

国产 Am-Be 中子源能量低于 1.5 MeV 中子所占份额的实验测定

陈金象, 朱培, 李永明, 刘镇洲, 张国辉

(北京大学 物理学院 重离子物理教育部重点实验室, 北京 100871)

摘要:本工作提出了测定 Am-Be 中子源发射的能量低于 1.5 MeV 中子所占份额的 1 种实用实验方法。用 4.438 MeV γ 射线伴随的飞行时间法测量了中子源的局部中子谱(n_1 群中子)。通过已准确测量的中子源发射 4.438 MeV γ 射线与中子强度的比值($R=R_\gamma/S_n$)和 n_1 群中子谱与测量的能量为 1.5 MeV 以上中子总谱在 3.2 MeV 能量处归一后的面积比值,求得国产 Am-Be 中子源能量低于 1.5 MeV 中子的所占份额为 $(19.1 \pm 1.9)\%$ 。

关键词: ^{241}Am - ^9Be 中子源; 中子能谱; 飞行时间法

中图分类号: O571.54

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2008)05-0475-06

Experimental Determination of Fraction of Neutrons Below 1.5 MeV for Am-Be Neutron Source

CHEN Jin-xiang, ZHU Pei, LI Yong-ming, LIU Zhen-zhou, ZHANG Guo-hui

(Key Laboratory of Heavy Ion Physics, Ministry of Education, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: A practical method for experimentally determining the fraction of neutrons below 1.5 MeV for the Am-Be neutron source is described. The partial neutron spectrum (the n_1 group) was measured by time of flight accompanied with the 4.438 MeV γ -ray. The fraction of neutrons below 1.5 MeV was derived from the 4.438 MeV γ -ray to total neutron ratio and the ratio of the area of the n_1 group spectrum to the measured total spectrum above 1.5 MeV normalized at the peak near 3.2 MeV. The fraction of neutrons with energies below 1.5 MeV amounts to $(19.1 \pm 1.9)\%$ for the Chinese-made Am-Be neutron source.

Key words: Am-Be neutron source; neutron spectrum; time-of-flight

Am-Be 中子源在刻度中子剂量仪表中被广泛使用。由于中子源的中子注量与比释动能的转换因子对源低能中子的份额相当灵敏^[1],

因此,能量低于 1.5 MeV 中子所占份额常被作为 $^9\text{Be}(\alpha, n)$ 型中子源的一个重要特征量^[2]。

已有不少实验室采用不同的方法测量了

Am-Be 中子能谱。大部分的测量工作是通过核乳胶^[3]、反冲质子望远镜^[4]、反冲质子谱仪^[5]和双闪烁体中子飞行时间谱仪^[6]来完成。由于这些探测器的性质或实验方法的原因,测量的中子低能下限一般都被限制在几百 keV 以上。Kluge^[7]和 Marsh^[8]使用³He 夹心谱仪高精度地测量了中子源的中子谱,尽管他们的工作在能量分辨以及能量范围上有显著改善,但低能部分仍然未扩展到 100 keV 以下。至今,仍无法通过测量源中子能谱而直接确定 1.5 MeV 以下中子所占的产额百分比。

中子源的初始谱由 n_0 、 n_1 和 n_2 3 群中子以及 n_b 群中子所组成,其中, n_0 、 n_1 和 n_2 分别为在⁹Be(α , n)¹²C 反应中¹²C 处于基态、4.438 MeV 态、7.66 MeV 态发射出的中子群; n_b 群中子则是由⁹Be(α , α n)⁸Be 或⁹Be(α , n) 3α 的裂变反应产生。1.5 MeV 以下中子谱的低能部分来自于所有的 n_b 群裂变中子以及部分的 n_2 群中子。裂变反应的反应截面及角分布数据较少,且有近 20% 以上的不确定性^[1],中子谱的低能部分并非十分清楚,且实验上分歧较多^[7]。所以,理论计算的 1.5 MeV 以下能量中子的所占产额百分比的可靠性是需要实验验证的。

