

文章编号: 1007-1627(2002)01-0012-05

一个测量中子核数据的新技术——瞬发 γ 射线法

石宗仁

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要: 以测量 $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反应截面为例概述了直接测量的中子法和间接测量的瞬发 γ 射线法的原理及其优缺点, 阐明了瞬发 γ 射线法的物理内含, 阐述了如何从测量的 $\sigma^m(k)$ 约束程序中的反应机制及其参数和得到最小漏失的 $\sigma^m(0)$, 并分析了 $\sigma_{n, 2n}$ 的不确定度的来源及其贡献. 瞬发 γ 射线法适合不易采用直接方法的中子核数据的测量, 具有一定的普适性.

关键词: 中子源; 裂变元素; HPGe 反康普顿谱仪阵列; γ 射线产生截面; 核数据计算程序

中图分类号: O571.5 **文献标识码:** A

1 引言

中子与原子核通过强相互作用发生各种反应, 如: 弹性散射(n, n); 非弹性散射(n, n'); 发射多个中子的反应(n, xn), $x=1, 2, 3, \dots$; 产生带电粒子的反应(n, X), X 可以是质子和 α 粒子; 发射中子和带电粒子的反应(n, nX)等. 对于可裂变的原子核还能产生裂变反应(n, f), 同时, 会有多个中子放出, 中子数 $\nu=0, 1, 2, 3, \dots$, 发射 x 的概率与入射中子能量有关, 当中子能量提高时, 一些反应道相继打开, 如(n, f), (n, n), ($n, 2n$)和($n, 3n$)等, 实验上很难区分测到的中子是来自哪个反应, 在(n, X)反应中, 直接测量产生的带电粒子可以得到反应截面, 但是带电粒子在样品内的射程很短, 样品的厚度受到限制, 一般也很难测量, 实验上测量(n, nX)反应就更加困难, 在这些情况, 用测量反应出射粒子产额得到截面的直接法很难得到准确的结果, 瞬发 γ 射线法克服了这些问题, 而且显得十分简单.

在 1994 年, 美国洛伦兹利物莫国家实验室(LLNL)的 Becker 等^[1]提出了用瞬发 γ 射线法测量裂变元素的 $\sigma_{n, 2n}$ 和 $\sigma_{n, 3n}$ 等, 该法有赖于 HPGe 反康普顿谱仪阵列系统及计算核反应数据程序的发展, 如 GNASH 程序, 除中子弹性散射外, 几乎所有的反应都伴有反应余核放射出的特征的瞬发 γ 射线, 在实验上, 可采用在高自旋态核物理中广泛使用的

能量分辨率高、物理本底小及反应道鉴别能力强的 HPGe 反康普顿谱仪的阵列系统, 通过 γ 射线的能量甄别和 γ - γ 符合技术能辨别出每个反应道余核的特征线, 从而实现了对反应道的鉴别, 及准确地测量该反应道余核的特征线的产生截面, 例如在 $^{239}\text{Pu}(n, n'\gamma)$, $^{239}\text{Pu}(n, f\gamma)$, $^{239}\text{Pu}(n, 2n\gamma)$ 和 $^{239}\text{Pu}(n, 3n\gamma)$ 反应中, 能够挑选出 $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反应道余核 ^{235}Pu 的特征线及测量其产生截面 $\sigma_{n, 2n\gamma}$, 利用 GNASH 程序计算 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 与 $\sigma_{n, 2n}$ 的比值 K , 从测量的 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 即可得到 $\sigma_{n, 2n}$. 用这种间接的方法测量 $\sigma_{n, 2n}$, 称为瞬发 γ 射线法, 它适合不易采用直接方法的核数据的测量, 具有一定的普适性, 用瞬发 γ 射线法测量中子核数据是概念上的重大突破.

不同于直接法, 用瞬发 γ 射线法得到的 $\sigma_{n, 2n}$ 是反应机制及其参数相关的, 但是通过测量多个 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 并与理论结果拟合能够约束反应机制和参数, 以及尽可能准确地测量 K 接近 1 的 γ 射线, 减少理论对结果的影响.

