

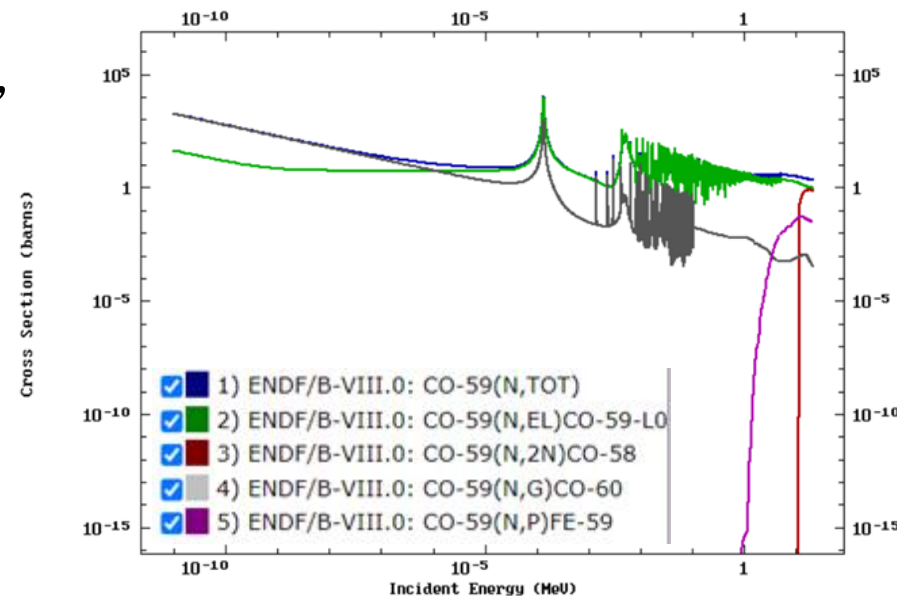
结合飞行时间的瞬发伽马活化分析 研究进展

蒋伟

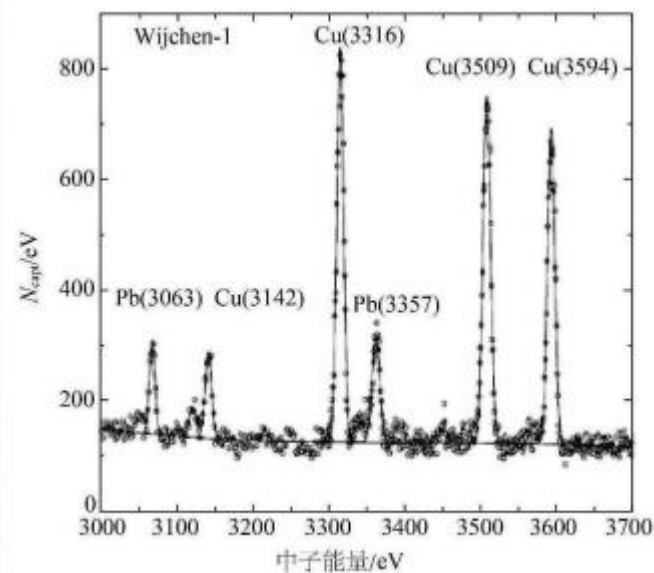
2023-9-21

- 1、研究背景
- 2、国内外研究现状
- 3、研究计划
- 4、目前研究进展
- 5、总结

- 中子活化法，又称中子活化分析（Neutron Activation Analysis, NAA），利用中子与核素发生 (n, p)、(n, γ)、(n, el) 等反应后的核素处于激发态，退激放出 γ 射线，每个核素有特征的退激 γ 射线，来鉴别核素。是活化分析中最重要的一种方法，用反应堆、加速器或同位素中子源产生的中子作为轰击粒子的活化分析方法，具有很高的灵敏度和准确性，对元素周期表中大多数元素的分析灵敏度可达 $10^{-6} \sim 10^{-13} \text{g/g}$ 。中子活化分析主要指测量中子活化后的缓发伽马。
- 瞬发伽马中子活化分析 (Prompt gamma neutron activation analysis, PGNAA或PGAA)是一种灵敏的无损核分析技术，并与缓发伽马中子活化分析具有互补性，应用范围日益广泛。可测量的核素更多。目前国际上多个实验室在开展PGNAA研究，并且在实际应用中发挥作用。
- 近些年，国内在PGNAA在水溶液、工业物料检测的应用中开展了深入的研究，在实验技术及数据分析等方面取得了显著的成果。



