

高能 γ 射线标准源

石宗仁, 徐 鹏, 李立华

(中国原子能科学研究院 放射性计量测试部, 北京 102413)

摘要: 文章介绍 γ 射线能量大于 1.5 MeV 标准源的类型及其特性, 特别是核反应高能 γ 射线源。本工作主要研究高能 γ 射线能量和发射概率的确定及多普勒展宽效应的起因及其对效率校准带来的影响。

关键词: 热中子辐射俘获反应; 质子共振辐射俘获反应; 多普勒效应; 瞬发 γ 射线; 标准源

中图分类号: O614.35; TL816.3 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-6931(2008)03-0206-05

Standard Sources of High Energy γ -ray

SHI Zong-ren, XU Kun, LI Li-hua

(China Institute of Atomic Energy, P.O. Box 275-20, Beijing 102413, China)

Abstract: The types and characteristics of standard sources of γ -ray with energy >1.5 MeV were introduced, especially standard sources of high energy γ -ray which were from thermal neutron radiation capture reaction and proton resonance radiation capture reaction. How to determine their energy and emission probabilities, and the impact of Doppler effect on the efficiencies were emphasized.

Key words: thermal neutron radiation capture reaction; proton resonance radiation capture reaction; Doppler expansion effect; prompt γ -ray; standard source

由于²³⁵U和²³⁹Pu等裂变核的裂变产物能够放射出大于1.5 MeV的 γ 射线,而1~8 MeV的 γ 射线有较强的穿透本领,具有难于屏蔽、放射性物质难隐藏和高能本底低等特点,因此,探测大于1.5 MeV的 γ 射线在核不扩散、反应堆的安全监测、中子瞬发 γ 射线分析等方面有特殊的意义。

为探测高能 γ 射线,需用1组标准 γ 射线源事先校准探测器的能量和效率曲线。由于绝大多数放射性 γ 射线源的能量低于1.5 MeV,因此,需选取核反应产生的瞬发高能 γ 射线,采用一致的解谱方法,做各种修正及函数拟合,进

而得到探测器的能量和效率曲线。目前,利用高能 γ 射线标准源校准HPGe探测器的能量和效率的不确定度分别为小于0.1 keV和2%。为减少不确定度,需高分辨率、高峰总比、单色化和高效率的复合HPGe探测器。

1 标准 γ 射线源的分类

标准 γ 射线源既是能量的标准,也是发射率的标准。 γ 射线源的发射率为:

$$R(E_\gamma) = A p(E_\gamma) \quad (1)$$

其中: A 为活度或反应率; $p(E_\gamma)$ 为发射概率。

绝对测量需要准确的 A 和 $p(E_\gamma)$, 相对测量需要准确的 $p(E_\gamma)$ 。标准 γ 射线源分初级和次级标准。初级标准的衰变方式简单, $p(E_\gamma)$ 接近 100%, $p(E_\gamma)$ 不是用已知效率的探测器测定。次级标准衰变方式复杂, $p(E_\gamma)$ 是用效率已知的探测器测量, 因此, 次级标准源的 $p(E_\gamma)$ 的不确定度大于初级标准源。当要求效率不确定度 $\leq 1\%$ 时, 需采用初级标准源。根据 γ 射线是缓发或瞬发, 分为放射性标准源和核反应产生的瞬发标准源, 后者一般都是次级标准。根据发射 γ 射线数目又分为单线、双线和多线源。

放射性单线源的优点是用 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 符合法定准确测定 A , $p(E_\gamma)$ 的不确定度小, 一般没有符合和修正; 缺点是为得到效率能量关系需要用多个能量不同的单线源, 必须严格控制每个源的位置和计数率, 并修正它们的影响。为简便, 有时用寿命长的几个单线核素混合成多线源。1991年, IAEA 在文献[1]中推荐了 14 个放射性单线源作为初级标准。

具有发射概率近似相等的两条级联 γ 射线源称双线源。如果两条 γ 射线的发射概率均接近 100%, 则是双线初级标准。文献[1]中推荐了 8 个放射性初级标准双线源, 用它校准探测器称双线法。双线法的优点是适合相对效率测量, 死时间、偶然和及符合和等修正可忽略。双线的效率比为:

$$\frac{\epsilon(E_{\gamma 1})}{\epsilon(E_{\gamma 2})} = \frac{p(E_{\gamma 2})N_1}{p(E_{\gamma 1})N_2} \quad (2)$$

