

文章编号: 1007-4627(2009)01-0027-06

活化法测量中子活化在线分析系统样品处的中子能谱^{*}

王松林¹, 孔祥忠¹, 邓勇军², 拓 飞¹, 王 琦¹, 位金锋¹, 李永明¹

(1 兰州大学核科学与技术学院, 甘肃 兰州 730000;

2 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 用多箔活化法测定了由 Am-Be 中子源慢化屏蔽系统构成的中子活化在线分析系统样品处的中子能谱。根据待测场点的中子注量率水平, 选用了 5 种非裂变核材料箔, 其中 4 种是中能区和热区的, 1 种是快区的, 给出了各箔片的特性参数。通过在待测场点对箔片进行辐照, 并测量其生成放射性核的 γ 放射性, 计算出了各箔片的活化率。运用 SAND-II 和 MSIT 迭代方法, 解出了待测场点的中子能谱。详细分析了数据处理过程中群截面的加工处理以及由于自屏蔽效应引起的群截面修正问题; 研究了影响解谱精度的主要因素; 对解谱结果作了一定的分析讨论; 并用蒙特卡罗 (MC) 方法对最后的中子能谱做了不确定度分析。

关键词: 中子能谱; SAND-II 迭代法; 群截面

中图分类号: O571.54 **文献标识码:** A

1 引言

在能源和矿业领域, 需要对不同元素组成的大块材料进行快速、非破坏性、实时在线分析, 以满足工业生产要求。中子活化分析是一种灵敏度高、非破坏性、多元素核分析技术。中子活化分析的中子源一般有 3 种: 反应堆中子源、加速器中子源、同位素中子源。同位素中子源提供的中子注量率远低于反应堆和加速器中子源, 然而它的优势是其便携性, 从而摆脱了对大型核设施的依赖^[1]。由于中子活化在线分析所利用的核反应主要是热中子俘获反应(主要测量瞬发 γ), 需要对同位素中子源进行慢化以获得较高的热中子注量。本工作采用多箔活化法测量由 Am-Be 中子源慢化屏蔽系统构成的中子活化在线分析系统样品处的中子能谱。根据测定的样品处的中子能谱, 可以确定放样品处热中子注量率水平, 从而对样品处的中子俘获反应率有一个定性的估计, 为中子活化在线分析系统的设计提供重要的依据。同时还可以对 Am-Be 中子源慢化屏蔽系统的设计是否达到比较好的慢化效果进行检验。

活化法^[2-5]测量中子能谱是一种技术简单而又非常实用的方法, 相对于其它测量方法具有花费少、对 γ 射线和阈下中子不灵敏、探测器体积小、对

待测场的干扰小等优点。

2 原理

2.1 中子活化法基本原理

活化法测量中子能谱是将一组阈值不同且已知反应截面的活化箔片放在待测中子场进行辐照, 箔片中子活化反应的活化率将满足活化方程:

$$R_i = \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \Phi(E) dE, \quad i=1, 2, 3, \dots, I \quad (1)$$

其中, I 为实验中所用活化箔片的个数; R_i 为第 i 个中子活化反应的活化率 (s^{-1}); $\sigma_i(E)$ 为第 i 个活化箔在中子能量为 E 时的活化截面 (cm^2), $\Phi(E)$ 为中子在能量为 E 时单位能量间隔内的中子注量率 ($n/eV \cdot cm^2 \cdot s$)。

通过测量被中子辐照后的活化箔片的 γ 放射性, 可得到活化率实验值的表示式为

$$r = \frac{N_\gamma \lambda A f_s}{MP \eta N_0 I_\gamma \epsilon_\gamma (1 - e^{-\lambda t_0}) e^{-\lambda(t_1 - t_0)} (1 - e^{-\lambda(t_2 - t_1)})}, \quad (2)$$