在 Becker 提出用瞬发 γ 射线法测量截面后不久, LLNL 与洛斯阿拉莫斯国家实验室(LANL)及一些大学联合, 利用 LANL 的中子能量为 1-600 MeV 的高注量的散裂中子源和洛伦兹贝克莱国家实验室(LBNL)的 HPGe 反康普顿谱仪的阵列系统开展了 ^{235}U , ^{238}U 和 $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 和 $n, 3n$ 等截面的测量, 以及利用该装置从事核结构研究, 如: 通过 (n, xn) 反应研究极缺中子的反应剩余原子核的结

收稿日期: 2001-08-28; 修改日期: 2002-01-14

作者简介: 石宗仁(1930—), 男(汉族), 吉林辽源人, 研究员, 从事中子物理、原子核结构和中高能核物理研究.

构, 如 $^{186}\text{Pt}(n, 1n\gamma)^{187}\text{Pt}$, 及利用 $(n, n\gamma)$ 反应实现核的完全谱学研究等。

本文以测量 $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 反应截面为例概述了直接测量的中子法和间接测量的瞬发 γ 射线法的原理及其优缺点。作者将中子反应产生余核的低激发态的方式分成 $(n, 2n)$ 直接的、上一个能级退激的和所有高激发态退激的等3种布局方式, 以及引入漏失截面 σ^m , 说明了瞬发 γ 射线法的物理内含, 阐述了如何从测量的 $\sigma^m(k)$ 约束程序中的反应机制及其参数和得到最小漏失的 $\sigma^m(0)$, 以及分析了 $\sigma_{n, 2n}$ 的不确定度的来源及其贡献, 最后简要地介绍了LANL的实验情况。

2 测量可裂变元素的 $(n, 2n)$ 反应截面的方法

目前有两种测量可裂变元素的 $\sigma_{n, 2n}$ 的方法, 它们分别称为中子法和瞬发 γ 射线法。在快中子的能量 E_n 大于或等于 $n, 3n$ 反应的阈能时, 可裂变元素如 ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U 和 ^{239}Pu 能同时发生 (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ 和 $n, 3n$ 等反应。在1983年前, 人们测量可裂变元素的 $\sigma_{n, 2n}$ 都采用了中子法^[2]。由于 (n, f) 反应产生的裂变中子和 $n, 3n$ 反应产生的3个中子以及靶样品中的自发裂变中子的干扰, 因此不同测量结果的差异很大, 而且各自的不确定度也很大。用瞬发 γ 射线法测量裂变元素的 $\sigma_{n, 2n}$ 则克服了这些缺点。

2.1 中子法

中子法是一种直接测量 $\sigma_{n, 2n}$ 的方法, 实验上它测量 $(n, 2n)$ 反应产生的两个中子, 它们被同时记录的计数率为

$$N_{n, 2n} = \Phi_n \cdot S \cdot n \cdot \sigma_{n, 2n} \cdot \epsilon \cdot \epsilon, \quad (1)$$

其中, Φ_n 是中子注量, S 是样品被中子照射的面积, n 是单位面积的靶核数, ϵ 是探测中子的效率。根据(1)式, 能够得到与反应机制无关的 $\sigma_{n, 2n}$ 。探测器可以是大液体闪烁体或者是由多个 ^3He 正比计数器构成的 4π 慢化型探测器, 前者测量在一个开门脉冲内出现两个中子的概率, 后者测量两个 ^3He 正比计数器同时被触发的事件率。

竞争的裂变反应事件可能被当作 $(n, 2n)$ 的事

件记录, 它的计数率为

$$N_{1, 2n} = \Phi_n \cdot S \cdot n \cdot \sigma_f \cdot P \cdot \epsilon \cdot \epsilon, \quad (2)$$

$$P = [p_2 + p_3(1 - \epsilon) + p_4(1 - \epsilon)^2 + p_5(1 - \epsilon)^3 \dots], \quad (3)$$

其中, σ_f 是裂变截面; p_i 是一次裂变发射 i 个中子的概率; $(1 - \epsilon)$ 是中子未被探测的概率; P 是一次裂变被当作 $(n, 2n)$ 事件的概率, 它是 E_n 的函数。利用(2)和(1)式可以得到 (n, f) 和 $(n, 2n)$ 反应的计数比。由于裂变是竞争反应, 计数比与样品量和 Φ_n 无关, 可以估算出 (n, f) 引起 $\sigma_{n, 2n}$ 的相对不确定度为0.14—0.56。 $(n, 3n)$ 反应的影响也可估算。实验上, 用 $(n, 2n)$ 反应阈下快中子轰击样品, 测量两个中子的计数仅来自裂变, 裂变的贡献可以扣除, 但这种扣除仅适用于阈附近的区域。