本研究的另一目的是建立测定 Am-Be 中子源发射的能量低于 1.5 MeV 中子所占份额的 1 种实用的实验方法。

1 实验方法

在我们之前的工作^[9]中,已准确测量了国产 Am-Be 中子源 4.438 MeV γ 射线与中子强度 S 的比值($R = S_\gamma / S_n$)。对我们的实验测量值与其他作者的结果进行了比较,通过综合评价后给出的推荐值 $R = 0.575(1 \pm 4.8\%)$ 。由于源的制作和结构互有差异等因素对实验的 R 值的影响小于当前实验测量的不确定性,因此,这个实验测定的 R 值可作为 Am-Be 中子源的一个重要特征量^[9]。

由于 n_1 群中子是与 4.438 MeV γ 射线相伴随的,可表示为:

$$R = \frac{S_\gamma}{S_n} = \frac{\int_{E_{n_1, \min}}^{E_{n_1, \max}} N_1(E_n) dE_n}{\int_0^\infty N(E_n) dE_n} \quad (1)$$

其中: $N_1(E_n)$ 和 $N(E_n)$ 分别为中子能量为 E_n 、单位能量间隔内的 n_1 群中子和总中子的计数;积分的上下限 $E_{n_1, \min}$ 和 $E_{n_1, \max}$ 分别对应着 n_1 群中子的能量范围。

于是,能量低于 1.5 MeV 的中子数量与总中子数量的比值即可表示为:

$$f_r = \frac{\int_0^{1.5 \text{ MeV}} N(E_n) dE_n}{\int_0^\infty N(E_n) dE_n} = 1 - \frac{\int_{1.5 \text{ MeV}}^\infty N(E_n) dE_n}{\int_0^\infty N(E_n) dE_n} = 1 - \frac{\int_{1.5 \text{ MeV}}^\infty N(E_n) dE_n}{\int_{E_{n_1, \min}}^{E_{n_1, \max}} N_1(E_n) dE_n} \times \frac{\int_{E_{n_1, \min}}^{E_{n_1, \max}} N_1(E_n) dE_n}{\int_0^\infty N(E_n) dE_n} \quad (2)$$

由式(1)代入,并假设:

$$f_p = \frac{\int_{E_{n_1, \min}}^{E_{n_1, \max}} N_1(E_n) dE_n}{\int_{1.5 \text{ MeV}}^\infty N(E_n) dE_n}$$

由此,式(2)则变为:

$$f_r = 1 - R/f_p \quad (3)$$

¹²C 的 7.66 MeV 激发态的主要衰变方式是发射 α 粒子,而它发射 γ 射线的衰变几率(4.06×10^{-4})可忽略;由(α , α')非弹散射而产生的⁹Be 激发态的衰变方式几乎完全是中子发射,而⁹Be(α , α n)反应也未测量到 γ 射线^[10]。¹²C 的 4.438 MeV 激发态寿命为 6.1×10^{-14} s,它的衰变 100% 发射 γ 射线。所以, n_1 群中子的局部中子谱可通过伴随 4.438 MeV 能量 γ 射线的飞行时间法来测量。

几乎所有测量得到的 Am-Be 源的能谱在 3.2 MeV 能量附近均有一明显的标志峰。由核反应动力学可计算出, n_2 群中子的能量上限不会超过 2.8 MeV, n_0 群中子的能量不会低于 5.3 MeV。因此,3.2 MeV 中子峰的计数全部来自 n_1 群中子,当把测量的 n_1 群中子谱与测量的总谱进行相互比较时,完全可在 3.2 MeV 峰位处进行归一。

综上所述,只要用飞行时间法(TOF)测量得到 Am-Be 源的 n_1 群中子谱和用其他方法测量得到能量高于 1.5 MeV 的中子总谱,则从式(3)即可计算得到 f_r 值。

