中子俘获反应截面在线测量技术研究

石 斌1,彭 猛2,张奇玮1,贺国珠1,*,周祖英1,唐洪庆1

(1.中国原子能科学研究院 核数据重点实验室,北京 102413;2.国防科技大学 文理学院,湖南 长沙 410000)

摘要:利用 γ 全吸收型 4π BaF₂ 探测装置,对中子俘获反应截面进行了在线测量。基于 HI-13 串列加速 器提供的脉冲化质子束,通过⁷Li(p,n)⁷Be 反应产生中子,构建了 keV 能区中子源实验条件,经屏蔽准 直后的中子轰击样品,应用 4π BaF₂ 装置在线测量(n, γ)反应复合核退激时释放的瞬发 γ 射线级联,测 量了 Au、C、Nb、空白等样品。通过计算⁹³Nb(n, γ)⁹⁴Nb 和¹⁹⁷Au(n, γ)¹⁹⁸Au两个反应的截面数据比值并 与文献数据比对,检验了 4π BaF₂ 探测装置和(n, γ)反应截面在线测量技术,为在中国散裂中子源 (CSNS)上顺利开展(n, γ)反应截面数据测量工作提供了技术支持。

关键词:γ全吸收型 4π BaF₂ 探测装置;中子俘获反应截面;在线测量技术

中图分类号:O571.55 文献标志码:A 文章编号:1000-6931(2018)09-1537-08 doi:10.7538/yzk.2017.youxian.0817

Online Method for Neutron Capture Reaction Cross-section Measurement

SHI Bin¹, PENG Meng², ZHANG Qiwei¹, HE Guozhu^{1,*}, ZHOU Zuying¹, TANG Hongqing¹

(1. Key Laboratory of Nuclear Data, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;
2. College of Liberal Arts and Sciences,

National University of Defense Technology, Changsha 410000, China)

Abstract: The γ -ray total absorption BaF₂ facility was used to measure the neutron capture reaction cross-section with high precision. An experimental neutron source condition of keV energy region was set up through the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction, based on the HI-13 tandem accelerator providing the pulsed proton beam. By using the total absorption BaF₂ facility and online method, the prompt γ -ray cascades were detected when the neutron bombarded sample after shielding and collimation. Samples of Au, C, Nb and the blank were measured. The facility was checked and the online method for the (n, γ) reaction cross-section measurement was tested by comparing the deduced reaction crosssection ratio of ¹⁹⁷Au(n, γ)¹⁹⁸Au to ⁹³Nb(n, γ)⁹⁴Nb with the reference data. It also provides technical support for the implementation of (n, γ) reaction cross-section meas-

网络出版时间:2018-04-25;网络出版地址:http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2044.TL.20180425.0959.006.html

收稿日期:2017-12-25;修回日期:2018-02-07

基金项目:国家自然科学基金资助项目(11675268,11605294)

作者简介:石 斌(1992一),男,河北保定人,硕士研究生,粒子物理与原子核物理专业

^{*}通信作者:贺国珠, E-mail: heguozhu818@126.com

urement at China Spallation Neutron Source (CSNS).

Key words: γ -ray total absorption BaF_2 facility; neutron capture reaction cross-section; online method

中子俘获反应截面数据是核天体物理[1]、 核能工程设计[2]、乏燃料处理[3]、屏蔽材料选 择[4]等研究的基础核数据,对其进行精确测量 具有重要意义。为此,中国原子能科学研究院 核数据重点实验室设计建造了一套 γ 全吸收型 4π BaF, 探测装置 GTAF^[5] (gamma-ray total absorption facility)。GTAF 具有时间响应快、 探测效率高(92%~95%)、能量分辨率较好(对 ¹³⁷Cs的 662 keV 特征 γ 射线能量分辨率约为 13%)、中子灵敏度低等特点[6],可对复合核退 激时释放出的瞬发 γ 射线进行高效率测量,进 而通过瞬发 γ 射线级联的能量加和谱分析得到 中子俘获反应的计数,用于核素辐射俘获反应 截面在线实验研究具有明显优势。本文基于 HI-13 串列加速器和 GTAF 对中子俘获反应 截面的在线测量技术进行研究,建立 keV 能区 的中子源实验条件,模拟和测量出射中子能谱, 计算不同样品的反应截面比值并与文献数据对 比,检验 4π BaF₂探测装置和 (n, γ) 反应截面在 线测量技术,为在 CSNS 上顺利开展 (n, γ) 反 应截面数据测量工作提供技术支持。