N_γ 为 γ 射线特征峰的净总计数; λ 为衰变常量 (s^{-1}), A 为激活材料靶元素的摩尔质量 (g/mol), P 为激活

* 收稿日期: 2008-06-17; 修改日期: 2008-08-26

作者简介: 王松林(1981-), 男(汉族), 内蒙古敖汉旗人, 硕士研究生, 从事核物理研究; E-mail: rnazhu@163.com

材料中靶元素的纯度, η 为同位素的丰度, M 为活化材料的质量(g), N_0 为阿伏加德罗常数, I_γ 为 γ 射线的分支比, ϵ_γ 为HPGe探测器对 γ 射线特征峰的探测效率, f_s 为自吸收修正系数, t_0 为停止照射时刻(以照射开始作为零时刻计算)(s), t_1 为测量开始时刻(s), t_2 为测量结束时刻(s)。

2.2 解谱原理

由式(2)计算出各个探测道的活化率后, 将其代入式(1)对 $\Phi(E)$ 求解, 就是解谱过程。常用的解谱方法有SAND-II迭代法^[6]和MSIT迭代法^[7]等, 利用SAND-II迭代法求解中子能谱的详细步骤请见文献[3], 其基本原理为: 将待测能区划分为很多个能群, 这样可以把式(1)进行离散化处理, 化积分为求和:

$$R_i = \sum_{j=1}^J \Phi_j \sigma_{ij} \Delta E_j, \quad i=1, 2, 3, \dots, I; j=1, 2, 3, \dots, J \quad (3)$$

式中, J 为待测能区划分的能群总数, Φ_j 为第 j 能群中子的平均注量率, ΔE_j 为第 j 能群间隔, σ_{ij} 为第 i 个活化箔反应在第 j 能群的平均活化截面。根据待测中子场环境, 选定一个初始中子能谱 Φ_j^0 代入式(3), 并根据已知的群截面算出活化率计算值 R_i^0 , 然后根据式(4)对初始中子能谱 Φ_j^0 进行修正, 将修正后的中子能谱重复以上过程, 直到最后的中子能谱满足

结束迭代的要求为止。

$$\Phi_j^{k+1} = \Phi_j^k \exp \left[\frac{\sum_{i=1}^I W_{ij}^k \ln(r_i/R_i^k)}{\sum_{i=1}^I W_{ij}^k} \right], \quad (4)$$

上式中的 W_{ij}^k 为第 i 种核反应在第 j 群的光滑权重因子。MSIT迭代方法与SAND-II是类似的, 唯一不同的是迭代公式不同, 它的迭代公式为

$$\Phi_j^{k+1} = \frac{\Phi_j^k}{\sum_{i=1}^I (\sigma_{ij}/r_i)} \sum_{i=1}^I \frac{\sigma_{ij} r_i}{r_i R_i^k}. \quad (5)$$

结束迭代的方法一般有3种: (1)控制活化率计算值和实验值标准偏差小于一个预先给定值; (2)两次迭代的活化率计算值偏差小于一个给定的值; (3)控制最大迭代次数。这3种方法是相互独立的, 其中任何一种得到满足, 即可结束迭代过程。

3 实验测量

实验中所用的高纯度活化材料有Na, Mn, In, Au和Fe。将每种活化材料制成半径为1 cm的圆片, 核反应生成放射性核素的核谱学数据列于表1。被活化的箔片在国产CH8403同轴HPGe探测器上进行 γ 能谱测量, 测量前对整个测量系统进行效率刻度。

表1 各活化箔片的特性参数和生成放射性核素的核谱学数据

核反应	半衰期	元素纯度(%)	同位素丰度(%)	γ 射线分支比(%)	γ 射线能量/keV
$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	14.959 h	99.5	100	100	1 368.633
$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$	2.578 5 h	95	100	98.87	846.754
$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	54.41 min	99.99	95.7	84.4	1 293.54
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	2.695 2 d	99.9	100	95.58	411.8
$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	2.578 5 h	99.9	91.72	98.87	846.754

实验待测中子场为Am-Be中子源在慢化屏蔽体辐照腔外2 cm处即中子活化在线分析系统放样品处的中子能谱, 具体结构示于图1。由同位素中子源构成的中子活化在线分析系统图示请见文献[8], Am-Be中子源为中国原子能科学研究院在20世

纪80年代中期的产品。源用内径为2 cm和外径为2.6 cm内长为6.3 cm的铅罐密封, 底面和外环面再用0.15 cm厚的不锈钢套装并内置于有机玻璃棒中, 再套入聚乙烯环, 外加含硼石蜡最后用不锈钢包住构成80 cm×80 cm×80 cm的立方中子慢化体。

