

文章编号: 1007-4627(2007)01-0029-05

^{75}As 中子辐射俘获截面的实验测量及蒙特卡罗修正*

史淑廷, 罗小兵[#], 王 磊

(四川大学原子核科学与技术研究所, 四川 成都 610065)

摘要: 在四川大学 2.5 MV 静电加速器上, 用活化法测量了 29—1 100 keV 能区中子引起的 $^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$ 反应截面, 并用 MCNP 4C 程序对实验中由中子的多次散射、注量率衰减效应等引起的偏差进行了修正, 最后将所得结果与已有数据进行了比较。

关键词: ^{75}As 中子辐射俘获截面; 多次散射; 注量率衰减; 蒙特卡罗修正

中图分类号: O571.54 **文献标识码:** A

1 引言

快中子辐射俘获截面是核反应理论、核科学与工程设计及天体元素合成研究所需要的重要参数, 对其精确测量具有重要意义。而目前 $^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$ 反应实验截面数据很少。Macklin^[1] 利用飞行时间法测量的结果, 在小于 100 keV 能区, 比 ENDF/B-VI 高 20%; 在大于 100 keV 能区时, 与 ENDF/B-VI 库的评价值符合较好。Gardner 等^[2] 利用模型计算的结果在大于 10 keV 能区比 Macklin^[1] 的低 25%。为了进一步澄清分歧, 我们在四川大学 2.5 MV 静电加速器上对 $^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$ 在 29—1 100 keV 能区中子辐射俘获截面进行了测量^[3]。实验测量中, 由靶头材料、冷却水层和样品的包层材料等引起的多次散射效应及中子在样品中的自屏蔽效应等均对实验结果产生很大影响^[4]。这些因素是实验中不可避免的, 也不能通过实验方法加以修正, 因此我们利用蒙特卡罗程序模拟计算的方法对实验数据进行了修正。

2 实验

实验装置如图 1 所示。靶管由黄铜制成, 靶头用水冷却。利用 $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ 反应产生 29—230 keV 能区的中子, $\text{T}(p, n)^3\text{He}$ 产生 215—1 100 keV 能区的中子, 以 ^{197}Au 的中子俘获截面为标准,

用活化法测量 ^{75}As 的中子俘获截面。Li 靶用 Ta 做衬底, 在其表面镀上厚度在 μm 量级的 LiF; 氚靶的衬底材料为 Mo, 先在 Mo 片上面镀上 μm 量级的 Ti, 再用 Ti 原子吸附 T, 做成 T 靶。实验所用的 As 样品为 As_2S_3 粉末, 其纯度高于 98%, ^{75}As 的同位素丰度为 100%, 制样时首先用压片机将 As_2S_3 压制成直径为 20 mm 和厚度为 1 mm 的圆片, 称重后装入厚度为 0.1 mm 的铝盒中, 铝层的作用是

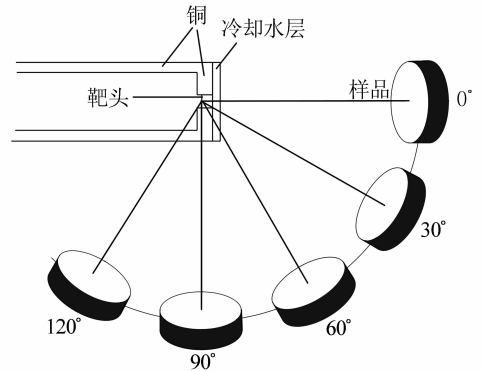


图 1 实验装置结构

防止样品破碎, 所以可以做得尽量薄。然后将样品夹在两片厚度为 0.1 mm 和纯度高于 99.99% 的金箔之间, 并将整个样品封装在厚度为 0.3 mm 的镉盒中。镉对于低能中子的俘获截面较大, 可以吸收绝大部分的热中子, 从而可以提高实验精确度。实验中所用样品架为一直径 100 mm 的铝环。将 5 个

