关系曲线相比较,即可求出待测的 β 值。

以上仅是以裂变谱为例,说明了参数测定法的用法。实际上,对于其它简单的谱形,此法亦可运用。

一般说来,参数测定法对于那些函数形式简单且又已知的中子谱的测量是准确可靠的。在进行相对测量时,这种方法的测量结果的误差几乎全部由截面-能量曲线的不准确所决定。因此,如果具有了准确的截面-能量关系曲线,就不难定出准确的能谱参数。另外,也是由于精度较高,此法非常适用于类似中子谱的比较,它能很好地分辨出各个中子谱之间的微小差异。不仅如此,利用一组活化指示箔,参数测定法还可用来判别所测中子谱是否符合这一种或那一种能谱形状。因为,如果未知谱与所假定的能谱形状相符合,那末由不同指示箔所得出的能谱参数就应该是一致的。

(2) **多项式展开法** 参数测定法只适用于形式已知且较简单的能谱的测量,对于那些形式未知的中子谱是不适用的。对于这种中子谱的测量可用多项式展开法处理。多项式展开法的原理如下:假设中子谱中能量大于 E_M 的中子的贡献可以忽略不计,将 $\phi(E)$ 近似地展开成能量 E 的新的多项式,即令

$$\phi(E) = a_0 + a_1 E + a_2 E^2 + \cdots + a_n E^n,$$

此时活化方程变为

$$A_0 = N\Phi \left\{ a_0 \int_0^{E_M} \sigma(E) dE + a_1 \int_0^{E_M} \sigma(E) E dE + \cdots + a_n \int_0^{E_M} \sigma(E) E^n dE \right\}, \quad (10)$$

其中, $\int_0^{E_M} \sigma(E) dE, \cdots, \int_0^{E_M} \sigma(E) E^n dE$ 等由截面-能量关系曲线算得。

用 $(n+1)$ 个截面-能量关系曲线互相独立的指示箔即可建立起由 $(n+1)$ 个独立的方程

组成的线性方程组,由此解出多项式的各项系数.

这种方法的缺点是,要有较好的近似就需要取很多项,而项数多了,不仅要求有很多指示箔,而且在解线性方程时误差的积累也很大.

(3) 归一化正交函数展开法 根据广义的傅里叶级数理论^[17],若 $\psi_1(x), \psi_2(x), \dots, \psi_n(x), \dots$ 在区间 $[a, b]$ 内组成归一化正交函数系,即

$$\int_a^b \psi_p(x)\psi_q(x)dx = \begin{cases} 0, & \text{当 } p \neq q \text{ 时} \\ 1, & \text{当 } p = q \text{ 时} \end{cases} \quad (11)$$

则区间 $[a, b]$ 内的任一连续函数 $\phi(x)$ 均可近似地表达成 n 项 $\psi_k(x)$ 的线性组合,即

$$\phi(x) \approx \sum_{k=1}^n \gamma_k \psi_k(x),$$

当 γ_k 等于傅里叶系数 $B_k = \int_a^b \phi(x)\psi_k(x)dx$ 时,由此引进的均方误差 $\delta_n^2 = \int_a^b \left[\phi(x) - \sum_{k=1}^n \gamma_k \psi_k(x) \right]^2 dx$ 最小.

从 n 个独立的活化反应的截面-能量关系曲线出发,用希耳伯特-施米特(Hilbert-Schmidt)归一化正交步骤,由截面的线性组合得到归一化正交函数系^[18,19],即在能区 $[E_1, E_2]$ 中令

$$\left. \begin{aligned} \psi_1(E) &= A_{11}\sigma_1(E), \\ \psi_2(E) &= A_{21}\sigma_1(E) + A_{22}\sigma_2(E), \\ &\dots\dots\dots \\ \psi_n(E) &= A_{n1}\sigma_1(E) + A_{n2}\sigma_2(E) + \dots + A_{nn}\sigma_n(E), \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

其中 $\sigma_k(E)$ 为第 k 个反应对能量为 E 的中子的截面,系数 A_{ki} ,可根据归一化正交条件由下式求出:

$$\left. \begin{aligned} \int_{E_1}^{E_2} \psi_1(E)^2 dE &= A_{11}^2 \int_{E_1}^{E_2} \sigma_1^2(E) dE = 1, \\ \int_{E_1}^{E_2} \psi_1(E)\psi_2(E) dE &= A_{11}A_{21} \int_{E_1}^{E_2} \sigma_1^2(E) dE + A_{11}A_{22} \int_{E_1}^{E_2} \sigma_1(E)\sigma_2(E) dE = 0, \\ \int_{E_1}^{E_2} \psi_2(E)^2 dE &= A_{21}^2 \int_{E_1}^{E_2} \sigma_1^2(E) dE + 2A_{21}A_{22} \int_{E_1}^{E_2} \sigma_1(E)\sigma_2(E) dE + A_{22}^2 \int_{E_1}^{E_2} \sigma_2^2(E) dE = 1, \\ &\dots\dots\dots \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