- 中子与物质相互作用与物质原子核性质密切相关，相同能量中子与不同物质作用的截面差别很大，体现在宽能谱中子与物质相互作用时的共振峰。
- 每种元素有特征共振峰。在中子共振俘获分析(NRCA)中，利用中子飞行时间信息(即中子能量)来得到特征共振峰以进行元素分析。



罗马出土的水龙头及中子共振俘获分析结果

- 结合中子飞行时间信息以及瞬发伽马中子活化分析(T-PGNAA)来开展元素分析, 可以结合两种分析方法更加精确地提取元素信息, 补充现有的NRCA及PGNAA研究。
- 在脉冲中子源开展元素分析工作时, T-PGNAA相较NRCA及PGNAA研究, 可以提高信噪比, 提升元素分析精度。
- 结合中子飞行时间来开展飞行时间(TOF)-瞬发伽马中子活化分析 (T-PGNAA, 或T-PGAA) 研究的目前仅日本研究组在J-PARC及意大利研究组在ISIS开展实验研究。
- 以往研究中命名为: Time-resolved prompt gamma activation analysis (T-PGAA)、 combines prompt gamma-ray analysis with the time-of-flight technique (TOF-PGA)
- 2014年第一次发表T-PGNAA研究成果: J-PARC。至今T-PGAA侧重研究Co、Cu、Ta、Ag、Cd等元素的效应。

实验整体设置图

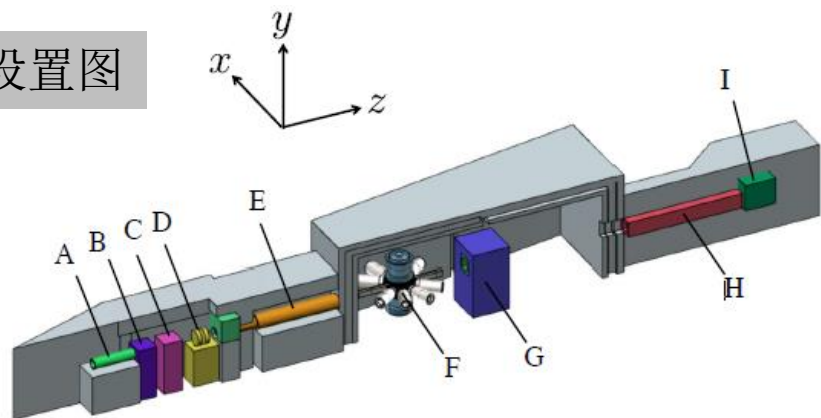


Figure 1. Schematic illustration of the ANNRI installed at the beamline BL04 of the MLF at the J-PARC (A) Collimator, (B) T0-chopper, (C) Neutron filter, (D) Disk chopper, (E) Collimator, (F) Germanium detector assembly, (G) Collimator, (H) Boron resin, and (I) Beam stopper (Iron).