* 收稿日期: 2006 - 07 - 10; 修改日期: 2006 - 09 - 15

* 基金项目: 中国核数据中心资助项目

作者简介: 史淑廷(1979-), 男(汉族), 山东日照人, 硕士研究生, 从事核技术及应用方面的研究。

通讯联系人: 罗小兵, E-mail: luo811@mail.sc.cninfo.net

包装好的样品分别放在与入射中子束成 0° , 30° , 60° , 90° 和 120° 角的位置, 以得到不同能量的照射中子。用长中子计数管监视照射时的中子通量。样品照射后, 分别用精确刻度过效率的高纯度锗探测器测量由 ^{76}As 衰变放出的 559.1 keV 的 γ 射线和 ^{198}Au 衰变放出的 411.8 keV 的 γ 射线全能峰计数, 然后以 ^{197}Au 为标准算出 ^{75}As 俘获截面的相对测量值。待测 As 截面与标准 Au 截面之比的表达式为

$$\frac{\sigma_x}{\sigma_{\text{Au}}} = \frac{C_x N_{\text{Au}} \epsilon_{\text{Au}} \lambda_x I_{\text{Au}} f_{\text{Au}} (1 - e^{-\lambda_{\text{Au}} \tau_{\text{Au}}})}{C_{\text{Au}} N_x \epsilon_x \lambda_{\text{Au}} I_x f_x (1 - e^{-\lambda_x \tau_x})} \cdot \frac{\sum M_i (1 - e^{-\lambda_{\text{Au}} T_i}) e^{-\lambda_{\text{Au}} t_{i\text{Au}} / T_i}}{\sum M_i (1 - e^{-\lambda_x T_i}) e^{-\lambda_x t_{ix} / T_i}}, \quad (1)$$

式中, σ 为反应截面; C 为特征 γ 射线全能峰计数; N 为单位面积的原子核数; ϵ 为特征 γ 射线全能峰效率; λ 为反应产物的衰变常数; I 为特征 γ 射线的绝对强度; M_i 为多路定标器上记录的第 i 段照射时间内长中子计数管的计数; T_i 为第 i 段照射时间; t_i 为第 i 段照射结束时刻到放射性测量开始时刻的时间间隔; τ 为放射性测量时间; f 为特征 γ 射线的自吸收修正因子; 下标 x 为待测样品, Au 为标准样品^[3]。

3 实验的 MCNP 模拟

MCNP (A general Monte Carlo N-particle transport code) 是美国 Los Alamos 实验室应用理论物理部的蒙特卡罗小组研制的大型蒙特卡罗程序, 可以用于计算中子、光子和电子或它们的耦合运输问题, 也可以用于计算核临界(包括次临界与超临界)问题。它可以处理任意三维材料结构的粒子运输问题, 几何区域的界面可以是平面、任意二次曲面或椭圆旋转环面, 几何区域中的材料可以由任意多种同位素组成。MCNP 4C 版本于 2000 年发布, 它在 MCNP 4B 基础上增加共振自屏、瞬发 α 本征值、微扰和多群伴随中子输运计算等功能^[5]。

由于 MCNP 不能模拟质子, 所以模拟过程中我们认为中子是从一个理想的面中子源发出。中子从靶头的镀膜层发出后, 首先经过靶头衬底材料和冷却水层, 所以它们对中子的能谱展宽具有一定影响。当中子打到靶头、靶管或其它材料上时, 都会使中子发生散射, 从而使中子能谱发生改变。当中

子打到样品上时, 又由于自屏蔽效应使中子的注量率随入射深度发生变化。我们利用 MCNP 程序模拟, 既可以根据需要把实验装置设成理想条件, 来消除这些效应的影响, 又可以设置成实际的实验条件以便考虑各方面的影响。我们对上面的实验条件分别根据需要进行模拟, 从而求出修正因子。

3.1 中子源的描述

我们使用通用源 SDEF 卡描述中子源。由于加速器产生的质子束打在样品上有一定面积, 因此使用面中子源, 源的位置取在靶头的镀膜层。面源最大半径值由 SI1 卡输入, 用 RAD=D1 进行抽样。由于中子出射能量与角度有关, 首先用 SI2 给出多个分立的角度余弦值, 然后用 RAD=D2 进行抽样, 用 SP2 卡给出相关反应 ($^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ 或 $\text{T}(p, n)^3\text{He}$) 的微分截面值作为抽样权重。相应角度上的中子能量由 DS3 给出, 然后用 ERG FDIR D3 对与角度相关的能量进行抽样。