其中,积分限 $[E_1, E_2]$ 可以根据对于待测中子谱的初步知识来选定,使 $\int_0^{E_1} \sigma_k(E)\phi(E)dE$ 及 $\int_{E_2}^{\infty} \sigma_k(E)\phi(E)dE$ 都可忽略不计. $\int_{E_1}^{E_2} \sigma_k^2(E)dE$ 及 $\int_{E_1}^{E_2} \sigma_k(E)\sigma_j(E)dE$ 由截面-能量曲线按数值积分求得.

为了求出傅里叶系数 B_k ,可将(12)式变换成

$$\left. \begin{aligned} \sigma_1(E) &= C_{11}\psi_1(E), \\ \sigma_2(E) &= C_{21}\psi_1(E) + C_{22}\psi_2(E), \\ &\dots\dots\dots \\ \sigma_n(E) &= C_{n1}\psi_1(E) + C_{n2}\psi_2(E) + \dots + C_{nn}\psi_n(E). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

将(14)代入活化方程(5)式,并利用归一化正交条件,得方程组

$$\frac{A_j\phi}{N_j\Phi} = \bar{\sigma}_j = \int_{E_1}^{E_2} \sigma_j(E)\phi(E)dE = \sum_{k=1}^j B_k C_{j,k}, \quad j = 1, \dots, n. \quad (15)$$

A_0, N_i 由实验测得, $C_{j,k}$ 由(14)式定出, 由(15)式即可求出 ΦB_k . $\psi_k(E)$ 已由(12)式定出, 故得

$$\Phi\phi(E) \approx \sum_{k=1}^n (\Phi B_k)\psi_k(E),$$

Φ 可利用归一化条件 $\int_{E_1}^{E_2} \Phi\phi(E)dE = \Phi$ 消去, 即得 $\phi(E)$.

这种方法的主要问题是, 所得到的 $\phi(E) = \sum_{k=1}^n B_k\psi_k(E)$ 只是在所有的 $\sum_{k=1}^n \gamma_k\psi_k(E)$ 中的最佳表示式, 但是将 $\phi(E)$ 表成某一有限的 n 项 $\psi_k(E)$ 的线性组合这一假定本身并不就是最佳的假定, 由此引进的误差 δ_n 仍可能很大. 从理论上说, 若 $\psi_1(x), \psi_2(x), \dots$ 在 $[a, b]$ 内对于 $\phi(x)$ 是封闭的, 即 $\int_a^b [\phi(x)]^2 dx = \sum_{k=1}^{\infty} B_k^2$, 且傅里叶级数 $\sum_{k=1}^{\infty} B_k\psi_k(x)$ 在 $[a, b]$ 内是收敛的, 则

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \delta_n = 0.$$

但事实上不可能找到无限多个 $\psi_k(x)$.

实际工作中可以用 n 个指示箔, 得到 n 个 $\psi_k(E)$. 若对其中的 m 个指示箔所得的 m 个 $\psi_k(E)$ 展开所得 $\phi(E)$ 与对 n 个 $\psi_k(E)$ 展开所得 $\phi(E)$ 相差不多, 就可以认为这种近似法是合理的. 图1表明一个假设的谱对15个 $\psi_k(E)$ 及23个 $\psi_k(E)$ 展开的结果. 由此图可见, 这种方法是有所前途的.

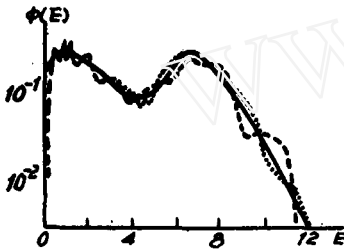


图1 归一化正交函数展开的结果
实线——假设谱; 虚线——15个 $\psi_k(E)$ 展开谱; 点线——23个 $\psi_k(E)$ 展开谱.