1 设备描述

中子俘获反应截面在线实验装置如图 1 所示。用 GTAF 测量样品发生俘获反应释放的瞬发γ射线级联。GTAF 几乎覆盖了 4π 立体角,因此退激的各条级联γ射线均被 BaF₂ 探测器单 元探测到;锂玻璃探测器放置在0°角、距靶头 1.595 m处(GTAF 探测器的后端),监视中子束 流强度;在系统的末端放置了1个中子捕集器。

1.1 HI-13 串列加速器及 keV 能区中子源实 验条件

1) HI-13 串列加速器

HI-13 串列加速器是我国 20 世纪 80 年代 建成的串列式静电加速器,端电压 13 MV,能 量连续可调。本实验在串列加速器的 R70 束 流支线管道终端开展。

2) keV 能区中子源实验条件

利用 HI-13 串列加速器提供的脉冲化质 子束,通过⁷Li(p,n)⁷Be 反应,建立 keV 能区 的中子源实验条件。⁷Li(p,n)⁷Be 反应的阈能 为1.881 MeV,当质子能量 E_p =2.25 MeV 时, 反应截面出现 1 个窄峰。为保障氢离子从离子 源到靶头的传输效率,质子束的能量最低不能低 于 7 MeV,这不满足⁷Li(p,n)⁷Be 反应产生准单 能中子的条件要求。为此在质子轰击锂靶之前, 用 Al 片降能,厚度为 280 μ m,质子能量降低到 2.55 MeV,出射中子的最高能量约为 840 keV。 质子在通过降能片之前为单能束流,通过降能片 后产生能量离散,用 SRIM 软件模拟计算,其半 高宽为 0.29 MeV。采用厚锂靶(厚度1 mm)、钽 窗(厚度 0.5 mm)的靶头设计如图 2 所示,由于锂 熔点低(180 ℃),因此采用水冷方式进行冷却。

基于⁷Li(p,n)⁷Be反应0°角出射中子能谱 的蒙特卡罗模拟结果如图3所示。模拟所用软 件为TARGET,入射单能质子能量为2.55 MeV, 天然固态金属锂(质量分数:⁷Li,93.5%;⁶Li, 6.5%)为靶材料。质子在HI-13串列加速器低



图 1 (n,γ)反应截面在线实验装置

能端的脉冲束束流强度约为 5 μ A,靶上束流可 达 1 μ A,实验时质子脉冲束的频率为 3 MHz, 脉冲宽度为 2 ns。



图 2 基于⁷Li(p,n)⁷Be反应中子源的靶头

Fig. 2 Target based on 7 Li(p,n) 7 Be reaction

虽然在阈值附近⁷Li(p,n)⁷Be反应出射中 子分布在向前方向的小角度内,非常利于在 0° 方向上得到较强的中子束流,但因为 GTAF 晶 体的横截面达2 000 cm²,⁷Li(p,n)⁷Be反应0° 以外方向的出射中子仍会打到 GTAF 探测器 上,形成极强的本底。为降低本底,进行了屏蔽 体和准直器设计^[7]。以含硼聚乙烯、铅砖等材 料建造屏蔽体,经过 MCNP 模拟,设计了平行 型准直孔结构的屏蔽体结构,如图 4 所示。



图 3 出別中丁配谙的家村下夕便抄 Fig. 3 Monte Carlo simulation of neutron spectrum



图 4 屏蔽体和准直器的几何结构 Fig. 4 Geometry of shield collimator

经屏蔽准直后,在样品处可得到坪顶直径 为2 cm的中子束斑,束斑内、外中子注量分布 的蒙特卡罗模拟结果如图 5 所示。

3) 锂玻璃探测器

中子注量监测用锂玻璃闪烁体探测器,包 括锂玻璃闪烁体(\$5.08 cm×0.95 cm,美国 Bicron公司,型号 GS20)、光电倍增管(法国 PHOTONIS公司,型号 XP2020Q)、分压器(美 国 ORTEC公司,型号 269)。前期实验对该探 测器的探测效率进行了模拟和刻度,效率曲线 描述参见文献[8]。