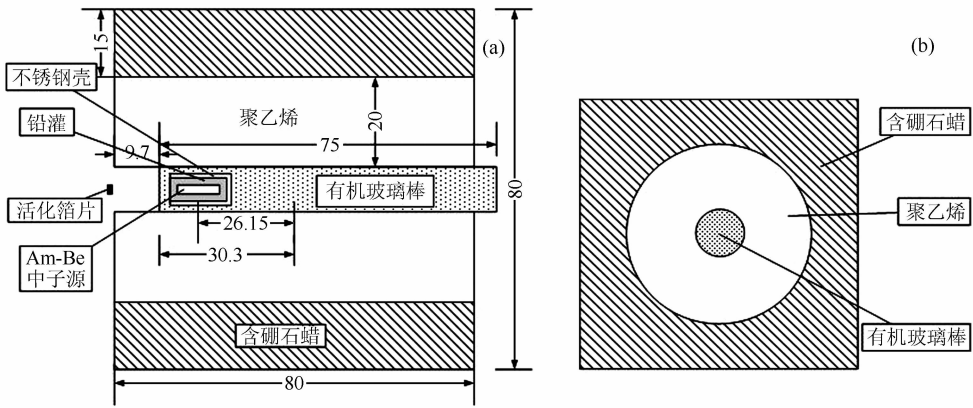


图1 Am-Be中子源慢化装置和测量位置
(a) 侧面图, (b) 正面图; 单位: cm。

4 数据处理及分析

4.1 群截面的加工处理

本次解谱所用的截面数据全部来自ENDF/B-VI, 在利用活化法进行解谱时, 需要将截面的原始数据转换为群截面数据。首先采用Prepro程序从ENDF格式的数据库选出箔片完整的原始数据, 利用专用处理程序在一定误差范围内(通常为0.1%)对原始数据进行线性化, 然后进行共振重造, 即根据ENDF格式的数据库提供的共振参数得到相应的共振截面, 并将得到的共振截面的贡献加到经线性化的截面中。再进行多普勒展宽, 即将经共振重造后的截面展宽到所需要温度下的截面。最后进行多群截面的加工处理, 即选取相应的权重谱, 将得到的点截面加工为所需的640群截面。

上面得到的群截面为箔片无限稀释条件下的群截面, 但是在许多时候, 由于实验条件的限制, 需要采用较厚的活化箔。当把有一定厚度的活化箔放置在中子场中照射时, 由于该活化箔的某些能区中子吸收截面很大, 此能区中子进入探测箔后, 很快被探测箔表面吸收, 正是由于这种自屏蔽效应, 探测箔的平均有效群截面会降低。探测箔的自屏蔽效应与探测箔的截面大小(特别是共振峰截面的大小)及探测箔的厚度有直接的关系。由于群截面的加工处理误差直接关系到解谱结果的准确度。因此需要对有一定厚度的活化箔群截面进行自屏修正, 具体就是将每个能群无限稀释条件下的群截面乘以一个自屏蔽因子, 对于第j群自屏蔽因子 G_j 的值是

完全由探测片性质决定的, 在各向同性的中子场中, 可得到

$$G_j = \frac{1}{\tau_j} \left[\frac{1}{2} - E_3(\tau_j) \right], \quad (6)$$

其中, τ_j 为以吸收长度为单位的探测片厚度, $\tau_j = t \Sigma_{a,j}$, t 为探测箔的厚度(cm), $\Sigma_{a,j}$ 为探测箔材料第j群的宏观吸收截面(cm^{-1}), E_3 为指数积分。根据上式就可以解出有一定厚度的活化箔片的有效群截面。以In箔为例, 图2分别给出了无限稀释的In箔和1.5 mm厚In箔的 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 核反应有效群截面。