3.2 几何栅元的描述

先设置一个大的平行六面体, 把整个实验装置包含在内, 把六面体外的栅元中子重要性设为 0, 这样跑出六面体的中子程序就不再追踪, 从而节省计算时间, 提高效率。本实验装置同时使用了 5 个样品, 而且每个样品都有多个包层材料, 如果每个都进行详细描述不但麻烦而且容易出错。MCNP 程序提供了坐标转换卡 TR, 所以只需详细描述一个样品, 其它的用 * TR 卡转换到相应位置即可。

3.3 计算方法的描述

利用 MCNP 程序分别计算多次散射修正因子 S 和注量率衰减因子 D , 然后求出总的修正因子

$$f = SD. \quad (2)$$

3.3.1 计算多次散射修正因子 S

在样品 As 或 Au 中俘获截面的大小可由生成放射性核素的多少来表示, 所以要对多次散射进行修正, 首先分别计算真实条件下待测样品栅元和标样栅元中生成的核素计数 N_A , 再用 VOID 卡将包层材料、靶头材料及水层全部置空, 分别得到理想条件下待测样品和 Au 中生成的核素计数 N_B , 由此分别求出待测样品 As 和标样 Au 的多次散射修正因子 $S = N_B / N_A$, 然后进一步由

$$S = S_{\text{As}}/S_{\text{Au}} \quad (3)$$

计算得到总的修正因子。

对于 As 样品或 Au 中生成的放射性核素的计数, 程序通过 F4 卡与 FM4 卡相结合实现, 其中 FM4 卡调用 ENDF (Evaluated Nuclear Data File) 反应号 102。计数公式为

$$I = C \int \Phi(E)R(E)dE, \quad (4)$$

其中, I 为生成的放射性核素的量, C 为样品栅元

中 ^{75}As (标样 Au 中为 ^{197}Au) 的原子密度 (单位为 $\text{atom}/\text{b} \cdot \text{cm}$), $\Phi(E)$ 为与能量有关的注量 (单位为 $\text{neutron}/\text{cm}^2$)。 $R(E)$ 调用 ^{75}As (标样 Au 中为 ^{197}Au) 的标准中子截面库中的截面数据。

表 1 给出了采用 Li 靶和 T 靶时样品 As 和标样 Au 中生成的放射性核素计数及多次散射修正因子 S 。本文表 1—3 中均采用相对计数。

表 1 样品 As 和标样 Au 中生成的放射性核素计数及多次散射修正因子 S^*

中子源	类别	As					Au				
		0°	30°	60°	90°	120°	0°	30°	60°	90°	120°
$^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$	N_A	9.543	2.724	1.894	1.091	1.488	104.2	25.18	14.81	8.415	10.44
	N_B	9.258	2.310	1.641	1.165	1.164	102.5	22.07	12.68	9.017	7.898
	N_B/N_A	0.970	0.847	0.866	1.067	0.782	0.983	0.876	0.856	1.071	0.756
	S	0.986	0.967	1.012	0.996	1.033					
$\text{T}(p, n)^3\text{He}$	N_A	2.869	0.514 5	0.267 4	0.237 5	0.575 9	34.18	6.244	3.804	3.726	6.126
	N_B	2.828	0.454 9	0.215 3	0.242 0	0.507 9	33.79	5.643	3.048	4.129	5.344
	N_B/N_A	0.986	0.884	0.805	1.019	0.882	0.989	0.904	0.801	1.108	0.872
	S	0.997	0.978	1.005	0.920	1.011					

* 1 N_A 为真实条件下样品栅元生成的核素计数, N_B 为理想条件下生成的核素计数; 2 表内计数典型统计误差约为 2%。

3.3.2 计算注量率衰减因子 D

分别将 5 个角度上的待测样品 As 所在栅元沿中子入射方向划分成 n 份等体积的微栅元。设这 n 个微栅元中生成的核素计数分别为 N_{As_1} , N_{As_2} , N_{As_3} , \dots, N_{As_i} , \dots, N_{As_n} , 则待测样品 As 的衰减修正因子为

$$D_{\text{As}} = \frac{\sum_{i=1}^n N_{\text{As}_i}}{N_{\text{As}_1} \cdot n}, \quad (5)$$