1.2 GTAF 探测系统

GTAF的核心是一内腔半径为10 cm、厚





度为 15 cm 的 BaF₂ 晶体球壳,由 12 块五棱锥 和 30 块六棱锥组成,留出相对方向的两个位置

供中子束进出,实际上 GTAF 由 40 个独立的 BaF₂ 探测器单元组成。

1) BaF₂ 探测器单元

BaF₂ 探测器单元主要由晶体、光电倍增 管、分压器等封装在一起组成。BaF₂ 晶体有两 种发光成分:一种是慢成分,其光衰减时间为 620 ns,波长峰值为 325 nm;另一种为快成分, 其光衰减时间为 0.6 ns,波长峰值为 225 nm, 这使得 BaF₂ 探测器具有非常好的时间分辨 率,有利于 GTAF 使用飞行时间(TOF)方法 确定中子能量^[9-10]。晶体由北京玻璃研究院 生产提供,是从直径 14 cm、厚度 15 cm 的圆 柱型粗胚中切割出来的。光电倍增管是法国 PHOTONIS 公司的 XP4508B,分压器是英国 ELECTRON TUBES 公司的 C638。通过铝合 金套筒将晶体、光电倍增管等封装在一起,组成 独立的探测器单元,固定在笼型机械支架上,构 成 GTAF。

2) FADC 脉冲波形数字化系统

GTAF 的信号测量采用基于 FADC 的数字 化脉冲波形采集技术。FADC 采用瑞士 Acqiris 公司生产的 DC217A 卡,采样率为 1 GHz,分 辨率为8 bit,每块采集卡有 4 个通道,采用 PCI 总线,数据传输速度为 100 MB/s。采集卡机箱 与计算机之间通过 PXI/PCI-8570 网卡及千兆 网线连接^[11-13]。与传统电子学方法相比,大幅 简化了电子学线路。可进行全波形保存,实现 粒子的全信息测量,有利于数据的离线分析。

40 路 BaF₂ 闪烁体探测器的阳极信号分别 经前置放大器、长度为 50 m 的差分传输线,接 入测量端的扇入扇出电路。每路输出正负两个 信号,正信号输送给触发判选系统,负信号输送 给 FADC。数据采集卡在触发信号控制下进行 全波形采集[14],如图6所示。

3) 触发判选系统

为在测量中剔除绝大多数本底,研制了一 套触发判选系统。由扇入扇出单元输出的 40 路正信号进入触发判选系统后,又一分为二。 一路信号经过高通滤波后进行单路幅度甄别, 以剔除大量的电子学噪声;另一路信号进行 40 路模拟相加,再进行幅度甄别,以剔除本底偶然 符合事件。多重数选择和逻辑处理单元同时接 收来自单路幅度甄别电路和模拟相加电路的信 号,若40路信号在20ns符合时间内符合成功, 则进行逻辑判断选择。快信号符合成功后延时 600 ns 与慢信号单路幅度甄别产生的触发信号 符合,用于剔除 α 粒子符合事件,若符合则输出 一个幅度 100 mV、宽度 2 000 ns 的脉冲信号到 FADC。通过改变快信号与慢信号符合的路数、 幅度阈值、相加幅度阈值等条件,有效剔除了大 部分不具备级联关系的本底事件[15]。

4) 中子吸收体

中子轰击样品,除发生(n,γ)反应外,也 有弹散反应,散射中子进入探测器形成本底。 为减少散射中子对实验的影响,在样品与探 测器之间加装1个中子吸收体用以对散射中 子进行吸收。中子吸收体由聚乙烯材料和 B₄C组成,如图7所示,文献[16]给出的中子 透射率为6.3%。

1.3 中子捕集器

在系统的末端放置1个中子捕集器,用于 吸收穿过样品和GTAF的中子,避免其被实验 厅内的墙壁等散射再次进入探测器对实验造成 干扰。整个中子捕集器由含硼聚乙烯材料组 成,为保证能将中子全部吸收,设计为小口大腔 的形状,且保证最薄处厚度不少于50 cm。