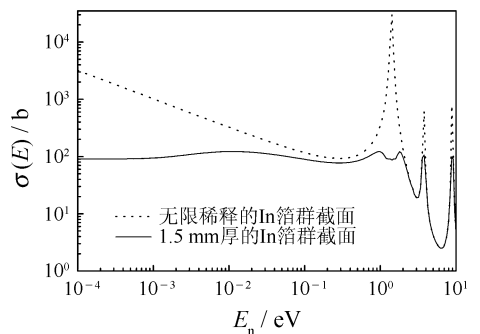


图2 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 核反应群截面的自屏修正

4.2 数据处理结果

本次解谱的中子能区是 10^{-10} —20 MeV, 共分为640个能群, 在热区和中能区内能群的个数较多, 在激发函数比较平滑的快区能群个数较少。根据式(2)可以计算出各个探测箔的活化率(见表2), 然后在利用已经加工出来的各个箔片的有效群截面和

表2 实验测量活化率与计算的活化率对比

核反应	箔片质量/g	活化率实 验值/(s ⁻¹)	SAND-II 迭代法		MSIT迭代法	
			活化率计算值 /s ⁻¹	偏差 (实验/计算)	活化率计 算值/s ⁻¹	偏差 (实验/计算)
²³ Na(n, γ) ²⁴ Na	2.557 9	4.58×10 ⁻²²	4.48×10 ⁻²²	1.022 3	4.49×10 ⁻²²	1.020 0
⁵⁵ Mn(n, γ) ⁵⁶ Mn	4.030 0	8.46×10 ⁻²¹	8.09×10 ⁻²¹	1.045 7	8.19×10 ⁻²¹	1.033 0
¹¹⁵ In(n, γ) ¹¹⁶ In	1.191 3	1.19×10 ⁻¹⁹	1.16×10 ⁻¹⁹	1.025 8	1.15×10 ⁻¹⁹	1.034 7
¹⁹⁷ Au(n, γ) ¹⁹⁸ Au	0.574 3	9.62×10 ⁻²⁰	1.03×10 ⁻¹⁹	0.934 0	1.03×10 ⁻¹⁹	0.934 0
⁵⁶ Fe(n, p) ⁵⁶ Mn	13.199	2.62×10 ⁻²³	2.64×10 ⁻²³	0.992 4	2.63×10 ⁻²³	0.996 2

初始输入谱即可利用SAND-II和MSIT解谱方法解出最后的中子能谱。将解谱的结果带入式(3)，可以计算出各个箔片活化率计算值，并将其与实验值进行比较(见表2)。图3给出了SAND-II和MSIT的最后解谱结果。

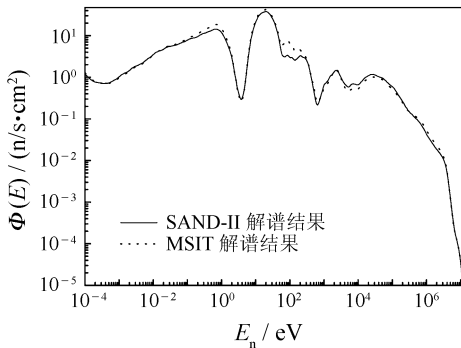


图3 SAND-II 和MSIT迭代法解出的待测点中子能谱

4.3 误差分析及结果讨论

用活化法测量中子能谱的误差来源主要有以下4个方面：

(1) 箔片的活化率实验值测量误差，这方面的误差包括主要包括以下4个方面：1) 与探测箔核子数计算有关的误差，包括箔片称重、同位素含量及丰度的参考数据不准确等引入的误差，通常该项因素对核反应率测量结果的影响小于0.5%；2) 与时间有关的误差，包括辐照时间、冷却时间、测量时间的计时不准确以及谱仪的死时间及修正引入的误差；3) 与活性测量及计算有关的误差，包括γ谱仪效率刻度误差、光电峰面积计算误差、光电峰计数统计误差、γ谱仪不稳定等引入的误差，这方面的误差在0.5%—7%之间；4) 与衰变纲图有关的误差，包括γ射线的强度与分支比、半衰期等引入的误差，此项误差为2%。故一般情况下实验活化率的

