

反应堆中子活化分析数据自动处理系统

阿景焯, 陈 达, 屠 荆

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710024)

摘要: 介绍了一个在微机上建立的反应堆中子活化分析数据自动处理系统。它具有放射性核素的自动识别、反应堆参数 f 和 β 值的计算、实验测定 K_0 值、元素含量的定量计算、核素数据管理、参数选取建议等功能。元素分析方法包括绝对法、相对法和 K_0 值法。利用该系统进行了金、钨和岩石标准物质 (GBW07107) 的活化分析, 计算了中国原子能科学研究院微型反应堆的 f 和 β 值参数, 分析了岩石样品中的元素含量, 取得了较满意的结果。

关键词: 中子活化分析; 数据自动处理系统; 核素识别

中图分类号: TL32 文献标识码: A 文章编号: 1000-6931(2000)05-0415-07

中子活化分析是在西北核技术研究所的西安脉冲堆上开展的一项重要工作。由于手工分析存在工作强度高、效率低、容易出错等缺点, 不适于大批量样品的分析, 因此, 本工作在堆上建立一套快速、高效的反应堆中子活化分析数据自动处理系统^[1, 2]。

1 分析原理

1.1 反应堆中子活化分析公式和 K_0 值方法^[3~9]

设同位素的丰度为 ω 、相对原子质量 A_r 、质量为 m 的样品, 在堆内照射 T 时间后出堆冷却 t 时间, 在 t_m 收集时间内, 能量为 E 的 γ 射线全能峰的平均计数率 A_p 为:

$$A_p = \frac{m}{A_r} N_A (\sigma_{th} \phi_0 + \sigma_e I_0) (1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda t} \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m} \epsilon_p r_d$$

其中: σ_0 、 I_0 为热中子截面和共振积分截面; ϵ_p 为全能峰效率; λ 为衰变常量; ϕ_{th} 及 ϕ_e 为热中子及超热中子通量密度; r_d 为 γ 射线辐射几率; N_A 为阿佛加德罗常数。

1) 绝对活化分析方法

$$m = A_p \cdot A_r \cdot \left[N_0 (\sigma_{th} \phi_0 + \sigma_e I_0) (1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda t} \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m} \epsilon_p r_d \right]^{-1}$$

2) 相对活化分析方法

$$m = \frac{A_p}{A_{p0}} \cdot m_0$$

收稿日期: 1999-05-05; 修回日期: 2000-01-26

作者简介: 阿景焯 (1971—), 男, 陕西横山人, 研究实习员, 硕士, 核电子学与核探测技术专业

式中: m_0 为标准元素的质量; A_{p0} 为标准元素活化后生成放射性核素的峰测量计数率; A_p 为样品中待测元素活化后生成放射性核素的相应峰测量计数率; m 为样品中待测元素的质量。

3) K_0 值方法

设 $A_{sp} = \frac{A_p}{mSDC}$, $S = 1 - e^{-\lambda t}$, $D = e^{-\lambda t}$, $C = \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{t_m}$, 选用 Au 作为标准元素(用 * 表示), 并令 $K_0 = \frac{r_{d0} A_r^*}{r_{d0}^* A_r^*}$, $f = \frac{\lambda_{th}}{\lambda_e}$, $Q_0 = I_0 / I_0^*$, 得 K_0 值法求取元素含量的公式为:

$$m = \frac{A_p}{SDCA_{sp}^*} \cdot \frac{1}{K_0} \cdot \frac{1 + Q_0^*/f}{1 + Q_0/f} \cdot \frac{p^*}{p}$$

实验测定 K_0 值公式为: $K_0 = \frac{A_{sp}}{A_{sp}^*} \cdot \frac{f + Q_0^*}{f + Q_0} \cdot \frac{p^*}{p}$

1.2 f 值的测定^[10,11]

f 值为反应堆热中子通量密度与超热中子通量密度的比值。可利用 $^{94}\text{Zr}(n, \gamma)^{95}\text{Zr}$ 、 $^{96}\text{Zr}(n, \gamma)^{97}\text{Zr}$ 反应来求取 f 值。其公式为:

$$f = \frac{\frac{K_0(95)}{K_0(97)} \cdot \frac{p_{95}}{p_{97}} \cdot Q_{0,95}(\gamma) - \frac{A_{sp,95}}{A_{sp,97}} \cdot Q_{0,97}(\gamma)}{\frac{A_{sp,95}}{A_{sp,97}} - \frac{K_0(95)}{K_0(97)} \cdot \frac{p_{95}}{p_{97}}}$$