2. 分道法

在解析法中将整个能谱以解析函数的形式表示. 若谱形复杂, 解析法的运用就比较困难. 分道法将能谱分成若干道, 每一道的谱形就容易用简单的函数形式表示. 根据所用近似谱的不同, 又可分为下列几种方法:

(1) 阶梯谱近似法^[21,9] 如图2所示, 将待测谱的能区适当地分成若干道, 假设每道内的 $\phi(E)$ 是常数. 令第 i 道的道宽为 $E_{j+1} - E_j = \Delta E_j$, 第 i 道的通量为 ϕ_j , 则活化方程(5)式简化为

$$A_0 = N\Phi \sum_{j=1}^n \int_{E_j}^{E_{j+1}} \sigma(E)\phi(E)dE = N\Phi \sum_{j=1}^n \bar{\sigma}_j \phi_j \Delta E_j, \tag{16}$$

其中 $\bar{\sigma}_j = \frac{1}{\Delta E_j} \int_{E_j}^{E_{j+1}} \sigma(E)dE$, 即 i 道的平均截面值.

若用 n 个独立的指示箔在同一条件下受中子照射, 即得 n 个方程:

$$A_{0i} = N_i \sum_{j=1}^n \bar{\sigma}_{ij} \Delta E_j \Phi \phi_j, \quad i = 1, 2, \dots, n. \tag{17}$$

由此解行列式得出未知量 $\Phi\phi_j$, 即得各道的中子通量. 显然, 用表明能谱指标与放射性关系的(7)式也可解出.

严格地讲来, 把每道的中子谱看成常数只有当道宽非常小的时候才能近似成立. 在一般情况下, 道宽总是分得很宽的. 这是因为, 一方面在实际工作中找不到许多合适的指示箔; 另

一方面,道数多了解行列式时误差积累很大。所以阶梯谱近似法只能给出极粗糙的结果。要使阶梯谱近似法得到较好的结果,通常采用逐次近似的方法,即将上述方法求出的结果内插成一连续谱 $\phi_1(E)$, 利用此 $\phi_1(E)$ 求出各道的平均截面 $\bar{\sigma}_i = \frac{\int_{E_j}^{E_{j+1}} \sigma(E)\phi_1(E)dE}{\int_{E_j}^{E_{j+1}} \phi_1(E)dE}$, 再以此 $\bar{\sigma}_i$ 代入

$$\bar{\sigma}_i = \frac{\int_{E_j}^{E_{j+1}} \sigma(E)\phi_1(E)dE}{\int_{E_j}^{E_{j+1}} \phi_1(E)dE}$$

(17)式求出 $\phi_2(E)$ 。这样,经过数次逼近,就可得到较精确的结果。

(2) 折线近似法 如图 3 所示,将待测谱的能区 $(0, E_n)$ 适当地分为 n 道,每道内的 $\phi(E)$ 以 E 的线性函数作为近似,且令 $\phi(0)$ 及 $\phi(E_n)$ 等于零。

在此情况下,不难证明

$$A_0 = N\Phi \sum_{j=1}^{n-1} \phi(E_j)b_j, \quad (18)$$

其中 $b_j = \langle E\sigma \rangle_{j-1} - \langle E\sigma \rangle_j + E_{j+1}\langle \sigma \rangle_j - E_{j-1}\langle \sigma \rangle_{j-1}$, $\langle E\sigma \rangle_j$ 及 $\langle \sigma \rangle_j$ 分别为 $E\sigma$ 及 σ 在能区 (E_j, E_{j+1}) 内的平均值,直接由截面-能量关系曲线求得。

用 $(n-1)$ 个独立的指示箔即得 $(n-1)$ 个方程式组成的线性方程组

$$A_{0i} = N_i\Phi \sum_{j=1}^{n-1} \phi(E_j)b_{ji}, \quad i = 1, 2, \dots, n-1, \quad (19)$$

用解行列式法解得 $(n-1)$ 个未知数 $\phi(E_j)$ 。进一步可求得各道的中子通量,即各梯形的面积

$$\frac{1}{2} [\phi(E_j) + \phi(E_{j+1})](E_{j+1} - E_j).$$

根据实验测得的 $As^{75}(n, \gamma)^{[23]}$, $Au^{197}(n, \gamma)^{[23]}$, $Np^{237}(n, f)^{[24]}$, $U^{238}(n, f)^{[24]}$ 反应对哥迪瓦(Godiva)反应堆中子谱的平均截面(以 U^{235} 的热中子裂变截面为 582 靶作标准),我们用折线近似法得到的哥迪瓦反应堆中子谱与多群理论计算的符合得相当好,如表 1 所示。

