

Pu 材料 γ 能谱分析软件 CMGA2.0

徐子骏, 王思广*

(北京大学 物理学院及核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

摘要: 在 92~112 keV 区间内, Pu 材料的多通道 γ 能谱共包含 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 和 ^{241}Am 自发衰变发出的 8 条 γ 射线和 29 条 X 射线。CMGA 通过分析该区间能谱, 可给出样品中 Pu 同位素丰度。升级后的 CMGA (2.0 版) 对 2 例样品 6 次重复测量的能谱进行分析, 其给出的 ^{240}Pu 与 ^{239}Pu 含量的比值分别为质谱分析结果的 1.010 ± 0.008 和 0.995 ± 0.011 。通过对比 CMGA2.0 使用不同本底描述方法得到的 92~105 keV 区间能谱拟合图, 可看出双线性积分步本底函数可更好地描述复杂重峰下的本底。

关键词: Pu 同位素丰度; 多通道 γ 能谱; 非破坏分析; 本底

中图分类号: O657.62; O571.23 文献标志码: A 文章编号: 1000-6931 (2010) S0-0657-04

CMGA2.0—A Code to Assay Abundances of Plutonium Isotopes With γ -ray Spectrum

XU Zi-jun, WANG Si-guang*

(School of Physics and State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology,
Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: A plutonium multi-channel γ -ray spectrum at 92 to 112 keV contains 8 γ -ray lines and 29 X-ray lines which are decayed from ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu and ^{241}Am . CMGA can provide isotopes abundances of a sample by analyzing its spectrum in this region. After unfolding γ -ray spectra of two samples (each sample has been measured 6 times), the value of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ given by CMGA2.0 normalized to that measured with mass spectrum method is 1.010 ± 0.008 for sample 1 and 0.995 ± 0.011 for sample 2, respectively. Precision of the results was comparable with that from MGA and FRAM. Comparing the different fitting results from CMGA2.0 with different methods for describing the background shape, it is found that bilinear step background method can accurately describe the background shape in the multi-peak region.

Key words: plutonium isotopes abundances; multi-channel γ -ray spectrum; non-destructive assay; background

Pu 是一种特殊的核材料, 被严格控制。材料的同位素丰度作为材料性质的重要指标之一, 需精确测量。质谱法或放射化学法虽可精确地给

出各组分的含量, 但需预先取样, 且分析周期长, 无法现场快速分析。又因 Pu 有剧毒, 故取样分析过程可能存在巨大安全隐患。通过

收稿日期: 2010-06-30; 修回日期: 2010-09-03

基金项目: 高等学校博士学科点专项科研基金资助项目 (20070001008); 国家自然科学基金资助项目 (10775006, 10979010); 国家基础科学人才培养基金资助项目 (J0730316)

作者简介: 徐子骏 (1991—), 男, 江西波阳人, 物理学专业

*通信作者: 王思广, E-mail: siguang@pku.edu.cn

析核材料自发衰变的特征 γ 能谱而得到同位素丰度的方法可克服以上两大问题。此方法无需取样,属于“非破坏分析”,能最大程度上保障操作人员的安全;整套方法仅需一套 HPGe 多通道谱仪系统和相应的解谱软件,便可实现现场快速分析。该方法的难点集中在解谱软件的开发上。

MGA^[1]和 FRAM^[2]是两款美国著名的解谱软件,可从 γ 能谱中精确解出材料中同位素的信息。在已有工作基础上开发的 CMGA2.0 软件^[3],通过分析能谱的 92~112 keV 区间,也可给出材料中 ²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu 和 ²⁴¹Am 的相对

含量。对于低损耗样品,通常 ²⁴⁰Pu 含量仅次于 ²³⁹Pu,能否精确给出两者含量的比值是衡量分析结果准确性的关键。对于同样光谱数据,当前 CMGA2.0 给出的 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 的分析结果的精度可达到 MGA 和 FRAM 的同等水平。