图 6 GTAF 结构原理示意图 Fig. 6 Schematic diagram of GTAF structure



图 7 中子吸收体 Fig. 7 Neutron absorber

2 实验描述

2.1 中子能谱测量

将锂玻璃探测器放置在准直器的出口处 (距离靶头 58.5 cm),采用 n-TOF 测量技术测 量中子能谱,以通过实验弄清⁷Li(p,n)⁷Be 反 应中子源条件的实际状态。

以锂玻璃探测器的信号作为中子飞行时间的 起始信号,质子脉冲束流的拾取信号作为中子飞 行时间的终止信号,图 8 示出了中子能谱测量电 子学线路简图,实验时的主要条件参数列于表 1。



图 8 中子能谱测量电子学线路简图 Fig. 8 Schematic diagram of neutron spectrum measurement

表 1 中子能谱测量实验参数

 Table 1
 Parameter of neutron spectrum measurement

参数	数值
脉冲质子束能量	7 MeV
脉冲质子频率	3 MHz
降能片(Al)厚度	$280 \ \mu m$
探测器高压	-2 020 V
中子飞行距离	58.5 cm
Mod. CF8000 阈值	-60.0 mV
脉冲信号相对延迟时间	350 ns

1) 脉冲幅度测量:阳极信号经线性扇出电路(Mod. 744)分成A、B两路信号,A路信号经前沿过阈定时甄别器(Mod. CF8000)后,作为PH(pulse height)谱的门信号和TOF谱的起始信号;B路信号经放大器后作为PH幅度信号。

2) 飞行时间测量:探测器的阳极信号和经 延迟后脉冲质子束的拾取(pick_up)信号分别 作为中子飞行时间的起始信号和终止信号,输 入 TDC,测量中子 TOF 谱。

此外,还有频率仪和计数仪。pick_up 信

号分出一路信号输送到频率仪,用于实时监视脉冲化质子束流频率^[17]。

2.2 (n,γ)反应在线实验测量

将锂玻璃探测器放置在 0°角、GTAF 探测器的后端(距靶头 1.595 m 处),监视中子束流强度。实验共测量 4 种样品,分别为 Nb 样品、Au 样品、C 样品以及空白样品,样品参数列于表 2。Nb 样品为待研究样品,Au 样品为标准样品,其截面以文献数据为标准,通过相对计算的方法得到截面比值,以避免绝对测量方法中由于效率不准确所引起的系统误差。测量C

表 2 GTAF 实验样品参数

Table 2 Sample parameter of GTAF experiment

样品	密度/	直径/	厚度/	照射
	$(g \cdot cm^{-3})$	mm	mm	时间/s
Nb	8.57	20	0.1	5 401
Au	19.32	20	1	15 226
С	2.3	20	1.5	8 196
空白				9 126

样品用来剔除样品散射中子造成的影响,空白 样品则是为了排除环境辐射、晶体固有本底等。

3 数据处理及分析

3.1 中子能谱

利用 TOF 法在线测量中子能谱,得到的 TOF 谱及脉冲幅度谱如图 9 所示。图 9a 为中 子 TOF 谱,从右向左第 1 个峰由 γ 射线产生, 左边脉冲信号峰由中子产生。图 9b 为脉冲幅 度谱,从左向右第 1 个峰为 γ 峰,中子脉冲的幅 度在1500道附近。

图 10 为飞行时间-脉冲幅度二维谱,根据 二维谱可将中子和γ射线区分开来:横轴(飞行 时间)上 3 000 道为中子和γ射线的分界线,左 边为中子,右边为γ射线谱。在 3 400 道附近 有 1 个很高的γ射线峰,可由此确定γ射线到 达探测器的时刻;锂玻璃探测器在 250 keV 处 有 1 个探测效率峰,对应 Peak1;质子束流经过 吸收片后到达锂靶,在锂靶表面产生约 570 keV 的中子,对应 Peak2。



图 9 中子飞行时间测量谱 Fig. 9 Spectrum of neutron time of flight





利用 ROOT 统计图 10 横轴上每道的中子 计数,并结合文献[8]中的锂玻璃探测效率,得 到中子能谱(图 11),由于在靶头处采用了水冷 的方式进行冷却,所以此处得到的是经过1 mm 水慢化后的中子能谱。