一般讲, 在 ^{239}Pu 的样品中含有高自发裂变率的原子核, 例如 ^{240}Pu , 它产生两个中子的计数率是

$$N_{sf} = n' \cdot S \cdot \lambda \cdot k_{sf} \cdot P_{sf} \cdot \epsilon \cdot \epsilon, \quad (4)$$

$n' \cdot S = (m/A) \cdot N_0$, 其中, n' 是单位面积中 ^{240}Pu 的核数, P_{sf} 是自发裂变的 P 值, λ , k_{sf} 及 A 分别是 ^{240}Pu 原子核的衰变常数、自发裂变的分支比及原子数, m 是 ^{240}Pu 在样品中的质量。利用(4)和(1)式可以得到自发裂变和 $(n, 2n)$ 反应的计数比。计数比正比于 ^{240}Pu 的含量, 反比于 $\sigma_{n, 2n}$ 和 Φ_n 。在 ^{239}Pu 样品中去除 ^{241}Pu 杂质是一件十分困难的工作。虽然 ^{241}Pu 自发裂变的本底是可测量和扣除的, 但是当计数比很大时, N_{sf} 的统计不确定度对 $\sigma_{n, 2n}$ 的贡献也很大。

总之, 由于 (n, f) 反应对 $\sigma_{n, 2n}$ 的相对不确定度的贡献为0.14—0.56, 而且这种贡献在实验和理论上都很难确定, 以及 ^{240}Pu 的自发裂变统计涨落的影响, 所以利用中子法得到准确的测量结果是困难的。

2.2 瞬发 γ 射线法

由于竞争的 (n, f) 和 ^{240}Pu 自发裂变的干扰, 所以用直接测量中子的方法不能得到准确的结果, 间接测量的瞬发 γ 射线法克服了中子法的上述困难。

2.2.1 Becker的基本原理

在瞬发 γ 射线法中, 人们采用HPGe反康普顿谱仪的阵列系统, 测量 $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ 的余核 ^{238}Pu 放

射出的特征瞬发 γ 射线, 实现反应道的鉴别并得到一些特征 γ 射线的 $\sigma_{n, 2n\gamma}^{11}$. ^{238}Pu 的能级及其特征 γ 射线表示在图 1 中. 利用具有耦合道预平衡和

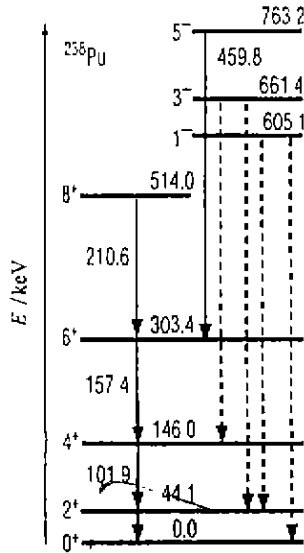


图 1 ^{238}Pu 的能级及其特征 γ 射线

Hauser-Feshbach 的 GNASH 程序计算 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 与 $\sigma_{n, 2n}$ 的比值

$$K_i(E_\gamma, E_n) = \frac{\sigma_{n, 2n\gamma_i}(E_\gamma, E_n)}{\sigma_{n, 2n}(E_n)}, \quad (5)$$

其中 E_γ 是特征 γ 射线 i 的能量. 为了简便, 下面省去截面和 K 值的变量 E_γ 和 E_n . Becker 等^[1] 用 GNASH 程序计算的 K_i 表示在图 2 中.