1 CMGA2.0 工作原理

钚样品在 92~112 keV 能区内包含 8 条 γ 射线和 29 条 X 射线。图 1 为 CMGA2.0 对该区间能谱的解谱图。

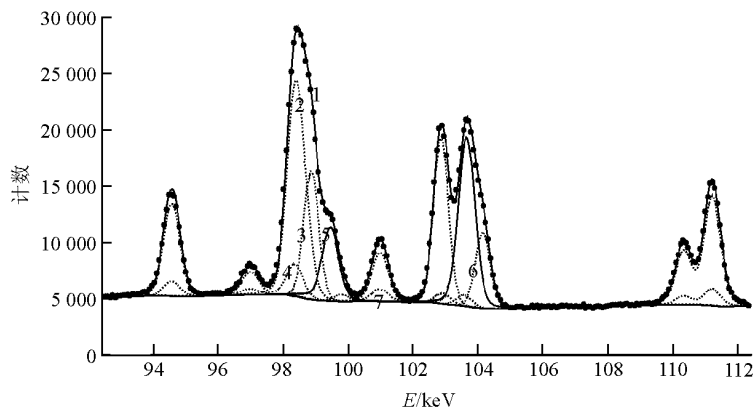


图 1 Pu 材料 92~112 keV 能谱的 CMGA2.0 解谱图

Fig. 1 Plutonium spectrum unfolded by CMGA2.0 in the region of 92-112 keV

黑色圆点为实测数据点,曲线 1 为总拟合曲线,曲线 7 为 CMGA2.0 给出的本底线,介于这两条线之间的各个峰形曲线是由 CMGA2.0 解谱给出(分别对应各核素的 γ 射线或 X 射线),总拟合曲线是本底线与全部峰形曲线的叠加

1.1 谱分析基本原理^[4-5]

核素 i 的第 j 条射线的净峰面积可表示为:

$$A_{ij} = N_i \lambda_i B_{ij} \epsilon_{ij} t \quad (1)$$

其中: A_{ij} 为核素 i 的第 j 条谱线的峰面积; N_i 为核素 i 的原子数; λ_i 为核素 i 的衰变常量; B_{ij} 为核素 i 在 j 峰处的分支比; ϵ_{ij} 为核素 i 在 j 峰处的探测效率; t 为测量时间。由式 (1), 两核素 n 和 m 的相对组分可表示为:

$$N_n/N_m = (A_{nj}/A_{mj}) (\lambda_m/\lambda_n) (B_{mj}/B_{nj}) (\epsilon_{mj}/\epsilon_{nj}) \quad (2)$$

衰变常量 λ 和分支比 B 可查表得到^[6-7], 通过解谱得到 A_{nj} 、 A_{mj} 和 ϵ_{nj} 、 ϵ_{mj} , 从而算出各组分相对含量。

1.2 分析区间

对低损耗 Pu 样品,需测量 ²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、²⁴²Pu 和 ²⁴¹Am 6 种核素的含量。²⁴²Pu 含量一般较少且没有足够强的特征谱线,无法从 γ 能谱中解出,可用经验公式估算^[8]。92~105 keV

是 Pu 能谱中很复杂且很重要的区域,能否分析该区间是评判解谱软件能力的重要依据。该区间内能谱的特点是: 1) 核素齐全,要分析的 5 种核素在该区间内都有较强的特征谱线; 2) 分支比大,最关心的 ²⁴⁰Pu 核素的 104.24 keV 峰分支比是 160.28 keV 峰(这是 104.24 keV 峰之后唯一可用来分析 ²⁴⁰Pu 的谱线)分支比的 17.4 倍,谱线越强,测量精度越高。因此, MGA 分析的重点落在此区间, FRAM (Version 4) 也加入了对该区的分析。CMGA2.0 将分析区间定为 92~112 keV 也是同样原因。而处理该区间的难点在于: 1) 谱线数量众多, CMGA2.0 共使用以上 5 种核素自发衰变发出的 8 条 γ 射线和 29 条 X 射线的数对 92~112 keV 能谱进行拟合; 2) 单能谱线的探测展宽造成邻近峰互相重叠,从图 1 中可看出, 103.75 keV 峰与 104.24 keV 峰重叠严重,精确剥离此 2 峰是得到可靠结果

的前提。以上原因导致 92~105 keV 成为极其复杂的“重峰区”(图 2, 图中计数为计数通道宽度 0.075 1 keV 内的计数, 图 3 同), 区间内每个峰都与周边的峰有重叠; 区间内各通道的计数都包含来自本底与射线峰贡献。这给重峰分解和本底扣除带来巨大困难。