3.2 在线实验

1) 瞬发γ射线级联总能量谱

用 GTAF 在线测量了各样品, Au 样品对

应的瞬发γ射线级联总能量谱如图 12a 所示, Au 样品与空白样品的比对如图 12b 所示。



Fig. 11 Neutron spectrum of experiment

Au、Nb 与空白样品的总能量谱比较如图 13 所示。⁹³ Nb(n,γ)⁹⁴ Nb 反应放出的 γ 射线总能量 为 7.2 MeV,对应 80~130 道,¹⁹⁷ Au(n,γ)¹⁹⁸ Au 反应放出的 γ 射线总能量为 6.5 MeV,对应 70~120 道。数据分析中应用多重数条件,在 扣除C样品引起的弹散中子的前提下,又剔除









图 13 有样与无样本底的总能量谱 Fig. 13 Total energy spectrum of sample and background

了大多数本底。

2) 反应率实验数据分析

通过图 13a 所示的 Au 样品和空白样品的 总能量谱比对,可分析得到¹⁹⁷Au(n,γ)¹⁹⁸Au 反 应的净效应事件数,利用式(1)计算能量积分:

 $\bar{\sigma} = N'/N_0 \phi S \tag{1}$

式中: σ 为对应能量区间内入射中子的截面积 分值;N'为扣除本底后的净计数率, s^{-1} ; N_0 为 辐照样品单位截面积的原子数, cm^{-2} ; ϕ 为中子 束流强度, s^{-1} ;S为测量效率,包括探测器的探 测效率、数据由 FADC 机箱到计算机的传输效 率、多重数分析时的拟合效率等。

能量积分是指测量(n,γ)反应激发函数在 相应中子能谱下能量积分的平均值σ,定义为:

 $\bar{\sigma} = \int_{E_{th}}^{E_2} \sigma(E) N(E) dE / \int_{E_{th}}^{E_2} N(E) dE \quad (2)$ 式中: $\sigma(E)$ 为激发函数; N(E)为中子能谱; $E_{th} \pi E_2$ 分别为反应中子能量的下限和上限。

通过 Au 样品和 Nb 样品效应数比对分析,利 用式(1)得到的¹⁹⁷ Au(n,γ)¹⁹⁸ Au与⁹³ Nb(n,γ)⁹⁴ Nb 反应截面能量积分的比值为 2.75,此结果存在 较大误差,主要是由锂玻璃中子探测器效率的 误差和 GTAF 系统数据传输效率误差引起的。 查阅ENDF/B-WI.1数据库中的评价数据和对应 实验数据(Young 等)^[18],在本实验的中子能量 区间,利用式(2)计算得到的¹⁹⁷Au(n,γ)¹⁹⁸Au和 ⁹³Nb(n,γ)⁹⁴Nb反应截面能量积分的比值为 2.74。

4 分析与讨论

通过瞬发γ射线级联总能量谱的实验数 据分析、¹⁹⁷Au(n,γ)¹⁹⁸Au反应率的实验测量、 ⁹³Nb(n,γ)⁹⁴Nb与¹⁹⁷Au(n,γ)¹⁹⁸Au反应率比值 的实验数据计算以及与ENDF数据库截面数 据比对,表明实验方案可行,采用GTAF和触 发判选电路相结合的(n,γ)反应在线实验,可 较有效剔除本底,高效记录(n,γ)反应事件。 但由于质子能量偏高,故采用降能片来实现近 阈⁷Li(p,n)⁷Be反应,降低了质子在锂靶上的有 效束流强度,增加了本底。另外,为维持质子在 锂靶上的束流强度,质子束的脉冲频率未按照 中子飞行时间测量技术的要求进行足够的分 频,选用 3 MHz,影响了中子飞行时间谱的测量,进而影响了中子注量的定量。在 HI-13 串列加速器上继续探索共振区的(n,γ)反应截面的在线测量技术,需进一步增加束流强度,降低本底,提高数字化数据获取系统的数据采集效率。中国散裂中子源的反角白光中子束线,中子束流强度可达 10⁶ s⁻¹ · cm⁻²,脉冲频率为 25 Hz,中子能量从 eV 到 100 MeV,基于 GTAF 及在 HI-13 串列加速器上研究建立的(n,γ)反应截面数据测量技术,可在 CSNS 上顺利开展(n,γ)反应截面数据测量工作。