其中 N_{As_i} 表示第 i ($1 \leq i \leq n$) 个微栅元中生成核素的多少, $N_{\text{As}_1} \cdot n$ 表示第 1 个微栅元中生成放射性核素的 n 倍。本实验中, 夹在待测样品两边的两块形状和质量一致的金片的作用是减小中子注量率衰减效应的影响。在模拟计算时, 为了既接近于实验本身, 又能便于计算注量率衰减因子, 首先计算两个标样 Au 栅元在真实条件下生成的总放射性活度 A_{Au_1} 。然后再将待测样品 As 栅元置空, 其它靶管、靶头、包层等材料都不变, 得到理想条件下两个标样 Au 栅元生成的总放射性活度 A_{Au_2} 。从而由

$$D_{\text{Au}} = \frac{A_{\text{Au}_2}}{A_{\text{Au}_1}} \quad (6)$$

得到标样 Au 的注量率衰减因子。最后, 总的注量率衰减因子为

$$D = \frac{D_{\text{Au}}}{D_{\text{As}}}. \quad (7)$$

4 结果与总结

根据表 2 和表 3, 由公式(2)即可求出修正因子 f , 再与实验所得截面值相乘即可得到修正值。我们将实验所得结果与最后的 MCNP 修正结果都列于表 4 中。为了便于比较, 还将我们的数据与其它实验数据、评价及理论计算结果一并画在图 2 中。由图 2 可以看出, 我们修正后的结果与 Gardner 等^[2]的计算结果比较符合, 但仍然比 Macklin^[1]的实验结果和 ENDF/B-VI 库的评价值低很多。由表 4 可以看出, 实验值与修正值最大可差 15.79 mb, 可见实验中的多次散射和自屏蔽效应的影响不可忽略。当然, 实验中减小靶管、靶头材料、水层及样品和包层材料等厚度可以减小多次散射效应和中子自屏蔽效应, 从而有利于提高实验精度。

表 2 样品 As 的 n 个微栅元中生成的放射性核素计数及注量率衰减因子 D_{As}

中子源	位置/(°)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	D_{As}
${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$	0	9.679	9.648	9.626	9.579	9.561	9.508	9.503	9.472	9.438	9.388	0.985
	30	2.799	2.778	2.767	2.754	2.765	2.720	2.724	2.688	2.661	2.647	0.975
	60	1.963	1.939	1.929	1.922	1.917	1.892	1.876	1.864	1.843	1.831	0.966
	90	1.132	1.124	1.116	1.105	1.108	1.094	1.087	1.078	1.069	1.064	0.969
	120	1.519	1.497	1.480	1.470	1.462	1.460	1.454	1.457	1.448	1.434	0.966
$\text{T}(p, n){}^3\text{He}$	0	2.902	2.897	2.892	2.899	2.879	2.870	2.866	2.858	2.851	2.847	0.991
	30	5.248	5.222	5.207	5.186	5.185	5.161	5.124	5.074	5.051	5.021	0.980
	60	2.697	2.670	2.656	2.647	2.619	2.615	2.607	2.598	2.590	2.578	0.974
	90	2.431	2.428	2.416	2.403	2.384	2.374	2.356	2.351	2.343	2.320	0.979
	120	5.869	5.878	5.947	5.861	5.851	5.843	5.775	5.687	5.642	5.610	0.987

表 3 标样 Au 中生成的总放射性活度 A 计数及总注量率衰减因子 D

中子源	A 和 D	位置/(°)				
		0	30	60	90	120
${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$	A_{Au_1}	1.041	2.511	1.472	8.547	1.040
	A_{Au_2}	1.030	2.482	1.431	8.446	1.026
	D_{Au_1}	0.989	0.988	0.971	0.988	0.987
	D_1	1.00	1.01	1.00	1.01	1.02
$\text{T}(p, n){}^3\text{He}$	A_{Au_1}	3.425	6.207	3.668	3.721	6.114
	A_{Au_2}	3.375	6.162	3.669	3.706	6.049
	D_{Au_2}	0.985	0.992	1.000	0.996	0.989
	D_2	0.994	1.01	1.02	1.01	1.00