测量误差大约在3%—10%之间。

(2) 群截面引起的误差，这个误差包括两部分：1) 所选用的评价数据本身的误差；2) 群截面加工处理过程中引入的误差。对于前者核数据的协方差数据能够给出核数据误差的完整信息，可以将ENDF格式的协方差文件转换为640群的群截面协方差文件，图4给出了加工得到的¹¹⁵In(n, γ)^{116m}In核反应的640群截面误差。群截面加工处理过程中引入的误差，包括群截面加工处理所采用的权重谱的误差，群内单能近似所引入的误差，有一定厚度的活化箔自屏效应修正引入的误差等。上述因素对每一群的影响是不一致的，通常在具有共振峰截面附近误差较大。

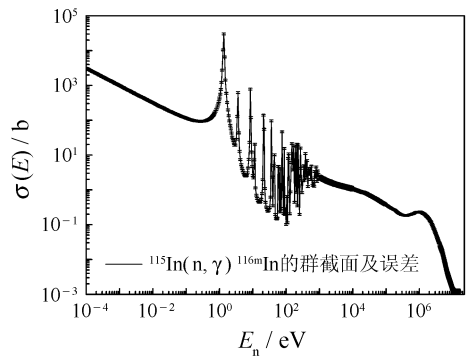


图4 ¹¹⁵In(n, γ)^{116m}In反应的群截面及其误差

(3) 初始谱引入的误差，本实验的解谱过程是将MCNP4C^[9]的模拟谱作为初始谱的。由于在模拟过程中没有好的符合实际中子源的中子能谱，故用ISO-8529号标准Am-Be中子源能谱做为模拟用的中子源谱能谱，这样就会引入一定的误差。在活化箔片灵敏区域覆盖较弱的中子能区，最后的解谱对初始谱有很大的依赖，这时初始谱的准确程度直接影响着最后解谱的精度。

(4) 解谱过程中引入的误差。解谱过程即为谱

调整过程, 根据提供的各活化箔的核反应率和核反应截面, 在初始输入谱的基础上进行调整。由于解谱结果的不唯一性, 为了使解谱结果尽量逼近真实值, 使解谱结果的不确定度尽可能小。在选用活化箔方面, 应尽量选用一组搭配较好的活化箔, 使待测的能谱段中活化箔的灵敏能区能均匀分布。

从解谱过程中和图3的解谱结果可以看出:

1) 在 $10^0—10^4$ eV之间中子谱出现振荡, 主要是由于在本次实验中, 所采用的(n, γ)活化片在此能区的反应截面有强烈的共振峰, 迭代结果谱中难免会出现一定的起伏。另外, 实验中所采用的活化箔片数目也比较少, 在此低能段无法提供详细的中子能谱信息, 若此处(n, γ)反应的截面出现峰值, 则对应谱上出现一段下凹成分, 因此在实验中选用更多的活化箔有助于提高解谱的准确度。2) 本实验中4个(n, γ)反应的灵敏区域只能覆盖0—1 MeV的解谱能区, 在大于1 MeV的能区, 由于待测场点的快中子注量率很低很难使一些常用于在此能区的活化箔片较好地活化, 最后只有 $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$ 一个活化反应来参与解谱, 所以在这一能区的中子场信息主要依靠初始谱。3) 由于Fe中含有Mn杂质, 而Mn通过 $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ 反应也会生成 ^{56}Mn , 干扰了原有的核反应, 从而使 $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$ 的活化率实验值偏大, 最后解谱的结果在其灵敏区域(4.2—11 MeV)也会偏大。所以最后解出的在大于1 MeV能区的中子能谱是非常初步的, 仅供参考。总之, 根据解谱结果可以看出, 在中子活化在线分析系统样品处的中子能谱主要以中能中子和热中子为主, 这也说明图1的慢化体能够达到较好的慢化效果。

4.4 解谱的不确定度分析

对于活化法解谱引入的不确定度, 可采用蒙特卡罗(MC)方法进行分析处理, 其基本过程为: 根据各活化箔活化率的测量误差, 以及各活化箔核反应截面的不确定度, 通过MC方法按随机抽样方式抽取偏差加上原活化箔活化率及活化箔核反应截面组成新的活化箔活化率及各活化箔核反应截面, 进行迭代解谱的不确定度计算。根据上述分析方法, 在原SAND-II解谱程序的基础上, 编写了相应的MC谱误差分析程序, 最后SAND-II解谱各能群的相对误差如图5所示。从图中可以看出, 在(n, γ)反