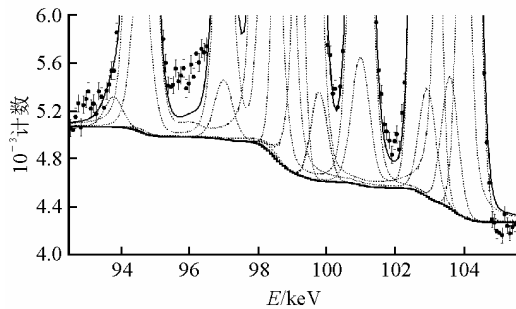


图 2 平台积分步本底

Fig. 2 Flat step background

圆点为实测数据, 曲线为拟合峰形, 最下面的曲线为 CMGA 给出的本底线, 96 keV 处拟合曲线明显低于实测数据

1.3 重峰分解

使用响应函数描述射线峰的方法可有效剥离重峰。CMGA2.0 使用 Gauss 函数描述 γ 射线, Voigtian 函数描述 X 射线 (Voigtian = Gauss \otimes BreitWigner, 其中, Gauss 项表征探测器展宽, 等价于描述 γ 射线使用的 Gauss 函数; 而 BreitWigner 项描述 X 射线的本征宽度)。整个区间内所有 Gauss 峰(以及 Voigtian 中的 Gauss 项)的半高宽可用式 (3) 描述^[4]:

$$FWHM_j = \sqrt{C_0 + C_1 E_j} \quad (3)$$

式中: $FWHM_j$ 为 j 峰的半高宽; C_0 、 C_1 为常数, 由拟合确定; E_j 为 j 峰的能量。

1.4 本底扣除

本底扣除对(净)峰面积的计算很重要。单峰下本底常用一次或二次曲线描述; 而重峰下可采用平台积分步本底函数或双线性积分步本底函数^[2,4]。平台积分步本底的核心思想是每道的本底阶跃正比于该道中净峰计数。在计算 92~105 keV 的本底时, 因区间太宽, 故使用一次、二次函数或平台积分步本底函数都会引入较大误差(图 2)。CMGA2.0 中采用双线性积分步本底函数描述本底^[2], 可得到较好拟合结果。其基

本算法是: 本底由连续变化的平滑部分和阶跃部分构成, 阶跃部分的单道阶跃大小正比于道中净峰计数, 平滑部分在各道的斜率变化也正比于该道中的净峰计数。各道内净本底为:

$$B(x) = B_0 + \sum \delta B(x) + \sum K(x) \Delta x \quad (4)$$

其中: x 为道数; B_0 为待分析区间最左侧本底高度; $\sum \delta B(x)$ 为本底阶跃部分的计数; $\delta B(x)$ 为 x 道内阶跃, 正比于 x 道内的净峰计数, 且必须为负值才符合物理图像; $\sum K(x) \Delta x$ 为本底平滑部分的计数, $K(x)$ 为斜率, 其变化也正比于 x 道内的净峰计数, Δx 取 1。设 x_0 、 x_1 分别为待分析区间的最左、右侧道数, 则 $B(x_0)$ 与 $B(x_1)$ 为待分析区间左右两侧的本底高度, $B(x_0) = B_0$, $K(x_0)$ 与 $K(x_1)$ 为待分析区间左右两侧的本底平滑部分的斜率。由式 (4), 只要预先给出 $B(x_0)$ 、 $B(x_1)$ 、 $K(x_0)$ 和 $K(x_1)$, 就可通过多次迭代计算出 $\delta B(x)$ 与 $K(x)$, 从而得到整个区间内的 $B(x)$ (平台积分步本底是双线性积分步本底在 $K(x)$ 恒为 0 时的特殊情况)。对于 Gauss 峰, 4 倍半高宽之外区域可认为不存在峰信号, 即为纯本底区; 对于 Voigtian 峰, 只要离得足够远, 峰信号也可忽略。故可通过分析 92.5 keV 左侧、105.5 keV 右侧的纯本底区得到 92~105 keV 两侧本底的高度和斜率。图 3 为 CMGA2.0 使用双线性积分步本底对实测数据的拟合图, 对比图 2、3 可知, 其在 96 keV 处的拟合结果好于平台积分步本底的结果。

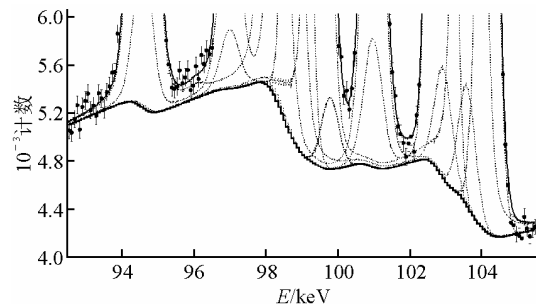


图 3 双线性积分步本底

Fig. 3 Bilinear step background

圆点为实测数据, 曲线为拟合峰形, 最下面的曲线为 CMGA2.0 给出的本底线, 96 keV 处拟合曲线可与实测数据相吻合

1.5 效率曲线

CMGA2.0 中使用经验式 (5) 描述效率:

$$\eta = a_0 \exp(-a_1/E) \quad (5)$$

其中： a_0 与 a_1 为待拟合系数。从上式可看出，CMGA2.0忽略了不同核素的相同能量射线的探测效率的差异，即假设样品内各核素均匀分布。MGA和FRAM中使用的效率曲线基于物理模型，考虑了Pu材料的自吸收、包装材料与挡板的吸收、探测器的本征效率等^[1-2]。由于CMGA2.0分析的能谱范围较窄（此处问题不同于本底扣除），该简单的经验公式可将系统误差控制在一定范围之内。