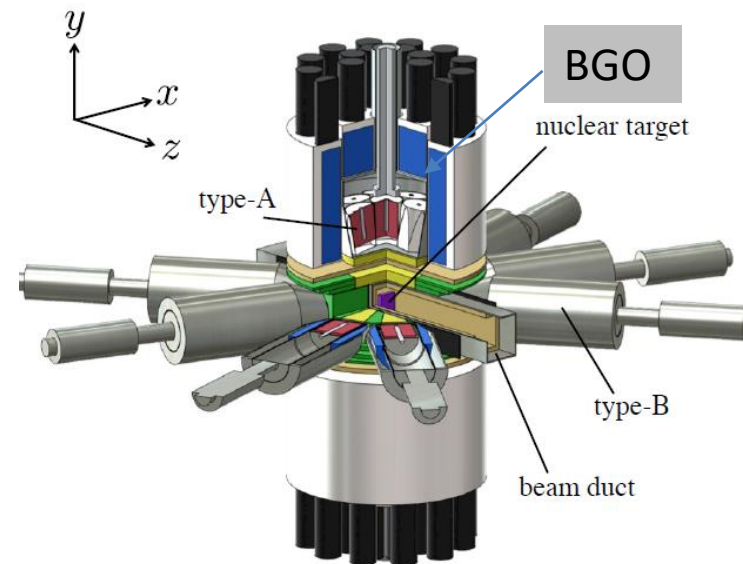


Figure 2. Configuration of the germanium detector assembly.

使用J-PARC的中子束流开展T-PGAA研究，使用Clover探测器及HPGe探测器进行探测，在Clover探测器及HPGe探测器外围使用BGO探测器作为反康普顿探测器，以保证全能峰的分辩。

J-PARC上开展的T-PGAA研究

实验样品: Au, Ag, Co, Cd, and Ta.

5, 13, 23, 1 and 41 mg for Au, Ag, Co, Cd and Ta, Au, Ag, Co, and Ta foils are 5 mm × 5 mm in area. These metal foils were placed side-by-side.

Cadmium standard solution (1 mL = 1 mg of Cd) was evaporated to dryness on fluorinated ethylene propylene (FEP) film. The Au, Ag, Co, Ta, and Cd sample (mixed sample) was sealed in an envelope (10 mm × 10 mm) of FEP film.

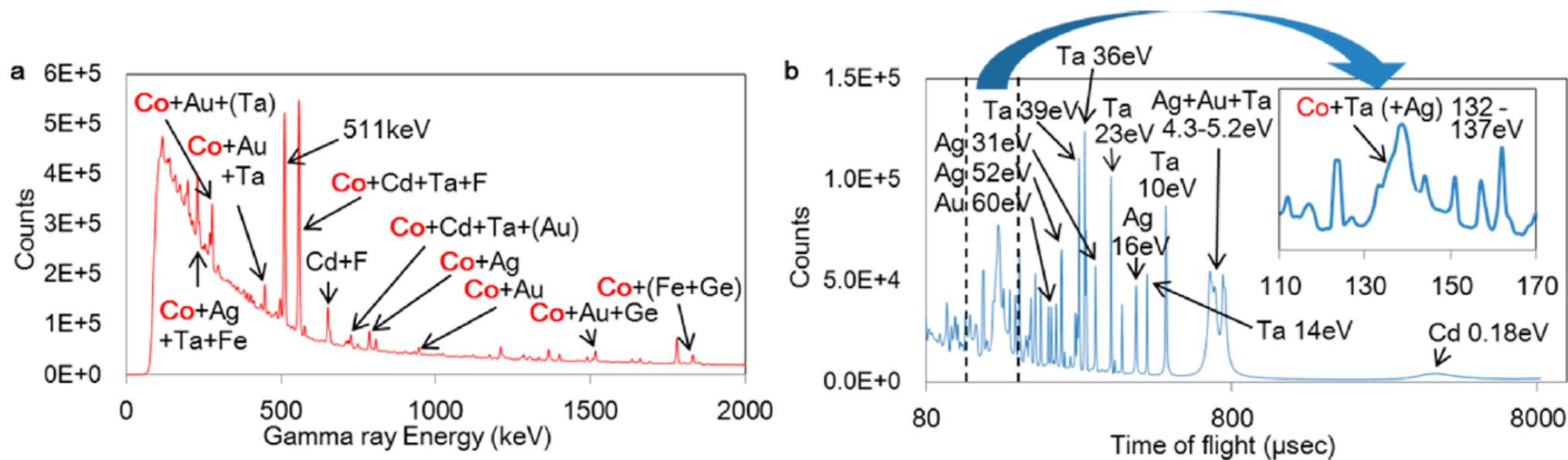


Figure 2. Prompt gamma-ray energy and time-of-flight spectra. (a) Intense gamma-ray peaks are labeled with chemical symbols. All intense gamma-rays from Co overlap ones from other elements in the sample and the neutron shields, etc. (b) Some of resonance peaks are labeled. The inset provides an expanded view of the spectrum in time-of-flight from 110 to 170 μ s, and shows a complicated peak that involves Co, Ta, and Ag peaks.