其中: N_1 和 N_2 分别为双线 1 和 2 的计数率。

如果效率和 γ 射线能量关系写成:

$$\ln \epsilon = \sum_{i=0}^n a_i (\ln E_\gamma)^i \quad (3)$$

其中: a_i 是 $n+1$ 个待定参数。

双线效率比与 a_i 有如下的关系:

$$\ln \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} = \sum_i a_i [(\ln E_{\gamma 1})^i - (\ln E_{\gamma 2})^i] \quad (4)$$

为求得所有 a_i , 若仅采用双线源, 则至少需 $n+1$ 对双线。

多线源均为次级标准源。多线源的优点是 1 次测量能够得到能量和相对效率曲线, 源位和计数率的影响小, 死时间、偶然和等修正可忽略。文献[1]中推荐了 11 个放射性多线源。多线源的缺点是高端 γ 射线的康普顿平台增大了

低端的本底, 峰重叠减少了峰面积的准确性, 落在康普顿边沿上的峰面积的不确定度大, 需进行符合和修正等。多线源更适用于校准脉冲响应单色的 γ 射线谱仪, 如反康普顿谱仪和对谱仪。通常, 源与探测器表面间的距离 ≥ 15 cm 时, 符合和修正可忽略。

美国国家标准和技术研究所(NIST)[2]于 2002 年给出了新的基本常数 $f = hc/ea = 2.282\ 889\ 89(23\ \text{keV})$, 于是, 以其确定的所有 γ 射线的标准能量均应做调整。其中, h 为 Planck 常数, c 为光速, e 为电子的电荷, a 为 NIST XROI Si 在 $p = 100\ \text{kPa}$, $T = 22.5\ ^\circ\text{C}$ 时的晶格常数。Belgysa 等[3]利用 ILL(Institute Laue-Langevin) 的双平面晶体衍射谱仪 GAMS4 再次测量了 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)$ 反应产生 γ 射线的能量。目前, 标准 γ 射线的能量不确定度约为 10 eV。

2 γ 射线能量大于 1.5 MeV 的标准源

γ 射线能量大于 1.5 MeV 的放射性标准源的数量少、能量范围窄、寿命短, 特别是 ^{66}Ga 的寿命为 9.5 h。文献[1, 4-5]指出, 没有能量大于 1.5 MeV 的放射性初级单线源。

放射性初级双线源有: ^{24}Na (1 368.5/2 754.0 keV, $T_{1/2} = 14.97\ \text{h}$); ^{88}Y (898.04/1 836.06 keV, $T_{1/2} = 106.6\ \text{d}$)。次级多线源有: ^{56}Co (846.76 ~ 3 548.27 keV; $T_{1/2} = 77.3\ \text{d}$), 共有 14 条 γ 射线, 其中, 9 条能量大于 1.5 MeV; ^{66}Ga (833.6 ~ 4 807 keV; $T_{1/2} = 9.5\ \text{h}$), 共有 13 条 γ 射线, 其中, 10 条能量大于 1.5 MeV; ^{226}Ra (186.2 ~ 2 447.7 keV; $T_{1/2} = 1\ 600\ \text{a}$), 共有 12 条 γ 射线, 其中, 4 条能量大于 1.5 MeV。

^{56}Co 在质子加速器上通过 $^{56}\text{Fe}(p, n)$ 反应产生, ^{66}Ga 通过 $^{66}\text{Zn}(p, n)$ 、 $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)$ 和 $^{64}\text{Zn}(\alpha, n)$ 等反应产生。 ^{56}Co 和 ^{66}Ga 的 $p(E_\gamma)$ 的不确定度为 2% ~ 3%。

使用放射性标准源校准探测器可在低本底的环境下进行。

3 核反应产生的瞬发 γ 射线标准源

核反应产生的瞬发 γ 射线标准源主要来自反应堆上的热中子辐射俘获反应 $A(n, \gamma)$ 和在

加速器上的质子共振辐射俘获反应 $A(p, \gamma)$, 其特性是:多线次级标准;瞬发 γ 射线,实验上在束测量;为减少本底,需要采用多种屏蔽方法;反应余核在运动中发射 γ 射线将产生多普勒展宽效应和 γ 射线角分布将带来系统不确定度。另外,由于实验上测量核反应率的不确定度大,因此,主要用核反应产生的瞬发 γ 射线标准源做相对效率曲线测量,然后用放射性 γ 射线标准源绝对化。

3.1 高能 γ 射线的能量和发射概率的确定

高能 γ 射线的 E_γ 和 $p(E_\gamma)$ 并不是从低能 γ 射线的能量和效率曲线外推得到的,而是根据一定的原则从实验上测定。

高能 γ 射线的 E_γ 是利用 Ritz 组合原理从低能 γ 射线的准确能量得到的,称自举法(图 1)。如果准确知道 E_1 和 E_2 ,则 $E_3 = E_1 + E_2$ 也确定。另外,也可用双平面晶体衍射谱仪测量高能 γ 射线的能量。