2 实验结果与讨论

利用HPGe探测器谱仪，对2个已知²⁴⁰Pu与²³⁹Pu含量比值（由质谱分析得到）的样品进行6次重复测量，每一能谱各采样10 000 s。对于这2组能谱数据，分别使用MGA、FRAM和CMGA2.0进行分析，将3者给出的²⁴⁰Pu与²³⁹Pu的质量比对质谱结果归一化，结果列于表1。

1号样品CMGA2.0给出的平均值比质谱值大1.0%，相对标准偏差为0.8%，单次分析结果对质谱结果最大偏离2.0%（N₁₂）；2号样品CMGA2.0给出的平均值比质谱值小0.5%，相对标准偏差为1.1%，单次分析结果最大偏离2.5%（N₂₅）。

表1 MGA、FRAM和CMGA2.0分析结果

Table 1 Results of MGA, FRAM and CMGA2.0

样品编号	MGA/MS	FRAM/MS	CMGA2.0/MS
N ₁₁	0.996	0.990	1.003
N ₁₂	1.007	0.978	1.020
N ₁₃	1.019	0.972	1.014
N ₁₄	1.010	0.990	1.009
N ₁₅	1.001	0.959	0.999
N ₁₆	1.038	1.018	1.018
平均	1.012	0.985	1.010
标准偏差	0.015	0.020	0.008
N ₂₁	1.005	0.989	0.994
N ₂₂	1.013	1.045	0.995
N ₂₃	1.014	1.057	1.004
N ₂₄	1.022	0.980	1.007
N ₂₅	1.001	1.028	0.975
N ₂₆	1.010	1.014	0.997
平均	1.011	1.019	0.995
标准偏差	0.007	0.030	0.011

注：N₁为1号样品，N₂为2号样品，MGA/MS、FRAM/MS和CMGA2.0/MS是MGA、FRAM和CMGA2.0计算结果分别对质谱结果归一化

由以上两组数据可看出，CMGA2.0给出的平均值对质谱值的偏离以及相对标准偏差都在2.0%之内，与MGA、FRAM处于同等水平。

3 结论

通过分析92~112 keV的能谱，CMGA2.0可较好地给出样品中Pu同位素相对含量。

感谢中国原子能科学研究院李泽和唐培家研究员对本工作长期的支持和帮助。

参考文献:

- [1] WANG T F. Past, present, and future of MGA++, LLNL-PRES-407782[R]. USA: Lawrence Livermore National Laboratory, 2008.
- [2] THOMAS E S, DUC T V. FRAM development history, code operation, capability and limitations, LA-UR-08-05887[R]. USA: Los Alamos National Laboratory, 2008.
- [3] 王思广, 冒亚军, 唐培家. CMGA: 一个利用铪的94~104 keV γ 和X射线非破坏分析其同位素丰度的软件[J]. 核技术, 2006, 29(4): 257-260.
WANG Siguang, MAO Yajun, TANG Peijia. CMGA: A code to assay abundances of plutonium isotopes non-destructively with γ and X-rays in 94-104 keV energy range[J]. Nuclear Techniques, 2006, 29(4): 257-260(in Chinese).
- [4] 田东风, 龚键, 伍钧, 等. 核材料 γ 特征谱的探测和分析技术[M]. 北京: 国防工业出版社, 2005: 80-151.
- [5] THOMAS E S. Plutonium isotopic composition by gamma-ray spectroscopy, LA-10750-MS[R]. USA: Los Alamos National Laboratory, 1986.
- [6] GUNNINK R, EVANS J E, PRINDLE A L. A reevaluation of the gamma-ray energies and absolute branching intensities of ²³⁷U, ^{238,239,240,241}Pu, and ²⁴¹Am, UCRL-52139[R]. USA: Lawrence Livermore Laboratory, 1976.
- [7] 刘运祚. 常用放射性核素衰变纲图[M]. 北京: 原子能出版社, 1982: 320-350.
- [8] THOMAS E S, THOMAS A K, DUC T V. Application guide to gamma-ray isotopic analysis using the FRAM software, report LA-14018[R]. USA: Los Alamos National Laboratory, 2003.