J-PARC上开展的T-PGAA研究

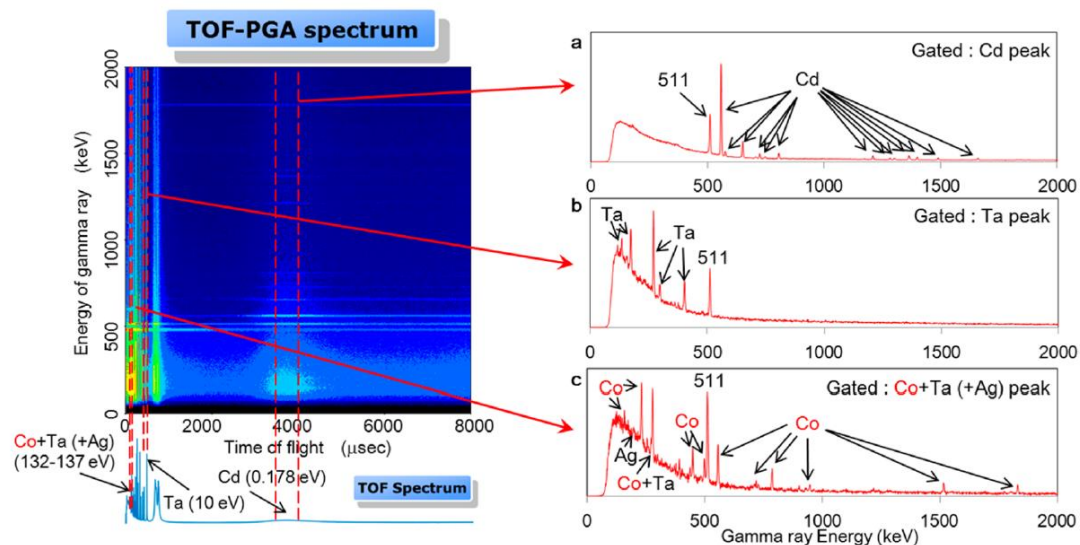


Figure 4. TOF-PGA spectrum analysis by gating on the TOF peaks. The gated PGA spectra are obtained by being gated on the resonance peaks of (a) Cd, (b) Ta, and (c) Co, Ta (and Ag) in the TOF-PGA spectrum for the neutron energy of 0.178, 10, and 132–137 eV, respectively. The SNRs of the gamma-ray peaks of Cd, Ta, Co in the gated PGA spectra (a–c) are significantly improved compared to those in the PGA spectrum (Figure 2a).

Table 1. Signal-to-Noise Ratios^a of the Mixed Sample and the Meteorite Sample

type of spectra	Co	Cd	Ag	Au	Ta	Co Gibeon
PGA	(0.5)	(3.0)	(0.11)	(0.04)	(0.20)	(0.21)
TOF	(1.0)	1.4	6	1.4	10	0.6
MPGA	0.8	6	0.04		0.7	0.36
TOF-PGA	5	3.2	5	1.5	19	2.3
TOF-MPGA	0.6	8			2.1	

^aRatio of net peak area to background. Values in parentheses are affected by the gamma-rays from other elements. The energy ranges of the neutron and gamma-ray are from 0.1 to 500 eV and up to 2000 keV, respectively.