感谢 HI-13 串列加速器运行组在实验期间 对本工作的大力支持与帮助。

参考文献:

- [1] ALPIZAR-VICENTE A M, BREDEWEG T A, ESCH E I. Neutron capture cross section of ⁶²Ni at s-process energies [J]. Physical Review C, 2008, 77(1): 1-5.
- [2] WISSHAK K, VOSS F, ARLANDINI C. Neutron capture on ¹⁸⁰ Ta^m: Clue for an s-process origin of nature's rarest isotope[J]. Physical Review Letters, 2001, 87(25): 1-4.
- [3] WONG-NG W, LEVIN I, COOK L P, et al. Nature of the transient BaF₂-related phases in the BaF₂ processing of Ba₂ YCu₃O_{7-x} superconductors [J]. Applied Physics Letters, 2006, 88 (10): 102507-1-102507-3.
- [4] CLEMENS H, STROMBERGER U, WEILGU-NI P C, et al. Growth of BaF₂ and of BaF₂/SrF₂ layers on (001) oriented GaAs[J]. Journal of Applied Physics, 1989, 66(4): 1 680-1 686.
- [5] ZHONG Qiping, ZHOU Zuying, TANG Hongqing, et al. New detector system to measure (n, γ) reaction cross section precisely in China[J]. Chinese Physics C, 2008, 32(Suppl.): 102-105.
- [6] 马霄云,仲启平,周祖英,等. 大体积氟化钡的性能 测试[J]. 原子能科学技术,2009,43(2):180-184.
 MA Xiaoyun, ZHONG Qiping, ZHOU Zuying, et al. Performance test of large BaF₂ detector
 [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2009, 43(2): 180-184(in Chinese).

- [7] 张奇玮. 基于全吸收型探测器的中子俘获反应 截面测量方法的研究[D]. 北京:中国原子能科 学研究院,2015.
- [8] 张奇玮,贺国珠,阮锡超,等. 锂玻璃探测器中子 探测效率的刻度[J]. 原子核物理评论,2013,30 (2):156-160.

ZHANG Qiwei, HE Guozhu, RUAN Xichao, et al. Calibration of neutron detection efficiency of Li-glass detector [J]. Nuclear Physics Review, 2013, 30(2): 156-160(in Chinese).

- [9] LAVAL M, MOSZYNSKI M, ALLENAND R, et al. Barium fluoride-inorganic scintillator for subnanosecond timing [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1983, 206: 169-172.
- [10] 贺国珠. BaF₂ 闪烁体探测器(n,γ)反应截面测量 的研究[D]. 兰州:兰州大学,2006.
- [11] User manual Agilent Acqiris 21-SLOT CPCI crate[EB/OL]. [2016-01-25]. http://cp.literature.agilent. com/litweb/pdf/U1092-90019.pdf.
- [12] Programmer's guide Agilent Acqiris instruments [EB/OL]. [2016-02-10]. http: // research. physics. illinois. edu/bezryadin/labprotocol/ProgrammersGuide. pdf.
- [13] Programmer's reference manual: Agilent Acqiris instruments[EB/OL]. [2016-2-15]. http://cp.literature. agilent. com/litweb/pdf/U1092-90002. pdf.
- [14] 赵健. GTAF装置数字化数据获取系统的研究 [D]. 衡阳:南华大学,2013.
- [15] 彭猛,贺国珠,骆宏,等. 4π BaF₂ 装置的触发系统研究[J]. 原子能科学技术,2016,50(10):1 866-1 870.
 PENG Meng, HE Guozhu, LUO Hong, et al. Study of trigger system for γ-ray total absorption BaF₂ facility[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2016, 50(10): 1 866-1 870(in Chinese).
- [17] 彭猛. 硫中子俘获治疗中子源技术研究[D]. 兰 州:兰州大学,2017.
- [18] CHADWICK M B, HERMAN M, OBLOŽINSKÝ P, et al. ENDF/B-W.1 nuclear data for science and technology: Cross sections, covariances, fission product yields and decay data[J]. Nuclear Data Sheets, 2011, 112(12): 2 887-2 996.