表 1 哥迪瓦反应堆中子谱各能区的相对中子通量

测谱所利用的反应	各能区的中子通量(相对单位)				计算时所用的截面曲线的文献
	<0.1 兆电子伏	0.1—0.4 兆电子伏	0.4—0.9 兆电子伏	0.9—∞ 兆电子伏	
$As^{75}(n, \gamma), Np^{237}(n, f), U^{238}(n, f)$	0.022	0.189	0.272	0.517	$As^{75}(n, \gamma)^{[26]}$, $Np^{237}(n, f), U^{238}(n, f)^{[26]}$
$Au^{197}(n, \gamma), Np^{237}(n, f), U^{238}(n, f)$	0.014	0.169	0.281	0.535	(n, f) 反应截面上, $Au^{197}(n, \gamma)^{[27]}$
反应同上	0.028	0.205	0.265	0.513	(n, f) 反应截面上, $Au^{197}(n, \gamma)^{[28, 29]}$
多群理论计算 ^[24]	0.030	0.198	0.255	0.517	

通常,折线谱比阶梯谱的近似性好。若将折线近似谱修匀成连续谱 $\phi_1(E)$ 作为一级近似谱,也可以逐次近似。

(3) 指数谱近似法^[30] 例如裂变谱或反应堆中子谱可以分成 n 道,每道以能量的指数函数 $B_j e^{-K_j E}$ 近似表示。若有 $(n+1)$ 个独立的指示箔,各道的参数 B_j, K_j 可以如下求出:(1)在能量最高的一道 (E_{n-1}, E_n) 内选用两个指示箔,得到两个活化方程:

$$\left. \begin{aligned} A_{01} &= \int_{E_{n-1}}^{E_n} N_1 \sigma_1(E) B_n e^{-K_n E} dE, \\ A_{02} &= \int_{E_{n-1}}^{E_n} N_2 \sigma_2(E) B_n e^{-K_n E} dE, \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

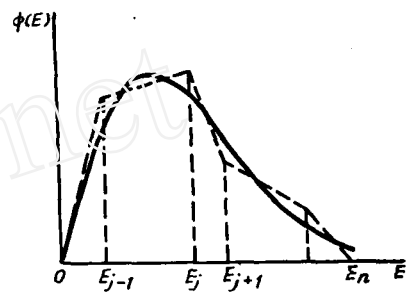


图 3 折线谱示意图

由此解得 B_n 及 K_n 。(2)对于其他能区,只需要选用一个活化反应,例如,对于 (E_{n-2}, E_{n-1}) 能区,有下面两个方程:

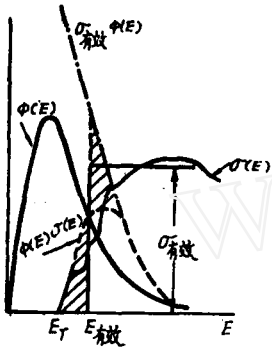
$$A_{03} = \int_{E_{n-2}}^{E_{n-1}} N_3 \sigma_3(E) B_{n-1} e^{-K_{n-1} E} dE + \int_{E_{n-1}}^{E_n} N_3 \sigma_3(E) B_n e^{-K_n E} dE, \quad (21)$$

$$B_{n-1} e^{-K_{n-1} E_{n-1}} = B_n e^{-K_n E_{n-1}}. \quad (22)$$

B_n, K_n 已由前面求出,故由(21)及(22)式可求出 B_{n-1} 及 K_{n-1} , 其余的各能区可依次类推。

3. 积分谱法

(1) **有效阈法**^[2-4,7,31] 通常活化反应是有阈能 E_T 的反应,其截面-能量曲线在理想情况下可以看作是在某一有效阈 ($E_{有效}$) 以下为零而在 $E_{有效}$ 以上是常数 ($\sigma_{有效}$) 的阶跃函数,如图4所示。只要选择 $E_{有效}$ 和 $\bar{\sigma}_{有效}$, 使满足下面的条件,



$$\bar{\sigma} = \int_{E_T}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE = \sigma_{有效} \int_{E_{有效}}^{\infty} \phi(E) dE, \quad (23)$$

这样的理想化与实际情况就是等效的。

问题是 $\phi(E)$ 还未知,只能用与之相近的已知谱 $\phi_0(E)$ 作近似代入(23)式,得

$$\bar{\sigma} = \int_{E_T}^{\infty} \sigma(E) \phi_0(E) dE = \sigma_{有效} \int_{E_{有效}}^{\infty} \phi_0(E) dE. \quad (24)$$

