

中子场及 γ 射线自吸收 在 PGNAA 测量中的影响研究

程 璨, 贾文宝*, 黑大千, 单 卿, 凌永生, 张 焱

(南京航空航天大学 材料科学与技术学院, 江苏 南京 211106)

摘要:在中子活化瞬发 γ 射线分析(PGNAA)技术测量中,被测样品内部中子场分布及 γ 射线自吸收对测量结果有一定影响。针对一套水溶液样品中有害元素的检测装置,通过对两种效应统一考虑并进行了理论计算,建立了一套相应的理论修正模型,并将其应用于检测装置的蒙特卡罗模拟计算结果中。结果表明,经该理论模型修正后,样品中中子场分布及 γ 射线自吸收对分析结果所造成的影响得到了显著改善。

关键词:中子活化瞬发 γ 射线分析;中子场; γ 射线自吸收;修正模型

中图分类号:TL99 **文献标志码:**A **文章编号:**1000-6931(2014)S0-0802-05

doi:10.7538/yzk.2014.48.S0.0802

Study of Influence of Neutron Field and γ -ray Self-absorption on PGNAA Measurement

CHENG Can, JIA Wen-bao*, HEI Da-qian, SHAN Qing, LING Yong-sheng, ZHANG Yan

(College of Materials Science and Technology,

Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 211106, China)

Abstract: In PGNAA measurement, the distributions of neutron field and γ -ray self-absorption in samples have an influence on the measurement results. A corresponding correction model with two effects into consideration and a theoretical calculation were carried out with an aqueous solution element detection setup. The theoretical calculation was applied to measurement results of detecting device by Monte Carlo simulation. After modification on the theoretical model, the results show that influence of neutron field and γ -ray self-absorption on PGNAA measurement decreases.

Key words: prompt γ -ray neutron activation analysis; neutron field; γ -ray self-absorption; correction model

中子活化瞬发 γ 射线分析(PGNAA)技术
由于其非破坏性、在线原位测量、分析精度高

等特点,近年来被广泛应用于工业、环境、医药、军事等领域^[1-4]。PGNAA 技术利用中子

收稿日期:2014-06-03;修回日期:2014-08-13

基金项目:国家重大科学仪器设备开发专项资助项目(2013YQ040861);国家自然科学基金资助项目(11375087)

作者简介:程 璨(1992—),男,安徽巢湖人,硕士研究生,核技术及应用专业

* 通信作者:贾文宝, E-mail: jiawenbao@163.com

轰击被测物料的靶核,通过热中子俘获、非弹性散射等反应在极短的时间内($<10^{-14}$ s)放出特征 γ 射线,通过识别特征 γ 射线和测量特征 γ 射线的强度即可定性和定量地识别大部分核素并分析其含量^[5]。在 PGNA 技术中,对大块样品进行分析时,由于中子场分布不均匀和 γ 射线自吸收效应,其产生的误差严重影响元素的定量分析,因此研究 PGNA 技术中大块样品测量时的修正对于进一步提高元素定量分析的准确度十分重要。目前,对于中子场和 γ 射线自吸收修正的研究主要有理论计算和蒙特卡罗模拟方法^[6-8]。但在这些研究中其都是将两个因素单独进行研究,而从其物理过程来看,中子场和 γ 射线自吸收两者是相互关联的。本文利用前期研究的一套水溶液检测装置^[9],对其中子场和 γ 射线自吸收进行统一修正计算。

1 修正计算公式推导

1.1 装置模型

装置结构示意图及几何示意图如图 1 所示,装置采用筒状结构,中子源位于装置中心空腔内,空腔外为水溶液样品腔,BGO 探测器位于装置最外侧紧贴桶外侧,装置半径为 16 cm,高度为 40 cm。

1.2 公式推导

源 S 发出的一束单能中子穿过距离 R 后在 A 点与附近体积元 dV 中的原子核相互作用,设单位立体角中子注量率为 ϕ_Ω ,则在单位时间、单位立体角与体积元内的原子核产生的 γ 射线计数为:

$$dn(\gamma) = \phi_\Omega d\Omega_1 e^{-\Sigma R} dy \frac{\rho}{M} N_A \sigma =$$

$$\frac{\phi_\Omega N_A \sigma \rho}{M} \frac{y e^{-\Sigma \sqrt{x^2+y^2+z^2}} dx dy dz}{(\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3}$$

其中: M 为样品核素的相对分子质量; N_A 为阿伏伽德罗常数; σ 为样品核素与该能量下中子产生特征 γ 射线的微分截面; Σ 为核素对该能量下中子的宏观吸收截面; ρ 为样品的密度。