应的共振区($10^0—10^3$ eV)最后解谱的不确定度较大, 这说明群截面在共振峰附近误差较大。

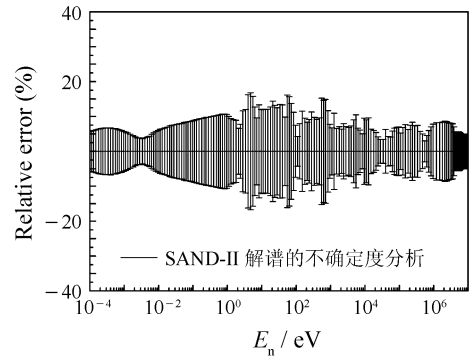


图5 SAND-II解谱的不确定度

参考文献 (References):

- [1] Ding Dazhao, Xie Chuntang, Zhao Zhixiang, *et al.* Neutron Physics — Principle, Method and Application. Beijing: Atomic Energy Press, 2001, 928—934(in Chinese). (丁大钊, 叶春堂, 赵志祥等. 中子物理学——原理、方法与应用. 北京: 原子能出版社, 2001: 928—934.)
- [2] Liu Shuhuan, Chen Weishi, A Jingye, *et al.* Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 2002, 22(4): 374(in Chinese). (刘书焕, 陈伟时, 阿景焯等. 核科学与工程, 2002, 22(4): 374.)
- [3] Liu Mantian, Long Xianguan, Peng Xiufeng, *et al.* Journal of Sichuan University (Natural Science Edition), 1995, 32(3): 311(in Chinese). (刘慢天, 龙先灌, 彭秀峰等. 四川大学学报(自然科学版), 1995, 32(3): 311.)
- [4] Zheng Chun, Wu Jianhua, Li Jiansheng, *et al.* Nuclear Power Engineering, 2004, 25(1): 93(in Chinese). (郑春, 吴建华, 李建胜等. 核动力工程, 2004, 25(1): 93.)
- [5] Jonah S A, Ibikunle K. Nucl Instr and Meth, 2003, A501(2—3): 514.
- [6] Berg S, McElroy W N. A Computer-Automated Iterative Method for Neutron Flux Spectra Determination by Foil Activation Atomic. IV: Reference Spectrum Library for SAND II, AFWL-TR-67-41, September 1967.
- [7] Doroshenko J J, Kraitov S N, Kuznetsova T V, *et al.* Nucl Tech, 1977, 33: 297.
- [8] Zhang Feng, Zhang Gaolong. Atomic Energy Science and Technology, 2006, 40(4): 480(in Chinese). (张锋, 张高龙. 原子能科学技术, 2006, 40(4): 480.)
- [9] Briesmeister J F. MCNP™-A General Monte Carlo N-particle Transport Code, Version 4C; Los Alamos National Laboratory; LA-13709-M 2000.

Neutron Spectrum Measurement with Activation Method in Sample Place of On-line Neutron Activation Analysis System^{*}

WANG Song-lin^{1, 1)}, KONG Xiang-zhong¹, DENG Yong-jun², TUO Fei¹,

WANG Qi¹, WEI Jin-feng¹, LI Yong-ming¹

(1 *School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China;*

2 *Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of
Engineering Physics, Mianyang 621900, Sichuan, China*)

Abstract: The neutron spectrum in sample place of on-line neutron activation analysis system was measured with multiple foil activation technique. According to the neutron fluence level of measuring request, 5 kinds of non-fission nuclear material foils were selected, of which 4 were sensitive to thermal energy region and intermediate energy region, and 1 was sensitive to fast energy region. By measuring the foil activity, the neutron spectrum that was needed to measured was unfolded with the iterative methods SAND-II and MSIT. Meanwhile, the process of producing and modifying group cross section were analysed amply. The main factors which have influence on the accuracy of the solution were studied. The discussion for solution was done simply, and the uncertainty of solution was analysed by using the Monte Carlo method.

Key words: neutron spectrum; SAND-II iterative method; group cross section

^{*} Received date: 17 Jun. 2008; Revised date: 26 Aug. 2008

1) E-mail: rnazhu@163.com