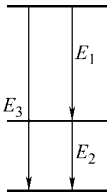


图 1 Ritz 组合原理

Fig. 1 Ritz combination principle

高能 γ 射线的 $p(E_\gamma)$ 是利用强度平衡原理得到的,即进入一个能级的强度等于从该能级出去的强度(图 2)。

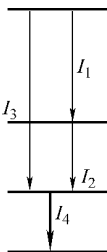


图 2 强度平衡原理

Fig. 2 Intensity balance principle

当强度 I_4 和 I_2 已知, I_1 和 I_3 即可知, $I_1 = I_2, I_3 = I_4 - I_2$, 其中, $E_3 > 1.5$ MeV。此外,还有一些约束 $p(E_\gamma)$ 的条件。一般情况下,由于

高能的 E_γ 和 $p(E_\gamma)$ 是导出量,其不确定度大。反应余核的能级纲图越简单,得到的 $p(E_\gamma)$ 越准确。热中子 $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ 反应的余核 ^{15}N 的能级纲图简单,其 $p(E_\gamma)$ 的不确定度约为 1%。

3.2 多普勒展宽效应

在运动中激发的原子核发射 γ 射线的能量与其速度和发射角有关,称为多普勒(Doppler)效应,实验上测量得到:

$$E_\gamma = E_0 \frac{\sqrt{1-\beta^2}}{1-\beta\cos\theta} \quad (5)$$

其中: E_0 为在质心系统发射的 γ 射线能量; θ 为原子核运动方向与 γ 射线发射方向在实验室系的夹角; v 为余核在实验室系的速度; $\beta = v/c$ 。

由于探测器的大小有限,将产生展宽的峰,峰宽为:

$$\Delta E_\gamma = E_\gamma \frac{\beta\sin\theta}{1-\beta\cos\theta} \Delta\theta \quad (6)$$

其中: $\Delta\theta$ 为探测器的角度范围。

由式(6)可知,峰在 90° 的展宽最显著。在核反应的靶中,由于反应余核与靶原子中电子的电磁相互作用, v 逐渐减小,多普勒效应应进一步改变。当原子核激发态的寿命 τ 远大于余核在靶内的慢化时间 τ_m 时,测量的 γ 射线主要来自静止余核发射的 γ 射线,多普勒效应可忽略, $E_\gamma = E_0$; 当 $\tau \ll \tau_m$ 时,余核在初始阶段发射 γ 射线,其初始速度越大,多普勒效应越显著;当 $\tau \approx \tau_m$ 时,多普勒效应与 τ 和 τ_m 关系复杂,多普勒效应可用于测定 τ 。

由于探测器的有限张角及余核的慢化,测量得到的脉冲峰被展宽,不能采用函数拟合的解谱程序,仅能采用数字求和法,破坏了解谱的一致性。图 3 示出用 HPGe 探测器测量得到的没有多普勒展宽的标准峰形。图 4 示出多普勒展宽峰形,其中,宽实线是实验上测到的峰形,它是不同能量的标准峰形的叠加,竖线是数字求和的边界,下边界包含了较多的低能尾,虚线是本底扣除线。从图 4 可见,峰面积被过多扣除,产生很难估算的偏差及其不确定度,以及效率能量关系的修正也带来系统不确定度。当然,多普勒展宽峰不能用于探测器的能量校准。

质子能量 $E_p = 0.34$ MeV 的共振俘获反应 $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)$ 放射出的 6.13 MeV 及热中子 $^{10}\text{B}(n, \alpha\gamma)$ 反应放射出的 0.478 MeV γ 射线谱