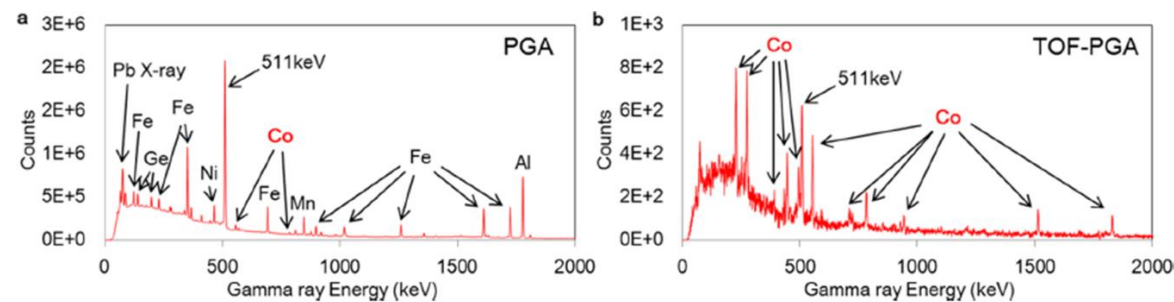


Figure 5. PGA and TOF-PGA spectra of the Gibeon meteorite. (a) Intense gamma-ray peaks are labeled with chemical symbols of the strongest component in the peaks. (b) The gated PGA spectrum is obtained by being gated on the resonance peak of Co in the TOF-PGA spectrum. The SNR of the gamma-ray peaks of Co in (b) the gated PGA spectrum is significantly improved compared to those in (a) the PGA spectrum.

ISIS上开展的Cu样品的T-PGAA研究

含铅青铜

黄铜

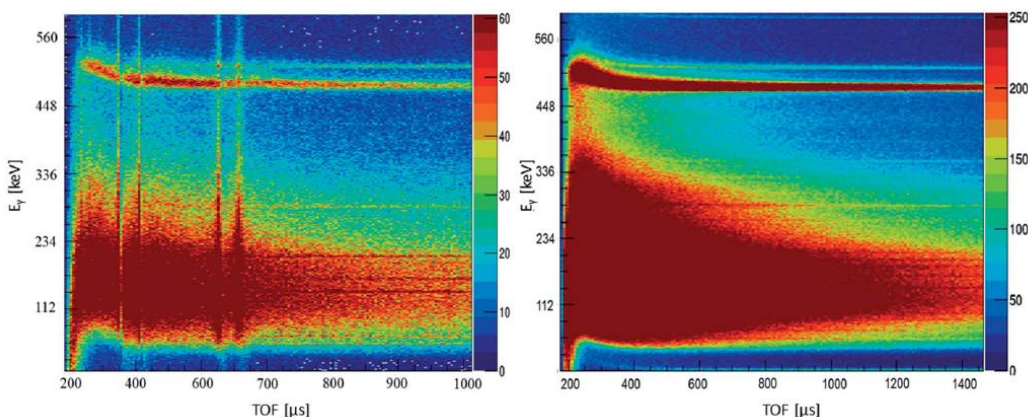
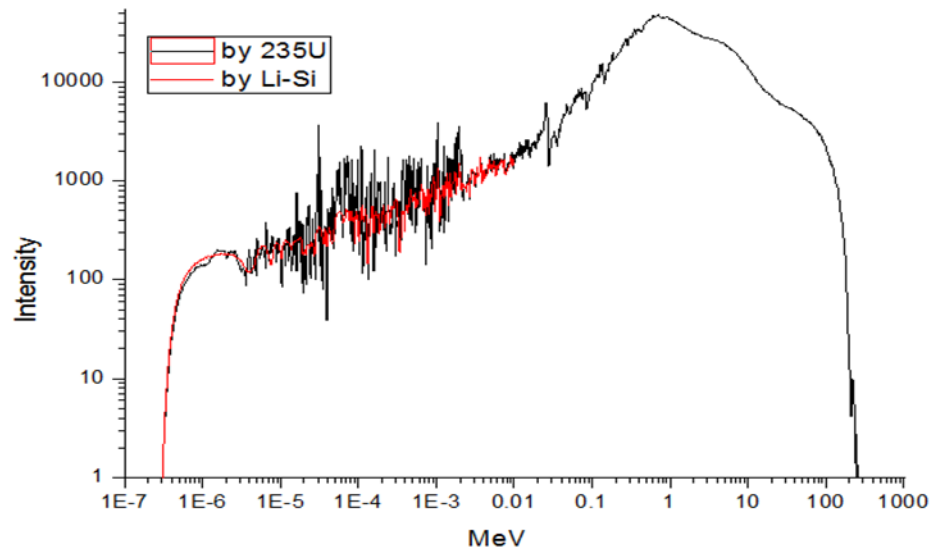