2 实验测量

国产 Am-Be 中子源的 n_1 群中子谱通过 γ

伴随飞行时间法进行测量。实验装置如图 1 所示。中子源悬挂于离地面 1.8 m 处,距实验大厅墙壁 6.0 m,以此来减少室散射中子的影响。 γ 射线探测器由蒺晶体($\phi 40 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$)和 RCA8575 光电倍增管组成。源与蒺晶体探测器的距离为 20 cm,以防止在蒺晶体上散射的中子进入中子探测器。中子探测器由 BC501A 液体闪烁体($\phi 12.70 \text{ cm} \times 5.08 \text{ cm}$)和 XP2040 光电倍增管组成,置于带有铜双截锥准直孔道的大型屏蔽体内^[11],以获取最佳运输的中子注量。中子飞行距离为 186.6 cm。

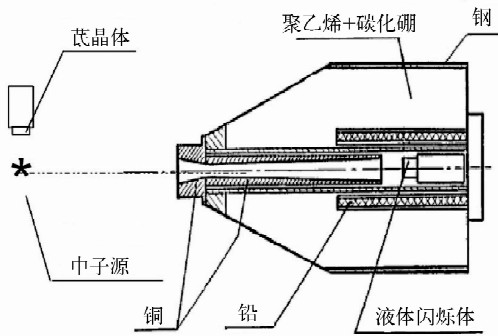


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Experimental arrangement

使用 1 套带有过零时间法 n - γ 脉冲形状甄别的标准飞行时间的电子学系统。中子探测器测到的 γ 射线和 γ 探测器探测到的中子大部分都被甄别掉,以此来减少随机的和偶然符合的本底。中子能量的甄别阈设置在 $E_c = 110 \text{ keV}$,相应的中子能量为 500 keV; γ 射线阈值为 0.4 MeV。测量系统的时间分辨约为 1.6 ns。系统的飞行时间零点由活度为 $3.7 \times 10^8 \text{ Bq}$ ^{60}Co γ 源的瞬时符合峰来标定。

另外,在中子探测器和中子源间放置 80 cm 长的铜锥,进行相同累积时间的本底测量。BC501A 探测器对 γ 射线的光输出响应通过一系列的 γ 源进行刻度^[12]。光输出分辨函数表示为 $\Delta L/L = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2/L + \gamma^2/L^2}$,其分辨参数被标定后分别为 $\alpha = 2.0\%$ 、 $\beta = 17.6\%$ 、 $\gamma = 0.2\%$ 。光输出函数 $L_p(E)$ 值的确定通过飞行时间法分别测量薄膜 ^{252}Cf 源的瞬发裂变中子谱以及加速器上由 $\text{T}(p, n)^3\text{He}$ 和 $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ 反应产

生的中子谱来完成^[12]。由此得到探测器对质子-电子能量相对响应为:

$$L_p = 0.18221E_p + 0.07295E_p^2 \quad (0 < E_p < 2.0 \text{ MeV})$$

$$L_p = 0.19709 - 0.17099E_p + 0.20887E_p^2 - 0.02026E_p^3 \quad (2.0 \text{ MeV} < E_p < 3.5 \text{ MeV})$$

$$L_p = 0.56279 + 0.64256E_p + 0.04841E_p^2 + 0.00479E_p^3 \quad (3.5 \text{ MeV} < E_p < 8.0 \text{ MeV})$$

$$L_p = -2.18520 + 0.74401E_p \quad (E_p > 8.0 \text{ MeV})$$

我们曾经用飞行时间法精确测量过薄膜 ^{252}Cf 源的瞬发裂变中子谱来刻度 ST451 液闪探测器(与 BC501A 类似)的相对中子探测效率^[13],测量结果与用 PTB 程序 NEFF7^[14] 模拟计算结果很好符合。这里,仅用上述质子-电子能量相对响应数据,使用 NEFF7 程序模拟计算 BC501A 探测器的中子相对探测效率。