上式中包含了对超热中子通量密度的非 $1/E$ 谱的修正, 即认为该通量密度分布为 $1/E^{(1+\alpha)}$, 故用 $Q_0(\alpha)$ 代替 Q_0 。若设 E_r 为活化核素的共振能量, 则二者关系为:

$$Q_0(\alpha) = (Q_0 - 0.429) \cdot E_r^{-\alpha} + 0.429 / [(2 + \alpha)0.55]^{-1}$$

1.3 α 值的测定^[12~15]

α 值为反应堆超热中子通量密度的非 $1/E$ 谱的分布修正因子, 即认为超热中子通量密度服从 $1/E^{(1+\alpha)}$ 分布。为避免包络探测, 采用以 ^{94}Zr 、 ^{96}Zr 和 ^{197}Au 为探测器的裸探测器法来测定 α 值。求解方程为:

$$(a - b) q_{0,1}(\alpha) - a q_{0,2}(\alpha) + b q_{0,3}(\alpha) = 0$$

其中:

$$a = [1 - \frac{A_{sp,2}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{K_0(1)}{K_0(2)} \cdot \frac{p_{1,1}}{p_{1,2}}]^{-1};$$

$$b = [1 - \frac{A_{sp,3}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{K_0(1)}{K_0(3)} \cdot \frac{p_{1,1}}{p_{1,3}}]^{-1};$$

$$q_0(\alpha) = (Q_0 - 0.429) \cdot E_r^{-\alpha}.$$

2 系统框架

该系统是采用 C 语言编制、在 DOS 环境下运行的多模块集成系统。它基于常规谱处理结果, 即输入数据包含活化测量谱的峰能量、峰面积和面积误差。系统采用下拉式菜单。结构框图示于图 1。

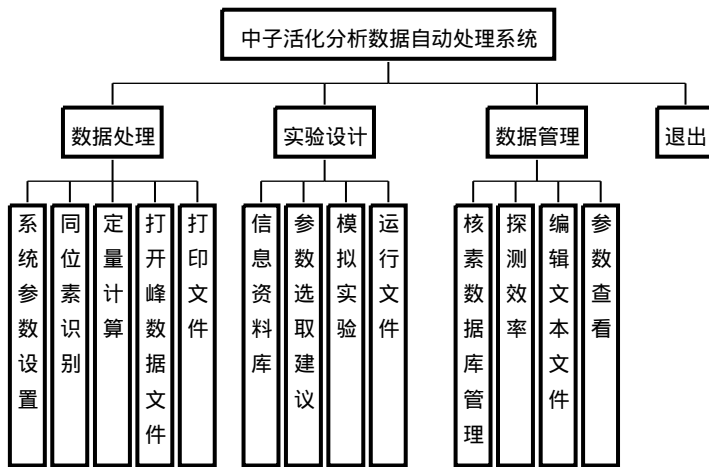


图1 系统框图

Fig. 1 System frame

3 系统功能

3.1 同位素识别^[16,17]

能自动读入解谱结果,具有核素识别、分解重峰及消除干扰能力。它包含3个原则。

1) 对于511 keV和可能的单、双逃逸峰,系统只给出可能结果。

2) 一般规则基于放射性同位素的特征射线。先以谱中的峰能量为关键字在核素库中寻找对应的放射性核素,然后再以该放射性核素为关键字在谱中寻找该核素其它射线对应的峰能量,从而确认该放射性核素的存在。识别时,系统考虑了峰位中心能量的漂移、强峰对弱峰的干扰和湮没、高本底对弱峰的湮没等影响因素。

3) 如果某一峰能量对应几个核素,则可用其中一个核素的其它单峰面积,并考虑探测效率和分支比的影响,反推出该核素在重峰中的面积来进行剥谱分解重峰。

3.2 定量计算

定量计算包括元素含量 w 、 f 值和 λ 值,实验法测定 K_0 值等的计算,并进行不确定度分析,给出结果报告。计算所用系统参数和分析方法由系统参数设置确定。计算时以放射性核素名为关键字在核素库中找出各参数,根据核素参数情况选取适当的计算公式。元素含量的计算方法有绝对法、相对法和 K_0 值法。同一元素的不同特征峰所计算的结果可能不尽相同,一般取不确定度小的数据作为最后结果,其中独立强峰优先。

3.3 信息资料库

建立一个包含有样品名称、样品质量、样品中主要元素及其大致含量以及建议的几组辐照时间、冷却时间和测量时间等信息的资料数据库,为参数选取建议和模拟实验服务。该参数可以是专家的经验数据,也可以是以前测量的类似样品的实践经验数据。