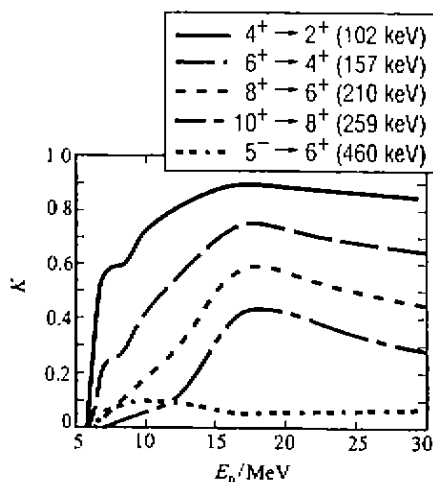


图 2 用 GNASH 和标准参数计算的 K

实验上通过测量多个特征线的 $\sigma_{n, 2n\gamma}$, 利用 (5) 式应得到相同的 $\sigma_{n, 2n}$, 所以采用下式进行最小二乘

法拟合.

$$\chi^2 = \sum_i W_i \left[\frac{\sigma_{n, 2n\gamma_i}}{K_i - \sigma_{n, 2n}} \right]^2, \quad (6)$$

$$W_i = \frac{1}{\sigma_i^2}.$$

其中, σ_i 是 $\sigma_{n, 2n\gamma_i}$ 的不确定度, $\sigma_{n, 2n}$ 是相应一组 K_i 的平均截面. 通过调节 GNASH 程序中的参数, 使 χ^2 最小, 从而约束反应机制及其参数. 实验上测量的 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 越多, $\sigma_{n, 2n}$ 对程序中所用参数的依赖性越小.

用 GNASH 计算 $^{207}\text{Pb}(n, 2n\gamma)$ 的 $2^+ \rightarrow \text{gs}$ 跃迁的 303 keV γ 射线的 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 同 E_n 的关系与实验结果符合得很好^[3], 见图 3. 它充分说明了用 GNASH 程序计算分立 γ 射线的 $\sigma_{n, 2n\gamma}$ 的合用性.

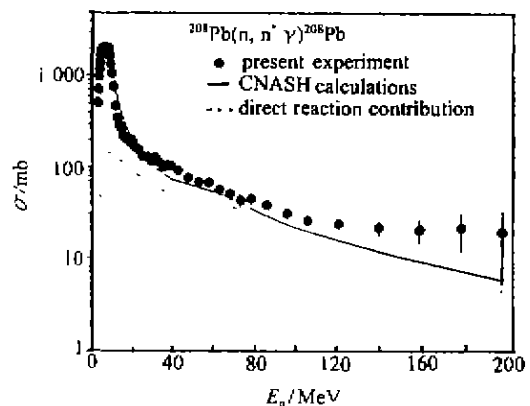


图 3 $^{207}\text{Pb}(n, 2n\gamma)$ 反应的 $\sigma_{n, 2n}(2^+ \rightarrow \text{gs})$ 同 E_n 的关系

2.2.2 $\sigma_{n, 2n}$ 的漏测部分

为了从理论上说明采用瞬发 γ 射线法的物理内含及 $\sigma_{n, 2n}$ 的不确定度, 作者将通过 $(n, 2n)$ 反应布局余核的任一低能级 i 的方式分为 3 种: 直接的 $(n, 2n)$ 反应、从上一个能级的退激和从所有高激发态退激的和, 见图 4. 从图 4 得出:

$$\sigma_{n, 2n} = \sigma_{n, 2n\gamma}(i \rightarrow i-1) + \sigma^m, \quad (7)$$

$$i = 1, 2, 3, \dots,$$

$$\sigma^m = \sum_k \sigma^m(k),$$

$$k < i, \quad k = 0, 1, \dots, i-1, \quad (8)$$

$$\sigma^m(k) = \sigma_{n, 2n}(k) + \sigma_{n, 2n\gamma}(x \rightarrow k), \quad (9)$$

$$x > i+1$$

其中, i, k 和 x 是激发态的序数, 它们之间满足不等式关系 $k < i, x > i+1$; $\sigma_{n, 2n\gamma}(i \rightarrow i-1)$ 是实验