实验测量的 n_1 群中子的飞行时间谱示于图 2。将测量的时间谱扣除偶然符合的随机本底和散射本底得到的净效应时间谱按中子能量划分为若干间隔,把每个能量间隔(大于能量分辨宽度)内的净效应计数相加,再除以 0.5 MeV 中子阈相应能区的平均中子探测效率,得到 n_1 群中子的能谱。本工作测量的 n_1 群中子能谱与其他工作(Geiger^[1,4], Vilaitong^[15], 李安利^[6], Lorch^[16] 和 Kluge^[7]) 的比较示于图 3,所有谱在 3.2 MeV 处进行归一。本工作测量得到的 n_1 群中子能量分布在 1.3~6.4 MeV 之间。能量分辨率的变化从 2.7%(1.3 MeV), 4.23%(3.2 MeV)到 5.97%(6.4 MeV)。转换后的中子能谱的相对偏差由下式计算:

$$\frac{\Delta N_1(E)}{N_1(E)} = \left(\left(\frac{\Delta N(t)}{N(t)} \right)^2 + \left(\frac{3\Delta t}{t} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \epsilon(E)}{\epsilon(E)} \right)^2 + \left(\frac{2\Delta l}{l} \right)^2 \right)^{1/2} \quad (4)$$

其中: $\frac{\Delta N(t)}{N(t)}$ 为每个能量间隔内时间谱上净效应计数的相对偏差; $\frac{\Delta t}{t}$ 为系统时间分辨引起的相对偏差; $\frac{\Delta \epsilon(E)}{\epsilon(E)}$ 为中子探测器效率的相对偏差; $\frac{\Delta l}{l}$ 为飞行距离不确定性引起的相对偏差。其中, n_1 群中子在 3.2 MeV 处能谱的相对偏

差为 $\frac{\Delta N_1(3.2 \text{ MeV})}{N_1(3.2 \text{ MeV})} = 7.01\%$ 。 n_1 群中子谱面积的相对偏差按下式计算：

$$\frac{\Delta S_1}{S_1} = \sqrt{\sum_{i=1}^l \left[\frac{N_1(E_i) dE_i}{\sum_{i=1}^l N_1(E_i) dE_i} \times \frac{\Delta N_1(E_i)}{N_1(E_i)} \right]^2} \quad (5)$$

其中： $\frac{\Delta N_1(E_i)}{N_1(E_i)}$ 为第 i 个能量间隔内的中子能谱的相对偏差。

由此，计算得到 n_1 群中子谱面积的不确定性 $\frac{\Delta S_1}{S_1} = 1.59\%$ 。

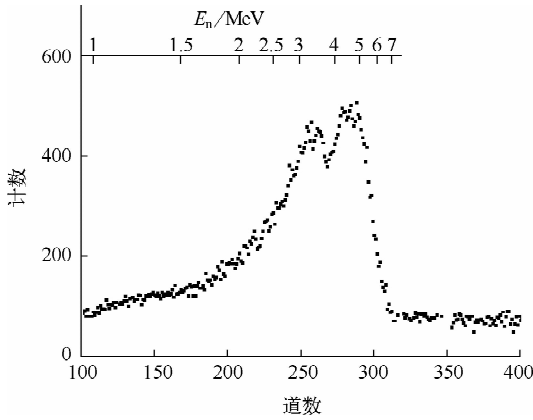


图2 Am-Be 中子源 n_1 群中子的飞行时间谱

Fig. 2 Typical time-of-flight spectrum of n_1 group neutrons from Am-Be source

中子阈, 0.5 MeV; 飞行距离, 186.6 cm; 道宽, 0.428 ns

李安利等^[6]用双闪烁体的飞行时间谱仪测量了 Am-Be 源的中子谱。Am-Be 中子源内 AmO₂ 和 ⁹Be 粉末的颗粒大小、混合比例、活性区的压缩密度以及源的物理尺寸均会强烈影响到源的中子产额以及出射中子谱的细致结构。然而，李安利的实验中所用的源与我们所使用的源都是由中国原子能科学研究院在 1978 年采用相同技术工艺、同一批次制作的。故不再重复测量该源的中子总谱，直接将测量的局部谱与李安利测量的总谱进行比较是合理的。李安利测得能谱的能量范围为 1.3~12.0 MeV，能量分辨率的变化为从 4.6% (1 MeV)、6.08% (3.2 MeV) 到 9.2% (10.0 MeV)。实验的能谱误差包括计数的统计误差、探测器效率、多次散射及通量衰减修正等项带入误差的