(24)式中有两个未知数 $\sigma_{有效}$ 和 $E_{有效}$, 可以适当地调节。通常是选取截面-能量关系曲线的平坦部分的截面值作为 $\sigma_{有效}$, 然后由(24)式选定 $E_{有效}$ 。

在实际工作中测量反应堆中子谱时,常以 U^{235} 裂变谱作为 $\phi_0(E)$, 这样定出的 $E_{有效}$ 叫做裂变谱有效阈。指示箔受堆谱中子照射后测量放射性,由活化方程

$$A_0 = N \Phi \sigma_{有效} \int_{E_{有效}}^{\infty} \phi(E) dE \quad (25)$$

得到有效阈以上的中子通量。用一系列有效阈各不相同的指示箔即得中子积分谱,微分后得 $\phi(E)$ 。

有效阈法的主要缺点是当未知谱 $\phi(E)$ 与已知谱 $\phi_0(E)$ 相差较大时,引进的误差大。有效阈法的另一缺点是,通常 $E_{有效}$ 都远大于 E_T , 对于低能区中子谱的测量不利。

(2) **阈上平均截面法** 定义阈上平均截面为

$$\bar{\sigma}_0 = \frac{\int_{E_T}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE}{\int_{E_T}^{\infty} \phi(E) dE}, \quad (26)$$

则有

$$\frac{\bar{\sigma}}{\bar{\sigma}_0} = \int_{E_T}^{\infty} \phi(E) dE. \quad (27)$$

对于未知谱 $\phi(E)$, 选取一个近似的已知谱 $\phi_1(E)$, 代入(26)式计算得 $\bar{\sigma}_0$ 。再由活化放射性求出 $\bar{\sigma}$ 。以 $\bar{\sigma}_0, \bar{\sigma}$ 代入(27)式即得阈能 E_T 以上的中子通量。用一系列 E_T 不同的指示箔即得中子积分谱,微分后得 $\phi(E)$ 。 $\phi_1(E)$ 可由理论估计,也可以由以前所述各种方法求得。为了得到更精确结果,还可以逐次近似。用这种方法可以避免有效阈法的缺点。问题是一级近似谱 $\phi_1(E)$ 要选得好,否则计算量是很大的。

四、实验方法

1. 指示箔的选择

活化法所用的指示箔应满足下列条件:

- (1) 所利用的各个核反应的截面-能量关系必须是互相独立的。
- (2) 所利用的核反应应该具有测得较准确的,而且较完整的截面-能量关系曲线。
- (3) 各核反应的灵敏能区适当地分布在待测谱的各能区中。通常,10兆电子伏以上的用 $(n, 2n)$ 反应,几个兆电子伏的用 (n, α) 及 (n, p) 反应,1兆电子伏左右的用 (n, n') 及 (n, f) 反应,0.1—0.2兆电子伏的可用 (n, γ) 反应(此时必须没有慢中子干扰)。
- (4) 反应产物半衰期应该适中,最好是在十几分钟到十几小时左右。否则放射性测量不易准确且不方便。
- (5) 在所用的指示箔内应该没有无法分辨的竞争活化。由于一种核可能有几种反应,而且,一个指示箔内也可能有几种元素或同位素,竞争活化是难免的。通常可以根据放射性的类型(β 或 γ)、半衰期、射线能量的差别来分开,但若差别不大,就不易分辨了。
- (6) 所用活化反应的截面应较大,所用同位素丰度应尽量高,以便在中子通量较低的情况下应用。而且,这时也易与竞争活化分开。
- (7) 所用指示箔应该有较稳定的物理、化学性质。
- (8) 指示箔的大小和厚度,首先应适应工作环境的要求,并避免使中子谱畸变。

2. 中子的照射

用中子照射使指示箔活化时,应注意下列条件:

- (1) 几个指示箔受照射的条件应尽可能相同。
- (2) 中子通量应尽可能稳定。
- (3) 照射的时间应适当调节,使得有用的活化放射性较强而竞争活化较弱。
- (4) 根据需要加适当的屏蔽层,例如包镉屏蔽掉热中子。利用 (n, γ) 反应时包同样材料的箔以减少共振中子。若工作环境中可能有放射性沾污,则应包适当的保护层以免不必要的放射性干扰。