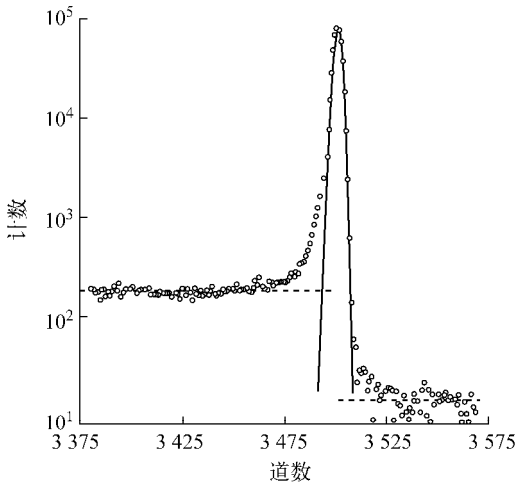


图3 HPGe探测器的脉冲谱的峰形
Fig. 3 Peak shape of HPGe detector without Doppler effect

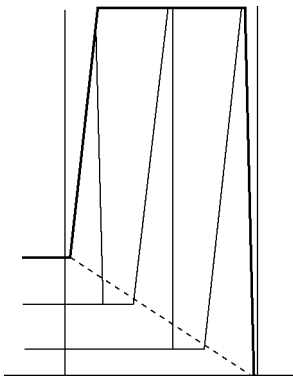


图4 多普勒展宽的峰形
Fig. 4 Doppler broadening peak shape of HPGe detector

均有显著的多普勒展宽,不适合 HPGe 探测器和要求效率不确定度小的探测器的效率校准。

3.3 热中子辐射俘获反应

热中子辐射俘获反应产生的 γ 射线被广泛用于 HPGe 探测器的能量和效率的校准,具有以下优点:热中子能量低,为 25 meV,余核反冲能量可忽略,多普勒效应可不计; γ 射线角分布各向同性;最高 γ 射线能量小于等于中子束缚能 B_n , B_n 一般约为 8 MeV。但在高激发态发射高能 γ 射线后,将产生核反冲,随后,再放射 γ 射线也可能产生多普勒效应^[5]。

热中子 $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ 反应余核 ^{15}N 的能级纲图简单,利用 Ritz 组合和强度平衡等原理已

得到准确的 E_γ 和 $p(E_\gamma)$, $p(E_\gamma)$ 的不确定度约为 1%,可将其视为初级标准^[6-7]。表 1 中的 $p(E_\gamma)$ 为参考文献^[6-7]的平均值, σ 为其标准偏差。在 1 678~10 829 keV 共有 16 条 γ 射线可用于校准 HPGe 探测器的能量和效率。热中子俘获反应的缺点是热中子俘获截面小,约为 $75 \times 10^{-27} \text{ cm}^2$,需采用较大的样品量,由此需做源有限大小和自吸收的修正。另外,也常用热中子 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 反应做标准,它的能量范围为 516~8 578 keV,共有 17 条 γ 射线,其优点是热中子俘获截面大,为 $33 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ 。 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 反应的缺点是 $p(E_\gamma)$ 的不确定度为 2%~3%,及缺少能量为 2~5 MeV 的 γ 射线。

表 1 热中子 $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ 反应产生的瞬发 γ 射线的 E_γ 、 $p(E_\gamma)$ 和 σ

Table 1 E_γ , $p(E_\gamma)$ and uncertainties σ from thermal neutron $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ reaction

E_γ	$p(E_\gamma)$	σ	E_γ	$p(E_\gamma)$	σ
1 678	7.96	0.09	5 269	29.94	0.20
1 885	18.72	0.25	52 982	1.27	0.18
2 000	4.05	0.09	5 533	19.66	0.21
2 520	5.68	0.07	5 562	10.65	0.12
2 831	1.72	0.03	6 322	18.45	0.14
3 532	9.09	0.09	7 299	9.56	0.09
3 678	14.70	0.15	8 310	4.17	0.05
4 509	16.63	0.17	10 829	14.0	0.03

近年来, Raman 和 Molnar^[4-5] 等先后在反应堆上用 $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ 作标准校准 HPGe 的效率,然后再校准 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 、 ^{56}Co 和 ^{66}Ga 的 $p(E_\gamma)$ 。石宗仁等^[8] 及叶宗垣等^[9] 先后采用 $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{15}\text{N}$ 和 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 作标准校准 HPGe 探测器的效率。

在反应堆上,热中子辐射俘获反应产生高能 γ 射线标准源的装置设计中,应尽可能减少反应堆泄漏中子、束中的快中子和 γ 射线、样品散射中子及中子束背散射等本底^[10]。

3.4 质子共振辐射俘获反应

在加速器上,用质子共振辐射俘获反应 $A(p, \gamma)$ 产生高能 γ 射线,特点是:能产生大于 11 MeV 的 γ 射线,这是热中子 (n, γ) 反应达不

到的,例如, ${}^3\text{H}(p,\gamma){}^4\text{He}$, $Q=19.8\text{ MeV}$; 质子能量高,余核获得动能,并在靶内慢化,多普勒效应显著; γ 射线角分布各向异性;共振宽度、质子束流的能散度、靶的厚度等影响 γ 射线的FWHM和峰形。为避免中子本底,入射质子能量应低于中子产生阈。