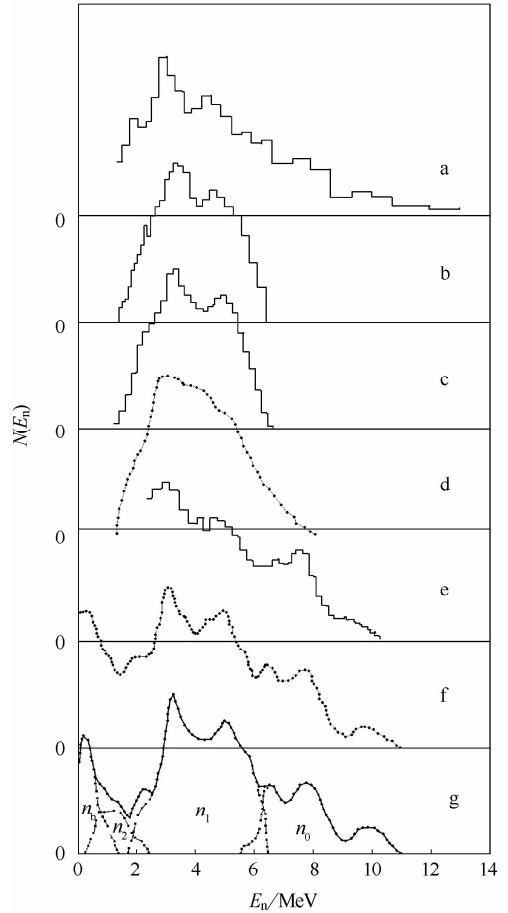


图3 本实验结果与其他工作的比较

Fig. 3 Comparison of present measured neutron spectra with those obtained by others

a——文献[6]; b——本工作; c——文献[15];
d——文献[4]; e——文献[16]; f——文献[7]; g——文献[1]
能谱均在 3.2 MeV 能量处归一

贡献。中子在 3.2 MeV 处能谱的相对偏差为 $\frac{\Delta N(3.2 \text{ MeV})}{N(3.2 \text{ MeV})} = 4.6\%$ ^[6]。同理，经计算得到李安利测量的能谱中能量在 1.5 MeV 以上中子谱总面积的不确定性 $\frac{\Delta S}{S} = 1.60\%$ 。

3 结果与讨论

Geiger^[4]和 Vilaithong^[15]采用 γ 伴随飞行时间法测量了 Am-Be 源的局部中子谱。从图 3 可看到，除 Geiger^[4]测得的能谱上限外，本测量的 n_1 群中子谱能量范围与两者的结果均很好符合。Geiger 测得的能谱上限为 7.8 MeV，显然，它大于由核反应 Q 值决定的 n_1 群中子的最大能量 6.4 MeV，所以，其测得能谱上限