3. 放射性的测量

在活化法中,通常是测量出活化产物的放射性衰变曲线,然后计算出饱和放射性或饱和计数率。今就测量方法和数据处理方法分别讨论如下。

(1) **测量方法** 与普通放射源的测量一样,需要绝对测量时,用 β - γ 符合法或 4π 计数管测量。

比较简单的方法是用已知探测效率 ϵ 的计数装置测量。例如,用已知通量和已知其核反应截面的中子照射指示箔,此时放射性可以计算得出,用测得的计数率与之相比即得 ϵ 值。对于阈反应,可用14兆电子伏的中子或裂变谱中子校正;对于 (n, γ) 反应,可用热中子或裂变谱中子校正。

在某些工作中,例如以 U^{235} 裂变谱作标准来测定其他裂变谱的工作中^[1,12],只需测量计数率,探测效率因子在相对比较中都消去了。

(2) **数据处理方法**^[33-36] 今就计数率的修正、单一成分衰变情况以及多成分衰变情况下

的数据处理讨论如下。

(i) 计数率的修正 我们只讨论简单的相对测量问题。在 $(t_i - \frac{\Delta t_i}{2}, t_i + \frac{\Delta t_i}{2})$ 时间间隔内测到的指示管的计数 $n(t_i)$ 与 t_i 时的放射性 $A(t_i)$ 有如下的关系^[2]：

$$A(t_i) = \frac{1}{\epsilon P_i} \left[\frac{K_i n(t_i)}{\Delta t_i} - \frac{n_b}{\Delta t_b} \right], \quad (28)$$

其中 ϵ 为计数装置的效率(包括计数管的探测效率、所张的立体角以及放射源可能存在的分支衰变); P_i 为当 Δt_i 与半衰期可比时作的修正(通常, $\lambda \Delta t_i \ll 1$, $P_i \approx 1$, 不必修正); K_i 为计数装置死时间的修正; n_b 为在 Δt_b 时间间隔内所测得的本底计数。

(ii) 单一成分衰变情况下数据的处理 如果竞争活化都可以显著分开, 则衰变曲线是由单一衰变常数 λ 决定的指数曲线, 在对数坐标纸上成一直线。即

$$\ln A(t) = \ln A - \lambda t; \quad (29)$$

或

$$\ln A'(t) = \ln A' - \lambda t, \quad (30)$$

式中 A' 和 A 分别表示停止照射时的计数率和放射性。

λ 可以引用文献上的数据或由自己多次测量的衰变曲线用最小二乘法定出。测未知谱时, 通常取十个左右的 t_i 值, 测量 $A'(t_i)$ 。数据处理问题实质上就是用这些实验值, 在已知斜率的条件下, 解出最佳的直线方程与纵坐标的截距。

通常可以由

$$A'_{0i} = \frac{e^{\lambda t_i}}{[1 - e^{-\lambda T}]} A'(t_i)$$

算得与各实验值 $A'(t_i)$ 相应的饱和计数率 A'_{0i} , 再取其加权平均值 A'_0 ：

$$A'_0 = \frac{\sum_{i=1}^m W_i A'_{0i}}{\sum_{i=1}^m W_i}, \quad (31)$$

其中 W_i 为 A'_{0i} 的权重, 与其误差的平方成反比, 可令

$$W_i = e^{-2\lambda t_i} \left[\frac{K_i^2 n(t_i)}{\Delta t_i^2} + \frac{n_b}{\Delta t_b^2} \right]^{-1}, \quad (32)$$

通常 $\frac{n_b}{\Delta t_b^2}$ 可以忽略不计。

A'_0 的标准误差为

$$S\{A'_0\} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^m W_i (A'_{0i} - A'_0)^2}{(m-1) \sum_{i=1}^m W_i}}. \quad (33)$$

(iii) 多成分衰变情况下的数据的处理 设有两个衰变成分, 其衰变常数分别已知为 λ_1, λ_2 ; 其饱和计数率分别为 A'_{01} 及 A'_{02} , 则

$$A'_{01} = \frac{\left(\sum_i P_i b_i^2 \right) \left(\sum_i P_i a_i A'_i \right) - \left(\sum_i P_i b_i a_i \right) \left(\sum_i P_i b_i A'_i \right)}{\left(\sum_i P_i a_i^2 \right) \left(\sum_i P_i b_i^2 \right) - \left(\sum_i P_i a_i b_i \right)^2},$$

$$A'_{02} = \frac{\left(\sum_i P_i a_i^2 \right) \left(\sum_i P_i b_i A'_i \right) - \left(\sum_i P_i a_i b_i \right) \left(\sum_i P_i a_i A'_i \right)}{\left(\sum_i P_i a_i^2 \right) \left(\sum_i P_i b_i^2 \right) - \left(\sum_i P_i a_i b_i \right)^2} \quad (34)$$