3.4 参数选取建议

参数选取建议由以下3个独立过程组成。

1) 基于以前实验经验、专家经验以及借鉴别人的经验来选取参数。信息库中将保存有这些经验数据,可通过判断样品名来直接给出这些经验参数以作为建议。

2) 根据待测样品所含的元素情况,按半衰期大小将其所对应的活化后生成的放射性核素进行排序并显示,根据半衰期分布情况,进行人为判断,得出大概预估时间参数。

3) 根据预估时间参数进行模拟实验,并不断调整时间参数和样品质量参数,得出最佳模拟谱对应的最佳时间参数取值和样品质量取值,以此作为建议值。

3.5 模拟实验

根据样品质量、样品中大致元素及其含量、系统参数和一定的时间参数来模拟实际的活化测量谱,从而对实验结果进行预测,并通过模拟实验来确定探测限、活化分析参数和干扰情况。模拟实验通过调用模拟程序来实现。

3.6 核素数据库管理^[18~20]

核素数据库管理系统所生成的数据库为同位素识别和定量计算服务。库中包含的信息有:放射性核素名、对应被活化的稳定核素名及其同位素丰度、元素原子量、核素的等效共振能量、射线能量、射线分支比、 K_0 值、半衰期,生成该放射性核素的热中子活化截面、共振积分截面及 Q_0 值和它们的不确定度等。对于母子体衰变,库中还包含有衰变方式和衰变参数等信息。核素库以放射性核素名为关键字进行查询。

3.7 探测效率参数输入功能

峰探测效率曲线由外部程序刻度,将曲线形式和系数输入本系统,并将参数存入文本文件,供系统调用及更新。该系统支持的几种探测效率曲线形式为:

1) 对于能量大于 2 MeV 的射线,峰探测效率曲线是在半对数坐标上的直线,其公式为 $\ln = a_1 + a_2 E$;

2) 对于小于 2 MeV 的射线,既可采用分两段拟合,也可用一条多项式(六项式)曲线拟合。分段拟合法的曲线可以线性拟合,也可以用二次曲线拟合。

线性拟合:

$$\ln = a_1 + a_2 \ln E;$$

二次曲线拟合:

$$\ln = a_1 + a_2 \ln E + a_3 \ln^2 E$$

六项式拟合:

$$\ln = \sum_{i=1}^6 (a_i E^{2-i})$$

4 实验结果

利用该分析系统进行了 Au、Zr 和岩石标准物质 (GBW07107) 的反应堆中子活化分析实验。辐照所用的反应堆为中国原子能科学研究院反应堆工程设计研究所的微型反应堆,该堆跑兔辐照管处的中子总通量密度约 $8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。Au、Zr 及岩石标准物质的质量分别为 0.024 20 g、2.707 μg 和 0.200 69 g。样品辐照时间为 10 h。

跑兔辐照位置处的超热中子通量密度的非 $1/E$ 修正因子值、热中子通量密度值及 f 值的实验测量计算结果为 $\beta = -0.014$ (62%)、 $\rho_{\text{th}} = 7.61 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (1.9%)、 $f = 21.6$ (3.1%)。⁹⁵Zr 和 ⁹⁷Zr 核素各能量的 K_0 值实验测量结果列于表 1。岩石样品 GBW07107 的元素含量分析结果列于表 2。

表 1 K_0 值的实验测量结果

Table 1 The experimental measurement results of K_0 values

核素	射线能量/ keV	本实验测定的 K_0 值	文献中 K_0 值 ^[18~20]
⁹⁵ Zr	724.2	9.29×10^{-5} (1.9 %)	9.321×10^{-5} (0.6 %)
⁹⁵ Zr	756.7	1.13×10^{-4} (1.9 %)	1.149×10^{-4} (0.6 %)
⁹⁵ Nb	765.8	2.21×10^{-6} (2.3 %)	2.27×10^{-6} (0.9 %)
⁹⁷ Zr	254.2	2.1×10^{-7} (8 %)	1.91×10^{-7} (-)
⁹⁷ Zr	355.4	3.1×10^{-7} (4 %)	3.06×10^{-7} (-)
⁹⁷ Zr	507.7	7.2×10^{-7} (4 %)	7.11×10^{-7} (-)
⁹⁷ Zr	602.4	2.1×10^{-7} (10 %)	1.99×10^{-7} (-)
⁹⁷ Zr	703.7	1.6×10^{-7} (9 %)	1.42×10^{-7} (-)
⁹⁷ Zr	1 148.0	3.6×10^{-7} (4 %)	3.57×10^{-7} (-)
^{97m} Nb	743.3	1.27×10^{-5} (2.6 %)	1.296×10^{-5} (0.9 %)
⁹⁷ Nb	657.9	1.29×10^{-5} (2.6 %)	1.304×10^{-5} (0.9 %)