部分是不合理的。我们与李安利^[6]、Vilaitong^[15]、Lorch^[16]和 Kluge^[7]测量的所有谱在 3.2 MeV 和 4.8 MeV 处均显示出峰结构。在我和李安利的结果中,3.2 MeV 和 4.8 MeV 两峰的峰计数比值也是大致相符的。所有测量谱的细致结构上的差别除与测量方法有关外,也与源的制备有关。可认为,本测量的结果是合理的。将我们的测量谱和李安利测量的总谱在 3.2 MeV 峰位处进行归一后,可得到 n_1 群中子谱与能量 1.5 MeV 以上中子谱的总面积比值为:

$$f_p = \frac{\sum_{i=1}^l KN_1(E_i)dE_i}{\sum_{j=1}^n N(E_j)dE_j} = \frac{\sum_{i=1}^l \frac{N(3.2 \text{ MeV})}{N_1(3.2 \text{ MeV})} N_1(E_i)dE_i}{\sum_{j=1}^n N(E_j)dE_j} = \frac{N(3.2 \text{ MeV})}{N_1(3.2 \text{ MeV})} \frac{S_1}{S} = \frac{46.349}{65.215} = 0.7107$$

面积比值的相对偏差为:

$$\frac{\Delta f_p}{f_p} = \left(\left(\frac{\Delta N(3.2 \text{ MeV})}{N(3.2 \text{ MeV})} \right)^2 + \left(\frac{\Delta N_1(3.2 \text{ MeV})}{N_1(3.2 \text{ MeV})} \right)^2 + \left(\frac{\Delta S_1}{S_1} \right)^2 + \left(\frac{\Delta S}{S} \right)^2 \right)^{1/2} = 8.68\%$$

由式(3)可得:

$$f_r = 1 - \frac{0.575(1 \pm 4.8\%)}{0.7107(1 \pm 8.68\%)} =$$

$$0.191(1 \pm 9.92\%) = (19.1 \pm 1.9)\%$$

据文献[1],理论计算和直接测量得到的 1.5 MeV 以下能量中子的所占份额分别为 $(14 \pm 2)\%$ 和 $(15 \sim 23)\%$ 。Werle^[17]通过 $^9\text{Be} + \alpha$ 核反应测量了 0.1~2.4 MeV 的低能中子连续谱,并依此确定 Am-Be 中子源的低能中子连续谱的形状和产额,得到了 1.5 MeV 以下能量中子的份额为 $(15 \pm 4)\%$,其中,0.1 MeV 以下能量中子的贡献估计为 1%。本实验结果的不确定性均小于上述工作的结果。Kluge^[7]使用 ^3He 夹心谱仪测量了能量范围为 100 keV~11 MeV 的中子谱,得到的这个份额为 17.8% (未给出误差)。实验测量结果通常高于理论计

算结果,这是由于测量的结果包括一些诸如 $^9\text{Be}(n,n')^9\text{Be}$ 、 $^9\text{Be}(n,2n)^8\text{Be}$ 、 $^9\text{Be}(\gamma,n)^8\text{Be}$ 和 $^{241}\text{Am}(n,f)$ 等次级反应以及穿透中子与源的不锈钢套的次级相互作用的贡献。ISO 8529-1 的报告指出,Am-Be 中子源中主要在 2 MeV 能量以下的中子谱分布一定程度上会依赖于源的尺寸和组成成分^[18]。我们的结果稍高于 Kluge 的结果,是因为本结果包含了 100 keV 以下能量的中子,以及穿透中子与封装外壳的 3 层不锈钢(厚度 2.9 mm,国外同强度的源通常只有 1.3~1.7 mm 厚度)的弹散与非弹散反应引起的贡献。反过来也说明了本实验的结果是合理的,实验方法是可行的。

期望本实验方法对实验确定 Am-Be 中子源发射 1.5 MeV 能量以下中子的份额和检验理论计算与实验测量的结果有一定的帮助。

参考文献:

- [1] GEIGER K W, van der ZWAN L. Radioactive neutron source spectra from $^9\text{Be}(\alpha, n)$ cross section data[J]. Nucl Instrum Methods, 1975, 131: 315-321.
- [2] KNOLL G F. Radiation detection and measurement[M]. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1979: 29.
- [3] VIJAVA A D, KUMAR A. The neutron spectrum of Am-Be neutron sources [J]. Nucl Instrum Methods, 1973, 111: 435-440.
- [4] GEIGER K W, HARGROVE C K. Neutron spectrum of an Am-Be (α, n) source[J]. Nuclear Physics, 1964, 53: 204-208.
- [5] MAGALOTTI N, LACOSTE V, LEBRETON L. Investigation of the neutron energy distribution of the IRSN Am-Be (α, n) source[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2007, 125(1-4): 69-22.
- [6] 李安利, 黄糖籽, 白希祥, 等. 用双闪烁体飞行时间谱仪测量 ^{252}Cf 和 Am-Be 源的中子能谱[J]. 原子核物理, 1982, 4(2): 145-152.
LI Anli, HUANG Tangzi, BAI Xixiang, et al. Measuring neutron energy spectra of ^{252}Cf and Am-Be sources with neutron time-of flight spectrometer with double scintillators[J]. Chinese Journal of Nuclear Physics, 1982, 4(2): 145-152 (in Chinese).
- [7] KLUGE H, WEISE K. The neutron energy

- spectrum of an Am-Be (α, n) source and resulting mean fluence to dose equivalent conversion factors[J]. *Radiation Protection Dosimetry*, 1982, 2(2): 85-93.
- [8] MARSH J W, THOMAS D J, BURKE M. High resolution measurements of neutron energy spectra from Am-Be and Am-B neutron sources [J]. *Nucl Instrum Methods*, 1995, A366: 340-348.
- [9] LIU Zhenzhou, CHEN Jinxiang, ZHU Pei, et al. The 4.438 MeV gamma to neutron ratio for the Am-Be neutron source[J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2007, 65(12): 1 318-1 321.
- [10] LEES E W, LINDLEY D. Characteristic gamma-ray spectra from light elements in Am (α, n) sources and their use in detecting source impurities, AERE-R8891[R]. Harwell, UK: Atomic Energy Research Establishment, 1977.
- [11] YUE Gang, CHEN Jinxiang, SONG Ruixia. Study of boron neutron capture therapy used neutron source with protons bombarding a thick ^9Be target[J]. *Med Phys*, 1997, 24(6): 850-855.
- [12] 陈金象, 施兆民, 唐国有. 精确测定 ST451 型快中子探测器的有效中子阈和电子的相对闪烁响应[J]. *核电子学与探测技术*, 1994, 14(3): 140-147.
- CHEN Jinxiang, SHI Zhaomin, TANG Guoyou. Accurate determination of the effective neutron detection threshold and relative electron response for ST451 neutron scintillation detector[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 1994, 14(3): 140-147(in Chinese).
- [13] 陈金象, 施兆民, 唐国有. 用薄膜 ^{252}Cf 源测定 ST451 快中子探测器的相对效率[J]. *核电子学与探测技术*, 1993, 13(6): 313-332.
- CHEN Jinxiang, SHI Zhaomin, TANG Guoyou. Experimental determination of the relative fast-neutron efficiency of a ST451 liquid scintillation detector with a thin ^{252}Cf source[J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 1993, 13(6): 313-332(in Chinese).
- [14] DIETZE G, KLEIN H. NRESP4 and NEFF4 Monte-Carlo code for the calculation of neutron response functions and detection efficiencies for NE213 scintillation detectors, PTB-ND-22[R]. Braunschweig, Germany: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1982.
- [15] VILAITHONG T, CHIRAPATPIMOL N, TEEYASOONTRANON V, et al. Spectrum of coincident neutrons from Am-Be neutron source [J]. *J Sci Soc Thailand*, 1983, 9: 129-142.
- [16] LORCH E A. The Amersham International Plc, catalogue RS16-7 neutron sources [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 1973, 24: 588-589.
- [17] WERLE H, van der ZWAN L, GEIGER K W. The neutron continuum from the $^9\text{Be} + \alpha$ reaction [J]. *Z Physik*, 1973, 259: 275-284.
- [18] ISO 8529-1:2001(E) Reference neutron radiations-part1: Characteristics and methods of production[S]. Switzerland: International Organization for Standardization, 2001.