其中 $a_i = e^{-\lambda t_i}$; $b_i = e^{-\lambda' t_i}$; $A'_i = A'(t_i)$; P_i 为 A'_i 的权, A'_{01} 和 A'_{02} 的标准誤差分别为

$$S\{A'_{01}\} = \frac{E}{\sqrt{q_1}}, \quad S\{A'_{02}\} = \frac{E}{\sqrt{q_2}} \quad (35)$$

其中

$$q_1 = \frac{\left(\sum_i P_i a_i^2 \right) \left(\sum_i P_i b_i^2 \right) - \left(\sum_i P_i a_i b_i \right)^2}{\sum_i P_i b_i^2}$$

$$q_2 = \frac{\left(\sum_i P_i a_i^2 \right) \left(\sum_i P_i b_i^2 \right) - \left(\sum_i P_i a_i b_i \right)^2}{\sum_i P_i a_i^2}$$

E 由衰变曲线上各实验值与计算值的殘差平方和求出, 即

$$E = \sqrt{\frac{\sum_i P_i [A'_i - (A_{01} e^{-\lambda t_i} + A_{02} e^{-\lambda' t_i})]^2}{(m-2) \sum_i P_i}}$$

更多成分的衰变曲线, 原则上也可以类似地解出, 但计算较复杂, 应尽量避免。

五、总 結

用活化法测量快中子能谱还只有十年左右的历史。近几年来进展比较显著。主要的进展可以概括为两方面: 进展之一是扩展了可以测量的能区, 利用 (n, n') , (n, f) 反应可以使测量能区的下限从 2—3 兆电子伏扩展到几百千电子伏。在特殊条件下, 用 (n, γ) 反应可以扩展到 100 千电子伏左右。进展之二是发展了活化方程的各种近似解法, 提高了所得谱形的精确度。

但活化法还有其局限性。基本局限性是对于复杂的能谱, 誤差较大。因为存在一个基本矛盾: 要对复杂能谱有较好的近似就需要有许多个指示箔, 而所用的指示箔越多, 則誤差的积累越大。

在现阶段, 誤差大的缺点更是突出。因为目前大多数活化反应的截面-能量关系曲线都不够精确或殘缺不全, 而且活化放射性的测量誤差较大, 通常在 5% 以上。[同样利用 (n, f) 反应, 若用裂变室测反应数目就可以准到 1—2%.] 而在低能区, 由于没有合适的反应, 誤差更大。在一定条件下虽然可以用 (n, γ) 反应, 但由于它的截面-能量关系的独立性不如有关反应好, 故誤差较大。另一个局限性是对于通量较低的谱还不能测量。若测反应产物的 β 放射性, 当中子通量小于 10^6 中子/秒·厘米² 时已难以准确测量。若测反应产物的 γ 放射性, 由于指示箔可以加厚, 故可在较低的中子通量下测量, 但中子通量也总在 10^4 中子/秒·厘米² 以上。

今后, 活化法的进一步发展将取决于更准确的截面-能量关系曲线的测量以及更准确、更灵敏的放射性测量方法的发展。

最后我们对何泽慧先生的指导和关心表示深切的谢意。

附录 常用活化反应的特性

核反应	反应产物半衰期	反应产物放射性	实验阈值 ^[87] E_T , 兆电子伏	裂变谱有效阈及有效截面**	
				有效阈 $E_{有效}$, 兆电子伏	有效截面 $\sigma_{有效}$, 毫靶
$Au^{197}(n,\gamma)Au^{198}$	2.7天	β, γ	—	—	—
$As^{75}(n,\gamma)As^{76}$	26.5小时	β, γ	—	—	—
$Np^{237}(n,f)$	—	测 γ	~0.2	0.80	1550
$U^{235}(n,f)$	*	测 γ	0.6	1.67	658
$In^{115}(n,n')In^{115m}$	4.5小时	γ	0.5	1.5	250
$Hg^{199}(n,n')Hg^{199m}$	44分	γ	0.4	1.9	120
$P^{31}(n,p)Si^{31}$	157分	β	2.0	2.71	118.9
$S^{32}(n,p)P^{32}$	14.3天	β	1.9	2.78	272
$Al^{27}(n,p)Mg^{27}$	9.5分	β, γ	2.8	4.67	55.7
$Si^{28}(n,p)Al^{28}$	2.3分	β, γ	4.8	5.5	80
$Fe^{54}(n,p)Mn^{54}$	155分	β, γ	4.9	6.33	52.4
$Al^{27}(n,\alpha)Na^{24}$	14.9小时	β, γ	6.0	7.25	58.7
$Cu^{63}(n,2n)Cu^{62}$	9.7分	β, γ	12.0	12.77	693