当在 A 点产生能量为 E_γ 的特征 γ 射线后,穿过距离 l 打入到探测器上的 B 点被探测器所探测到。对于样品中的不同位置,产生的 γ 射线强度及到探测器的距离均不同。对于任一点 A,其与探测器的空间角 Ω_2 为:

$$\Omega_2 = \iint \frac{Z-z}{(\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3} dXdY$$

其中: X, Y, Z 分别为探测器面上面任一点坐标; x, y, z 为样品中的任一点坐标。因此探测器对样品的几何探测效率 k 可以定义为:

$$k = \iiint \frac{\Omega_2}{4\pi V} dV$$

则样品中任一点产生的能量为 E_γ 的特征 γ 射线穿过长度为 l 的距离后被探测器探测得到的 γ 射线计数为:

$$n_d(\gamma) = \int k e^{-\mu l} dn(\gamma) = \frac{\phi_\Omega N_A \sigma \rho}{4\pi V M} \cdot \iiint \iiint ((Z-z) y e^{-\Sigma \sqrt{x^2+y^2+z^2}} \cdot e^{-\mu \sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2}}) / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3 \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3) \cdot dx dy dz dXdY$$

其中, μ 为样品对能量为 E_γ 的 γ 射线的线性阻止本领。对于不考虑中子衰减造成的中子场分布改变和 γ 射线自吸收过程,探测器得到的 γ 射线计数为:

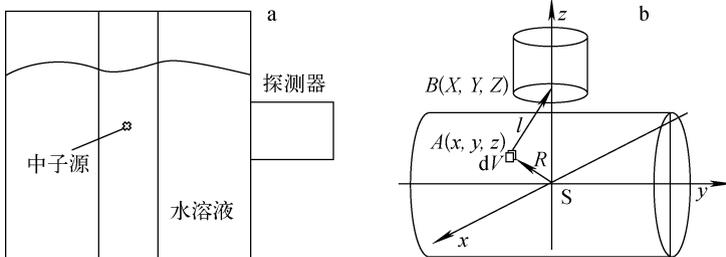


图 1 装置结构示意图(a)及几何示意图(b)

Fig. 1 Schematic diagrams of setup (a) and geometry (b)

$$n'_d(\gamma) = \frac{\phi_{\Omega} N_A \sigma_{\rho}}{4\pi VM}.$$

$$\iiint\limits_V (Z-z)y / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3) \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3 \cdot dx dy dz dX dY$$

因此,统一修正因子的计算公式为:

$$f = \left(\iiint\limits_V (Z-z)ye^{-\Sigma\sqrt{x^2+y^2+z^2}} \cdot e^{-\mu\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2}} / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3) \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3 dx dy dz \cdot dX dY \right) / \left(\iiint\limits_V (Z-z)y / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3) \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3 \cdot dx dy dz dX dY \right)$$

对于中子场影响因子,其从物理过程上与 γ 射线的自吸收无关,因此其表达式为:

$$f_n = \frac{\iiint\limits_V \frac{ye^{-\Sigma\sqrt{x^2+y^2+z^2}}}{(\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3} dx dy dz}{\iiint\limits_V \frac{y}{(\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3} dx dy dz}$$

而对于 γ 射线自吸收过程,其与中子场修正存在位置上的关系,因此其表达式为:

$$f_{\gamma} = \left(\iiint\limits_V (Z-z)ye^{-\Sigma\sqrt{x^2+y^2+z^2}} \cdot e^{-\mu\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2}} / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3) \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3 \cdot dx dy dz dX dY \right) / \left(\iiint\limits_V (Z-z) \cdot ye^{-\Sigma\sqrt{x^2+y^2+z^2}} / ((\sqrt{x^2+y^2+z^2})^3) \cdot (\sqrt{(X-x)^2+(Y-y)^2+(Z-z)^2})^3 \cdot dx dy dz dX dY \right)$$

2 计算结果和分析

2.1 理论计算

在该装置模型尺寸下,利用推导出的修正因子计算公式对中子场修正因子 f_n 和 γ 射线自吸收因子 f_{γ} 进行计算,得到的结果如图2所示。图2a为中子宏观吸收截面与中子场修正因子的关系,从图2a中可看出,随着中子宏观截面的增加, f_n 不断下降,这是由于随着中子宏观吸收截面增加,样品对中子的衰减作用增强造成的。对于 γ 射线自吸收因子,由于其与中子场修正存在关联,因此要首先确定样品的中子宏观吸收截面才可以给出其 γ 射线自吸收因子,图2b为样品为水溶液时, f_{γ} 与 γ 射线能量的关系,可看出, f_{γ} 随着能量的增加而增大,这是由于水溶液对 γ 射线的线性阻止本领随着能量增加而减弱造成的。