表 2 岩石样品的分析结果($\delta = -0.014$)

Table 2 The analysis results of rock sample($\delta = -0.014$)

元素	分析核素	分析能量/ keV	K_0 值法分析		标称元素 含量
			绝对法分析 得元素含量	得元素含量	
Sm	¹⁵³ Sm	103.2	8.0 ± 0.4	7.9 ± 0.3	8.4 ± 0.6
Ce	¹⁴¹ Ce	145.4	112 ± 6	110 ± 6	109 ± 12
Th	²³³ Pa	312	12.7 ± 0.7	12.6 ± 0.7	12.8 ± 1.4
Yb	¹⁷⁵ Yb	396.3	2.8 ± 0.6	2.8 ± 0.4	2.6 ± 0.4
La	¹⁴⁰ La	1 596.5	58.2 ± 1.3	57.6 ± 1.3	62 ± 5
Cs	¹³⁴ Cs	604.7	13.8 ± 0.7	13.5 ± 0.7	14 ± 2
Sc	⁴⁶ Sc	1 120.5	17.9 ± 0.4	17.8 ± 0.4	18.5 ± 1.8
Fe	⁵⁹ Fe	1 099.2	$5.1 \pm 0.3(10^{-2})$	$5.02 \pm 0.13(10^{-2})$	$5.00 \pm 0.09(10^{-2})$
Na	²⁴ Na	1 368.6	$2.39 \pm 0.05(10^{-3})$	$2.37 \pm 0.05(10^{-3})$	$2.59 \pm 0.22(10^{-3})$
K	⁴² K	1 524.7	$3.47 \pm 0.16(10^{-2})$	$3.39 \pm 0.10(10^{-2})$	$3.45 \pm 0.12(10^{-2})$
Co	⁶⁰ Co	1 332.5	21.1 ± 1.0	20.9 ± 1.0	21 ± 2
Hf	¹⁸¹ Hf	482.2	2.77 ± 0.11	2.76 ± 0.11	2.9 ± 0.4
Rb	⁸⁶ Rb	1 076.6	221 ± 7	219 ± 7	205 ± 12
Nd	¹⁴⁷ Nd	91.1	46 ± 3	45.1 ± 2.6	48 ± 4
Ba	¹³¹ Ba	496.3	447 ± 56	441 ± 55	450 ± 45
Tb	¹⁶⁰ Tb	879.4	0.99 ± 0.05	0.99 ± 0.05	1.02 ± 0.11
Ta	¹⁸² Ta	1 221.4	0.90 ± 0.06	0.89 ± 0.06	1.0 ± 0.4

5 结论

由以上结果可看出:该系统的实验分析结果与标称值或文献值在不确定度范围内一致, K_0 值法分析元素含量的精度优于绝对法。由于受方法和核参数精度的限制, 值的不确定度较大,其主要原因是部分参数的不确定度传递因子较大,有的甚至达到 30 左右,需要在分析方法上加以改进。文献中的 K_0 值是根据大量实验、大量资料编评而得,故其精度较高;本实验

中由于是单次测量,且样品计数不是很高,故 K_0 值的精度稍差。

该分析系统是一个简便、快速的数据处理系统,对于一个有 150 多条能量峰的测量解谱结果,从核素识别到样品中元素含量的计算,所用时间不到 1 min。与手工分析相比,大大提高了分析速度,克服了手工分析工作强度大、容易出错等缺点。但该系统仍需不断完善,特别是同位素识别模块,其识别规则还需调整、改进,以达到完全智能化。

参考文献:

- [1] Ma Jianguo, Sun Jianguo. An Expert System for Neutron Activation Analysis[J]. Nucl Sci Tech, 1991, 2(2):79~84.
- [2] Zkovsky L, Pierre JST. Computer Program for Neutron Activation Analysis With the Slowpoke Reactor[J]. J Radioanal Chem, 1979, 54(1~2):391~394.
- [3] 陈 达,黎荫铭,张泽波,等. 19 种核素的复合参数 K_0 值的测定[J]. 核化学与放射化学,1988,10(2):113~117.
- [4] 霍斯特,德索埃特. 中子活化分析[M]. 北京:原子能出版社,1981. 8~60.
- [5] 柴之芳. 活化分析基础[M]. 北京:原子能出版社,1982. 21~45.
- [6] Ni Bangfa, Yu Zhangqiu, He Gaokui, et al. NAA of Two Deep Sea Manganese Nodule RMs for Multielements[J]. J Radioanal Chem, 1997, 215(1):77~79.
- [7] Simonits A, Moens L, de Corte F, et al. K_0 -measurements and Related Nuclear Data Compilation for (n,) Reactor Neutron Activation Analysis, Part [J]. J Radioanal Chem, 1980, 60:461~516.
- [8] Moens L, de Corte F, de Wispelaere A, et al. K_0 -measurements and Related Nuclear Data Compilation for (n,) Reactor Neutron Activation Analysis, Part [J]. J Radioanal Chem, 1984, 82(2):385~452.
- [9] Simonits A, de Corte F, Moens L, et al. Status and Recent Developments in the K_0 -standardization Method [J]. J Radioanal Chem, 1982, 72(1~2):209~230.
- [10] Simonits A, de Corte F, Hoste J. Zirconium as a Multisotopic Flux Ratio Monitor and a Single Comparator in Reactor-neutron Activation Analysis[J]. J Radioanal Chem, 1976, 31:467~486.
- [11] de Corte F, Jovanovic S, Simonits A, et al. Determination of the Essential Flux Parameters for (n,) Activation Analysis: a New Methodology, Applied to Reactor Thetis (Belgium) [J]. Suppl to Atomkernenergie Kerntechnik, 1984, 44:641~647.
- [12] de Corte F, Moens L, Sordo K, et al. Modification and Generalization of Some Methods to Improve the Accuracy of β -determination in the $1/E^{1+}$ Epithermal Neutron Spectrum[J]. J Radioanal Chem, 1979, 52(2):305~316.
- [13] de Corte F, Sordo K, Moens L, et al. The Accuracy and Precision of the Experimental β -determination in the $1/E^{1+}$ Epithermal Reactor-neutron Spectrum[J]. J Radioanal Chem, 1981, 62(1~2):209~255.
- [14] de Corte F, Moens L, Simonits A, et al. Instantaneous β -determination Without Cd-cover in the $1/E^{1+}$ Epithermal Neutron Spectrum[J]. J Radioanal Chem, 1979, 52(2):295~304.
- [15] de Corte F, Moens L, Simonits A, et al. The Effect of the Epithermal Neutron Flux Distribution on the Accuracy of Absolute and Comparator Standardization Methods in (n,) Activation Analysis[J]. J Radioanal Chem, 1982, 72(1~2):275~286.
- [16] Aarnio PA, Hakulinen TT, Routti JT. Expert System for Nuclide Identification and Interpretation of Gamma-spectrum Analysis[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1992, 160(1):245~252.
- [17] Aarnio PA, Hakulinen TT, Routti JT. Expert System for Nuclide Identification in Gamma Spectrum Analysis [J]. J Radioanal Nucl Chem, 1995, 193(2):219~227.

- [18] de Corte F, Moens L, Simonits A, et al. A Compilation of $K_{0, \text{Au}}$ -factors and Related Nuclear Data for 112 Radionuclides of Interest in NAA: INW/ KFKI Interim Report [R]. [s.l.]:[s. n.], 1986.
- [19] de Corte F, Simonits A, de Wispelaere A, et al. K_0 -measurements and Related Nuclear Data Compilation for (n, γ) Reactor Neutron Activation Analysis, Part a: Experimental[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1989, 133(1):3~41.
- [20] de Corte F, Simonits A. K_0 -measurements and Related Nuclear Data Compilation for (n, γ) Reactor Neutron Activation Analysis, Part b: Tabulation[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1989, 133(1):43~130.

An Automatic Data Processing System for Reactor Neutron Activation Analysis

A Jing-ye, CHEN Da, TU Jing

(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract: An automatic data processing system for reactor neutron activation analysis is designed for personal computer in DOS environment. The system has functions of radionuclide identification, f and β calculation, K_0 value measurement, quantitative calculation of elemental concentrations, nuclides' data management and experiment design, etc. The analytical methods used in this system include absolute method, relative method and K_0 -method. Using this system, three gamma ray spectra for NAA of Au, Zr samples and rock standard reference material (GBW07107) are analyzed. The f and β values at the irradiation site in the miniature neutron source reactor of China Institute of Atomic Energy are calculated. The analysis results are in agreement with the standard results in the scope of uncertainties.

Key words: NAA; automatic data processing system; radionuclide identification