Fig. 1 The bidimensional matrix representing the γ -energy vs. the time of flight of the absorbed neutron resulting in the prompt gamma emission from the leaded bronze (on the left) and the brass standards (on the right). From this representation it is possible to appreciate the resonances in time of flight and some of the characteristics of the gamma spectra such as the annihilation peak at 511 keV.

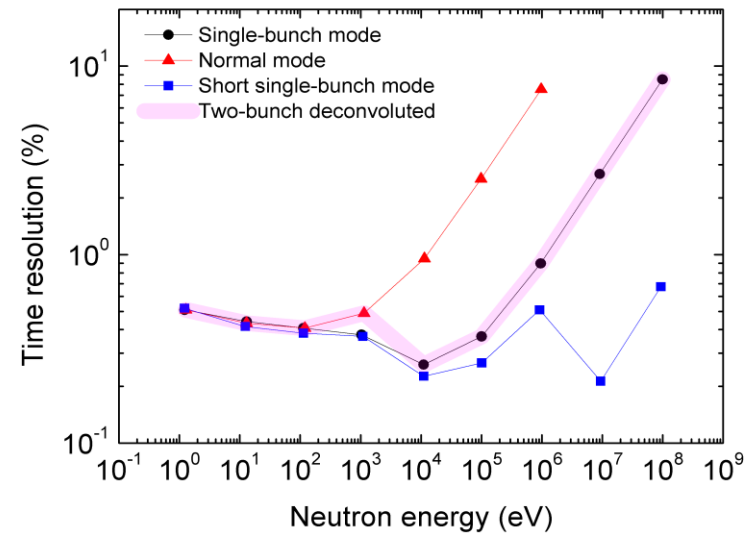
Table 3 Comparison between the quantitative results expressed in wt% for each element identified in the T-PGAA spectra, the certified values of the two MBH standard metal samples, and the XRF results. Concerning the T-PGAA results, for manganese, Mn d is the delayed signal. The quantitative values are reported considering an error of 0.01 except for the elements from Bi to Sb in the brass table, which are elements present in traces, but well visible in the spectra due to their high gamma cross section. We present the quantitative analysis of these elements for comparison with the certified value, considering that for unknown objects, the calculation would be more difficult with such precision

	T-PGAA wt%	Certificate wt%	Δ wt% (TPGAA - Certif)	XRF wt%
Leaded bronze				
Cu	77.23	77.23 \pm 0.1	—	79.0 \pm 0.2
Sn	7.31	8.26 \pm 0.05	0.95	6.76 \pm 0.03
Ag	0.01	0.05 \pm 0.01	0.03	<LOD
Mn	4.67 d	—	—	<LOD
Ni	0.53	0.69 \pm 0.01	0.16	0.71 \pm 0.01
Al	0.01	0.020 \pm 0.001	0.01	<LOD
Pb	11.02	12.46 \pm 0.10	1.44	9.31 \pm 0.04
As	0.11	0.150 \pm 0.002	0.04	<LOD
Bi	0.07	0.060 \pm 0.001	0.01	<LOD
Sb	0.69	0.560 \pm 0.005	0.13	0.16 \pm 0.03
0.5				
Brass				
Cu	94.80	94.81 \pm 0.07	—	94.33 \pm 0.02
Zn	0.01	4.92 \pm 0.04	4.91	5.19 \pm 0.01
Sn	0.09	0.060 \pm 0.002	0.02	0.45 \pm 0.01
Fe	0.02	0.040 \pm 0.001	—	0.003 \pm 0.004
Ni	0.03	0.040 \pm 0.001	0.01	<LOD
Al	<LOD	0.00	—	<LOD
Pb	<LOD	0.090 \pm 0.003	—	0.03 \pm 0.02
As	0.03	0.0100 \pm 0.0003	0.02	<LOD
Te	<LOD	0.020 \pm 0.001	—	<LOD
Bi	0.007	0.0060 \pm 0.0002	0.001	<LOD
Se	0.001	0.0020 \pm 0.0001	0.001	<LOD
P	0.001	0.0050 \pm 0.0005	0.003	<LOD
Ag	0.006	0.0060 \pm 0.0005	0.001	<LOD
Mn	0.670 d	0.0006 \pm 0.0001	—	<LOD
Sb	0.005	0.0090 \pm 0.0005	0.004	<LOD