2.2 蒙特卡罗模拟

采用蒙特卡罗模拟软件MOCA构造实验平台,并对不同样品进行模拟检测。中子源选取铯钐中子源,选取热中子吸收截面很大的镅元素作为目标检测元素,表1所列为镅元素部分特征 γ 射线能量和截面,镅元素的质量百分比分别为0.1%、0.2%、0.3%、0.4%、0.5%。对纯水和5种浓度的镅元素溶液进行模拟实验,结果如图3所示。图3a为模拟得到的能谱图,镅元素0.558 MeV下的特征峰十分明显,图3b为扣除本底后,各镅元素浓度溶液与其对应的0.558 MeV特征峰计数的关系。理论上,其特征峰计数与浓度关系是呈线性关系的,但由于中子场分布改变和 γ 射线自吸收影响,导致两者的线性关系较差。

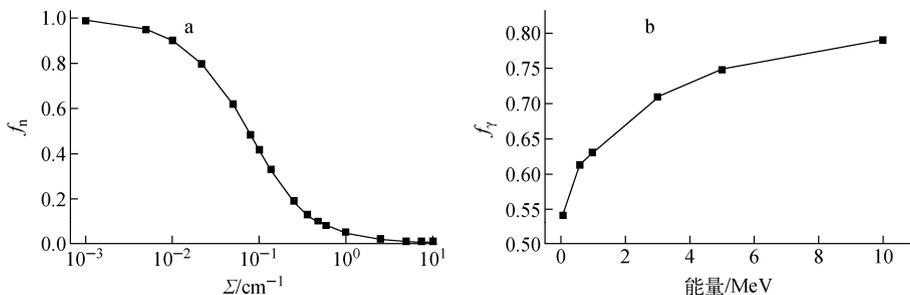


图2 中子场(a)和 γ 射线(b)修正因子计算结果

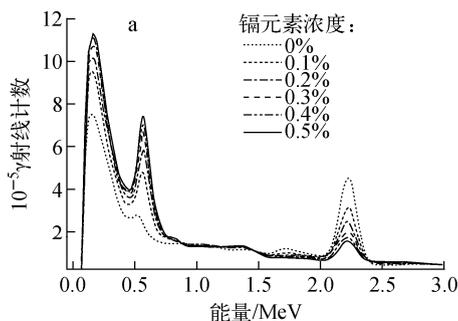
Fig. 2 Calculation results of neutron field (a) and gamma ray (b) correction factors

表 1 镉元素部分特征 γ 射线能量和截面Table 1 Energy and partial cross-section of neutron capture γ -rays of cadmium

能量/MeV	10^{24} 截面/cm ²
0.245	274
0.558	1 860

2.3 分析讨论

由图 3 可知,镉元素浓度与其特征峰计数线性关系较差,其中 R^2 为 0.943。在此条件



下,对其进行中子场和 γ 射线自吸收的修正,结果如图 4 所示,图 4a 为修正后的能谱图,图 4b 为特征峰下计数与镉元素浓度关系,从图 4 可看出,经过修正后,0.558 MeV 特征峰下计数与镉元素浓度的线性相关系数 R^2 为 0.992,通过统一修正计算公式对其修正后线性关系得到提高。该装置的中子场和 γ 射线自吸收影响可通过该修正计算公式得到修正,利用该修正公式在一定的精度范围内也可快速地对其他一些规则的几何体进行修正。