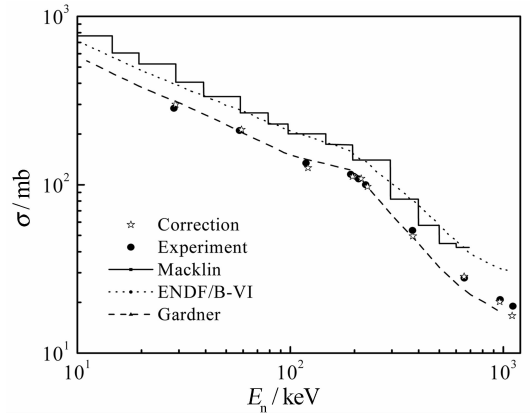


图 2 ${}^{75}\text{As}$ 中子辐射俘获截面

表 4 ${}^{75}\text{As}(n, \gamma){}^{76}\text{As}$ 辐射俘获截面实验值及修正值

中子能量 /keV	俘获截面实验值 /mb	修正因子	修正后截面值 /mb
29 ± 7	284 ± 19	1.055	299.7
59 ± 16	209 ± 14	1.015	212.2
121 ± 27	123.8 ± 8.9	1.017	125.9
196 ± 30	114.2 ± 7.7	0.980	111.9
215 ± 44	107.3 ± 7.2	1.012	108.6
230 ± 12	98.5 ± 6.6	0.989	97.4
376 ± 87	52.9 ± 3.8	0.935	49.4
655 ± 34	27.6 ± 2.1	1.031	28.4
962 ± 135	20.4 ± 1.6	0.989	20.1
$1\ 100 \pm 83$	16.8 ± 1.4	0.991	16.6

参考文献 (References):

[1] Macklin R L. Nucl Sci Eng, 1988, **99**: 133.

[2] Gardner M A, Gardner D G. Capture Cross Section and Spectrum Calculations for Medium Weight Nuclei. Proceeding of International Conference Nuclear Cross Sections for Technology, Knoxville, Tennessee, October 22—26, 1979, US: NBS Special Publication 594, 52, National Bureau of Standards (1980).

[3] Xia Yijun, Yang Zhihua, Luo Xiaobing, *et al.* Nuclear Techniques, 2002, **25**(4): 287(in Chinese). (夏宜君, 杨志华, 罗小兵等. 核技术, 2002, **25**(4): 287.)

[4] Pei Lucheng, Wang Zhongqi. Monte Carlo Method and its Applications. Beijing: Publishing Company of Ocean, 1998, 122(in Chinese). (裴鹿成, 王仲奇. 蒙特卡罗方法及其应用. 北京: 海洋出版社, 1998, 122.)

[5] Briesmeister J F. MCNPTM-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. LA-13709-M, Version 4C. Manual, 2000, 2—5.

Measurement and Monte-Carlo Correction of Neutron Radiative Capture Cross Section for ^{75}As *

SHI Shu-ting, LUO Xiao-bing[#], WANG Lei

(*Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China*)

Abstract: We have measured the neutron radiative capture cross section of ^{75}As in the energy range of $E_n = 29\text{--}1100$ keV using the activation technique at 2.5 MV electrostatic accelerator of Sichuan University. The experimental data were then corrected for multiple scattering and self-shielding effects with MCNP 4C code. We also compared our results, with the existing measurement, calculation and evaluated data in ENDF/B-VI.

Key words: ^{75}As neutron radiative capture cross section; multiple scattering; attenuation of neutron fluence rate; Monte-Carlo correction

* **Received date:** 10 Jun. 2006; **Revised date:** 15 Sep. 2006

* **Foundation item:** Nuclear Data Center of China

[#] **Corresponding author:** Luo Xiao-bing, E-mail: luo811@mail.sc.cninfo.net