上测量的 i 退激到 $i-1$ 的产生截面； σ^m 是实验上对应 $\sigma_{n,2n\gamma}(i \rightarrow i-1)$ 的漏测的部分，它越小，对 $\sigma_{n,2n}$ 的影响越小； $\sigma_{n,2n}(k)$ 是 $(n,2n)$ 反应直接布局 k 的截面， $\sigma_{n,2n\gamma}(r \rightarrow k)$ 是所有高激发态 r 退激到 k 的产生截面的和。从 (5) 和 (7) 式能得到

$$K_1 = 1 - \frac{\sigma^m}{\sigma_{n,2n}} \quad (10)$$

从 (10) 式看出 $\sigma^m/\sigma_{n,2n}$ 越小， K_1 越接近 1。

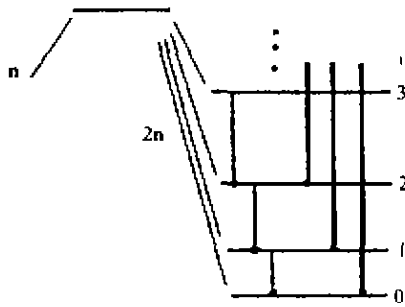


图 4 布局余核能级的方式

以实验上测量的第一激发态的 $\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)$ 为例，说明如何得到 $\sigma_{n,2n}$ 。

$$\sigma_{n,2n} = \sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0) + \sigma^m(0) \quad (11)$$

$\sigma^m(0)$ 是直接的 $(n,2n)$ 反应和从所有高激发态布局基态的截面，它是实验上最小漏测的和需要用理论计算的 $\sigma_{th}^m(0)$ 代替。除 $\sigma^m(0)$ 外，其它的 $\sigma^m(k)$ 可从实验上得到

$$\sigma^m(k) = \sigma_{n,2n\gamma}(k \rightarrow k-1) - \sigma_{n,2n\gamma}(k+1 \rightarrow k) \quad (12)$$

利用程序计算的 $\sigma_{th}^m(k)$ 与测量的 $\sigma^m(k)$ 做最小二乘法，从而约束反应机制及其参数。测量的 $\sigma^m(k)$ 越多，参数越准确，计算的 $\sigma_{th}^m(0)$ 也越准确。 $\sigma_{th}^m(0)$ 的不确定度将取决于拟合的 χ^2 值。对于其它的激发态可采用同样的方法分析。

2.2.3 $\sigma_{n,2n}$ 不确定度的分析

$\sigma_{n,2n}$ 的相对不确定度可表示成两项：

$$\frac{\Delta\sigma_{n,2n}}{\sigma_{n,2n}} = \left\{ \alpha^2 \left[\frac{\Delta\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)}{\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)} \right]^2 + b^2 \left[\frac{\Delta\sigma_{th}^m(0)}{\sigma_{th}^m(0)} \right]^2 \right\}^{1/2} \quad (13)$$

$$\alpha = \frac{\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)}{\sigma_{n,2n}}$$

$$b = \frac{\sigma_{th}^m(0)}{\sigma_{n,2n}}$$

第一项是实验上测量的，一般为 3%—10%；第二项是理论计算的， b 越小， $\Delta\sigma_{th}^m(0)/\sigma_{th}^m(0)$ 的贡献越小。实验上测量 $\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)$ 是最理想的，其次是测量 $\sigma_{n,2n\gamma}(2 \rightarrow 1)$ ，…。由于 ^{238}Pu 的第一激发态通过内转换电子到基态，因此需要测量 $\sigma_{n,2n\gamma}(2 \rightarrow 1)$ ， $E_{\gamma_2} = 101.9 \text{ keV}$ 。从图 2 可知， K_2 大约是 0.8，因此 b 是 0.2，如果 $\Delta\sigma_{th}^m(0)/\sigma_{th}^m(0) = 0.3$ ，它对 $\sigma_{n,2n}$ 的相对不确定度的贡献为 6%。

假如 $(n,2n)$ 反应不布局基态，以及高激发态都退激到第一激发态，那么 $\sigma_{n,2n\gamma}(1 \rightarrow 0)$ 就等于 $\sigma_{n,2n}$ ，与 $(n,2n)$ 的反应机制及其参数无关。这时瞬发 γ 射线法等同于活化法测量 $(n,2n)$ 截面。

总之，实验上应尽可能测量包括第一激发态的多个 γ 射线的 $\sigma_{n,2n\gamma}$ ，从而得到多个能级漏失的 $\sigma^m(k)$ ，它们与程序计算的 $\sigma_{th}^m(k)$ 做最小二乘法，约束程序中的反应机制及其参数，由此准确地计算出 $\sigma_{th}^m(0)$ 。当 K 值接近 1 时，程序计算的 $\Delta\sigma_{th}^m(0)$ 对 $\sigma_{n,2n}$ 的相对不确定度的贡献更小。