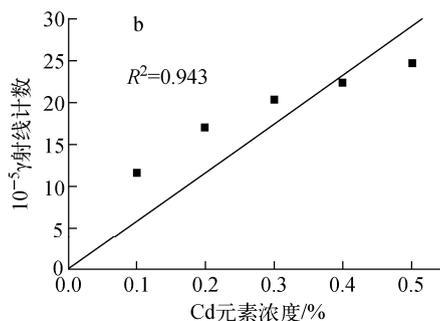


图 3 不同浓度镉元素的模拟结果

Fig. 3 Simulation result of cadmium element of different concentrations

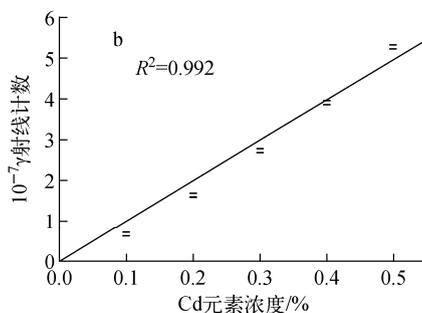
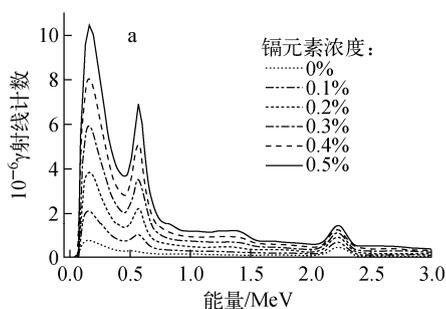


图 4 不同浓度镉元素的修正结果

Fig. 4 Correction result of cadmium element of different concentrations

3 结语

PGNA 技术中大块样品中子场和 γ 射线自吸收会对分析结果带来较大误差,且两种影响因子存在一定的关联,在修正过程中对两种效应统一修正。利用中子场和 γ 射线自吸收修正公式对水溶液有害元素检测装置进行修正,通过对 MOCA 模拟得到的实验数据进行修正,结果显示,利用该修正公式可很好地对中子场和 γ 射线自吸收造成的误差进行修正。同时由于在模拟计算过程中所用的中子源能量不是

单能的,在计算过程中简化了中子的宏观吸收截面计算,造成一定的误差。另外,理论计算中未考虑中子散射和共振吸收等其他因素,使其最后修正结果依然存在一定的误差。对其他影响因子的修正有待进一步研究。

参考文献:

- [1] 张兰芝,倪邦发,田伟之,等.瞬发 γ 射线中子活化分析的现状与发展[J].原子能科学技术,2005,39(3):282-288.

- ZHANG Lanzhi, NI Bangfa, TIAN Weizhi, et al. Status and development of prompt γ -ray neutron activation analysis[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2005, 39(3): 282-288(in Chinese).
- [2] 刘雨人, 谢亚丽, 赵云枝, 等. 多元素中子俘获瞬发 γ 射线分析方法的研究[J]. 核技术, 1998, 21(7): 385-391.
- LIU Yuren, XIE Yali, ZHAO Yunzhi, et al. Development of multielement neutron-capture prompt γ -rays activation analysis method [J]. Nuclear Techniques, 1998, 21(7): 385-391(in Chinese).
- [3] 贾文宝, 黑大千, 徐爱国, 等. 基于 PGNA 技术的煤炭成分在线检测中样品重量的影响及修正 [J]. 原子能科学技术, 2005, 39(3): 282-288.
- JIA Wenbao, HEI Daqian, XU Aiguo, et al. Influence of sample weight in coal composition on-line analysis by PGNA[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2005, 39(3): 282-288(in Chinese).
- [4] 贾文宝, 徐忠锋, 苏桐龄, 等. 用于传输带上的中子测水系统的密度厚度补偿研究[J]. 兰州大学学报, 1999, 35(2): 89-92.
- JIA Wenbao, XU Zhongfeng, SU Tongling, et al. The study of thickness and density compensation of neutron measuring moisture system on conveyor belt[J]. Journal of Lanzhou University, 1999, 35(2): 89-92(in Chinese).
- [5] 杨剑波, 庾先国, 李哲, 等. 蒙特卡罗法确定水泥在线中子活化分析样品参数[J]. 金属矿山, 2010(4): 134-136.
- YANG Jianbo, TUO Xianguo, LI Zhe, et al. Cement sample parameters determination in on-line prompt gamma neutron activation analysis with Monte-Carlo method[J]. Metal Mine, 2010(4): 134-136(in Chinese).
- [6] FLEMING R F. Neutron self-shielding factors for simple geometrics [J]. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1982, 33(11): 1 263-1 268.
- [7] TZIKA F, STAMATELATOS I E. Thermal neutron self-shielding correction factors for large sample instrumental neutron activation analysis using the MCNP code[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2004, 213: 177-181.
- [8] NASRABADI M N, JALALI M, MOHAMMADI A. Calculation of thermal neutron self-shielding correction factors for aqueous bulk sample prompt gamma neutron activation analysis using the MCNP code [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2007, 263(2): 473-476.
- [9] JIA W B, HEI D Q, CHENG C, et al. Optimization of PGNA set-up for the elements detection in aqueous solution[J]. Science China Technological Sciences, 2014, 57(3): 625-629.