* 裂变产物成分复杂,测量时应由实验得到。在取适当的脉冲幅度甄别后,在停止照射后3—20小时,计数率 $\propto t^{-1.50161}$ 。

** 主要引自文献[1],其他的文献[2,7,15]作为补充。

参 考 文 献

- [1] J. Grund, A. Usner, *Nucl. Sci. Eng.*, 8, 598 (1960).
- [2] H. B. Звонов и др., *Атом. энер.*, 12, 116 (1962).
- [3] W. Köhler, *Zeit. Natur.*, 16, 936 (1961).
- [4] J. B. Trice, *Nucleonics*, 16, No. 7, 81 (1958).
- [5] A. И. Лейпунский и др., PUAЕ, Geneva, 1958, Vol. 12, p. 3.
- [6] R. J. Grader, *RSI*, 32, 933 (1961).
- [7] J. B. Trice, CF-55-10-140 (1955).
- [8] С. П. Белов и др., *Атом. энер.*, 6, 663 (1959).
- [9] Б. А. Дулин и др., *Атом. энер.*, 9, 318 (1960).
- [10] В. П. Ковалев и др., *ЖЭТФ*, 33, 1069 (1957).
- [11] J. Grundl, Neuer, *Bull. Amer. Phys. Soc.*, Ser. II, 1, 95 (1956).
- [12] 胡逸文、梅启庸、刘天柱, 原子能科学技术, 第4期, 368 (1964).
- [13] G. S. Hurst et al., *RSI*, 27, 153 (1956).
- [14] H. Ager-Hanssen, J. M. Dødehein, PUAЕ, Vol. 14, p. 455 (1958).
- [15] T. O. Parsell, R. L. Heath, *Nucl. Sci. Eng.*, 10, 308 (1961).
- [16] P. M. Uthe, WADC-TR-57-3 (1957).
- [17] В. И. 斯米尔诺夫, 高等数学教程, 二卷二分册第六章及四卷一分册第一章, 高等教育出版社, 1958.
- [18] J. B. Trice, APEX-408 (1957).
- [19] W. D. Lanning, K. W. Brown, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 4, No. 2, 267 (1961).
- [20] J. Moteff, *Nucleonics*, 20, No. 12, 56 (1962).
- [21] G. J. Fisher, *Nucl. Sci. Eng.*, 7, 355 (1960).
- [22] Beets, *Reactor Sci. Tech.*, 16, 221 (1962).
- [23] C. Byers, *Nucl. Sci. Eng.*, 8, 608 (1960).
- [24] L. B. Engle, *Nucl. Sci. Eng.*, 8, 543 (1960).
- [25] D. J. Hughes, Suppl. No. 1 to BNL-325 2-d ed., 1960.
- [26] W. D. Allen, Progress in nuclear Energy, Ser. 1, vol. II, 1958, p. 1.
- [27] D. J. Hughes, Suppl. No. 1 to BNL-325 2nd ed., 1960.
(A. E. Johnsrud 和 Bilpuch 等人的平均值.)
- [28] I. Bergqvist, *Arkiv för Fysik*, 23, 425 (1963).
- [29] Gibbons, *Bull. Am. Phys. Soc.*, Ser. II, 4, 385 (1959).
- [30] R. Dierckx, *Nucl. Instr.*, 15, 355 (1962).
- [31] D. J. Hughes, Pile neutron research, Ch. 4, Addison-Wesley Publish Comp., 1953.

- [32] R. C. Barrall et al., *Nucleonics*, **20**, No. 7, 58 (1962).
[33] 张启人, 測定值計算基础, 科学出版社, 1958.
[34] A. F. Jaffey, *Nucleonics*, **18**, No. 11, 160 (1960).
[35] D. J. Behrens, AERE, T/R-629 (1951).
[36] В. И. Гольдинский и др., Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц, ГИФЛ, Москва, 1959.
[37] D. J. Hughes, BNL-325 (1958).

(編輯部收稿日期 1963 年 10 月 8 日)

www.cnki.net