3 LANL 的瞬发 γ 射线测量的设备

在 LANL，瞬发 γ 射线测量的设备由中子源、样品、HPGe 反康普顿谱仪阵列系统和数据获取系统等四部分组成。它测量 ^{238}Pu 的 $\sigma_{n,2n}$ 的目标是实现相对不确定度为 $\pm 10\%$ ，据上述分析该目标是可行的。

中子源是用目前世界上最强流的质子加速器产生的^[2]。质子加速器由 800 MeV 质子直线加速器和质子储存环两部分构成，后者用于改变质子脉冲的时间结构和流强。质子束轰击可承受 1 MW 热功率的钨靶产生散裂中子， $E_n \approx 1-200 \text{ MeV}$ ，用飞行时间法测量中子能量。质子脉冲的参数，如频率是 100 Hz，宏脉冲的宽度是 625 μs ，微脉冲的宽度是 1.5 μs ，占空因子(duty cycle)是 6%。

HPGe 反康普顿谱仪阵列系统由 13 个相对效率 25% 的同轴型和 7 个平面型 HPGe 探测器构成，反符合环是 BGO 闪烁体。该系统简称为 GEANIE (Germanium Array for Neutron Induced Excitation)。对于 1.33 MeV 的 γ 射线，同轴 HPGe 反康普顿谱仪的峰总比(peak to total ratio)是 0.15—0.45。同轴和平面型 HPGe 探测器分别用于测量 50

keV—6 MeV 和 20—500 keV 的 γ 射线。平面型 HPGe 探测器对低能 γ 射线的能量分辨率和定时性能好。中子辐照损伤小。GEANIE 放置在 WNR (Weapon Neutron Research) 厅。离钨靶 20.3 m, 偏质子束于右 60° 角。将来的 GEANIE 由 30 个反康普顿谱仪构成, 其中 10 个平面和 20 个同轴 HPGe

探测器。

数据获取系统是 Michigan 州立大学的 4π 阵列系统。

致谢 作者感谢刘廷进、王书暖、温书贤、包宗渝、邢雨和徐鹏等同志给予的帮助。

参 考 文 献:

- [1] Becker J A, Nelson R O. New Physics Opportunities with GEANIE at LANSCE/WNR[J]. Nucl Phys News, 1997, 7 (2): 11—20.
- [2] Frehaut J, Bertin A, Bois R. Measurement of the $^{235}\text{U}(n,2n)$ Cross Section between Threshold and 13 MeV[J]. Nucl Sci Eng, 1980, 74: 23—33.
- [3] Vonneh H, Pavlik A, Chadwick M B, *et al.* $^{207,208}\text{Pb}(n,2n\gamma)$ Reactions for Neutron Energies from 3 to 200 MeV[J]. Phys Rev, 1994, C50: 1 952—1 963.
- [4] Lisowski P W, Bowman C D, Russell G J, *et al.* The Los Alamos National Laboratory Spallation Neutron Sources[J]. Nucl Sci Eng, 1990, 106: 208—218.

A New Technique to Measure Neutron-nuclear Data——Prompt γ -ray Method

SHI Zong-Ren

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The principles, merit and demerit of neutron and prompt γ -ray method are described through the cross section measurement for $^{239}\text{Pu}(n,2n)$ reaction. The population ways of low levels of the product nucleus are divided into a direct population from the $(n,2n)$ reaction, a part from the upper level deexcitation and a part from the all high level deexcitation. The missed cross sections $\sigma^m(k)$ are defined. The minimum missed cross section $\sigma^m(0)$ that can not be measured experimently is obtained by means of comparing the calculated $\sigma_k^m(k)$ with measured ones. The uncertainties of $\sigma_{n,2n}$ are definitely established from $\Delta\sigma_{n,2n}(1\rightarrow 0)$ and $\Delta\sigma^m(0)$. The prompt γ -ray method can be used for measuring neutron nuclear data which are difficult to be measured by means of direct methods. It is a highlight in neutron physics.

Key words: neutron source; fissile element; array of HPGe anti-Compton spectrometers; γ -ray production cross section; programs for nuclear data