最常用的 ${}^{27}\text{Al}(p,\gamma){}^{28}\text{Si}$ 反应^[11]有36条 γ 射线可用于能量和效率的校准,其能量范围为1 522~10 762 keV,优点是靶易制作、纯度高,共振能量为992 keV,共振宽度小于0.1 keV。邢进强等^[12]采用 ${}^{27}\text{Al}(p,\gamma)$ 反应作标准校准HPGe探测器的效率。 $A(p,\gamma)$ 反应的种类很多,可参考文献^[13]。

4 结语

选取标准源的原则是:依据探测器校准的不确定度要求;采用国际推荐的标准;均匀的 γ 射线能量间隔及尽可能多的标准点;寿命长、制作简单或容易实现、费用低等。用热中子 (n,γ) 反应作标准适合校准HPGe探测器在低于11 MeV条件下的能量和效率曲线。

感谢叶宏生、李华芝、汪建清和丁声耀等给予的支持和帮助。

参考文献:

- [1] IAEA. X-ray and gamma-ray standards for detector calibration, IAEA-TECDOC-619[R]. Vienna: IAEA, 1991.
- [2] GUIMARAES-FILHO Z O, HELENE O, VANIN V R, et al. Fitting and updating gamma-ray energies[C]//International Conference on Nuclear Data for Science and Technology. Santa Fe New Mexico, USA: [s. n.], 2005:382-385.
- [3] BELGYA T, MUTTI P, BORNER H G, et al. Accurate wavelength measurement of high-energy gamma rays from the ${}^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$ reactions[C]//International Conference on Nuclear Data for Science and Technology. Santa Fe New Mexico, USA:[s. n.], 2005:1 074-1 077.
- [4] RAMAN S, YONEZAWA C, MATSUE H, et al. Efficiency calibration of a Ge detector in the 0.1-11.0 MeV region[J]. Nucl Instrum Methods, 2000, A454: 389-402.
- [5] MOLNAR G L, REVAY Z, BELGYA T. Wide energy range efficiency calibration method for Ge detectors[J]. Nucl Instrum Methods, 2002, A489: 140-159.
- [6] KENNETT T J, PRESTWICH W V, TSAI J S. The ${}^{14}\text{N}(n,\gamma)$ reaction as both an intensity and energy standard[J]. Nucl Instrum Methods, 1986, A249: 366-378.
- [7] JURNEY E T, STARNER J W, LYNN J E. Thermal-neutron capture by ${}^{14}\text{N}$ [J]. Phys Rev, 1997, C56: 118-134.
- [8] 石宗仁,曾宪堂,郭太昌. ${}^{27}\text{Al}$ 热中子 (n,γ) 反应的直接俘获机制[J]. 原子核物理,1982, 4: 88-92.
SHI Zongren, ZENG Xiantang, GUO Taichang. Direct capture mechanism of ${}^{27}\text{Al}(n,\gamma)$ [J]. Chinese Journal of Nuclear Physics, 1982, 4: 88-92(in Chinese).
- [9] 叶宗垣,丁声耀,李宇兵,等. MeV能区HPGe γ 探测器本征效率和 γ 剂量的确定[J]. 原子能科学技术,1994, 28(5): 419-427.
YE Zongyuan, DING Shengyao, LI Yubing, et al. Intrinsic efficiencies and dose determinations for HPGe detector at MeV region[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1994, 28(5): 419-427(in Chinese).
- [10] 石宗仁,曾宪堂,张明. 高纯热中子束装置及设计[J]. 核技术,1989, 12: 143-147.
SHI Zongren, ZENG Xiantang, ZHANG Ming. A facility for producing high purity thermal neutron beam and its design[J]. Nuclear Technology, 1989, 12: 143-147(in Chinese).
- [11] ANTTILA A, KEINONEN J, HAUTALA M, et al. Use of the ${}^{27}\text{Al}(p,\gamma){}^{28}\text{Si}$, $E_p = 992\text{ keV}$ resonance as a gamma-ray intensity standard[J]. Nucl Instrum Methods, 1977, 147: 501-505.
- [12] 邢进强,石侠民,沈荣林,等. 在0.3~10 MeV能区内探测效率的绝对刻度[J]. 核技术,1983, 4: 23-26.
XING Jinqiang, SHI Xiamin, SHENG Ronglin, et al. The efficiency calibration of a HPGe detector in the 0.3-10 MeV region[J]. Nuclear Technology, 1983, 4: 23-26(in Chinese).
- [13] ELEKES Z, BELGYA T, MOLNAR G L, et al. Absolute full-energy peak efficiency calibration of a Clover-BGO detector system[J]. Nucl Instrum Methods, 2003, A503: 580-588.