- 反角白光中子束线能谱宽：0.3 eV-300 MeV, 束流功率相对较强，在宽能区时中子活化的反应道更多，可以更大可能性地得到活化反应特征伽马。且可以提供高精度的中子飞行时间，适合开展T-PGAA研究。
- 离线测量：宽能谱高流强中子束流也有利于核素中子活化后开展缓发伽马离线测量。



Back-n中子能谱模拟和测量结果
(距散裂靶76 m, 加镉吸收片)



不同加速器运行模式下飞行时间分辨率
(距散裂靶80 m)

- 主要考虑BGO/LaBr₃(Ce)/HPGe三种伽马探测器，计划主要采用HPGe探测器进行伽马全能峰探测，同时考虑结合使用LaBr₃(Ce)探测器。

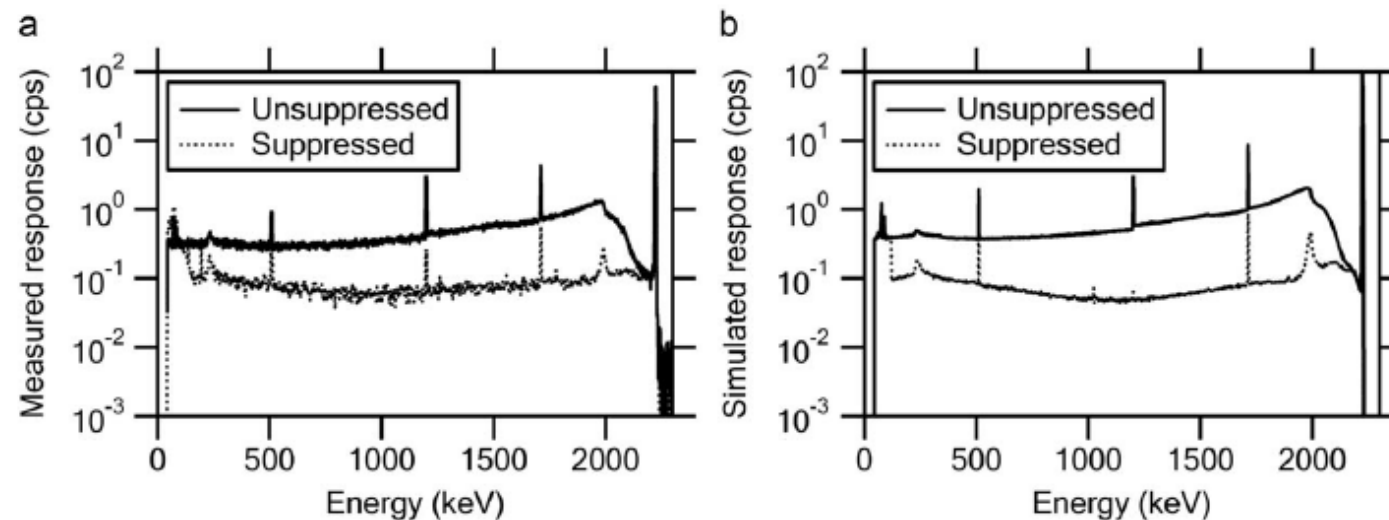
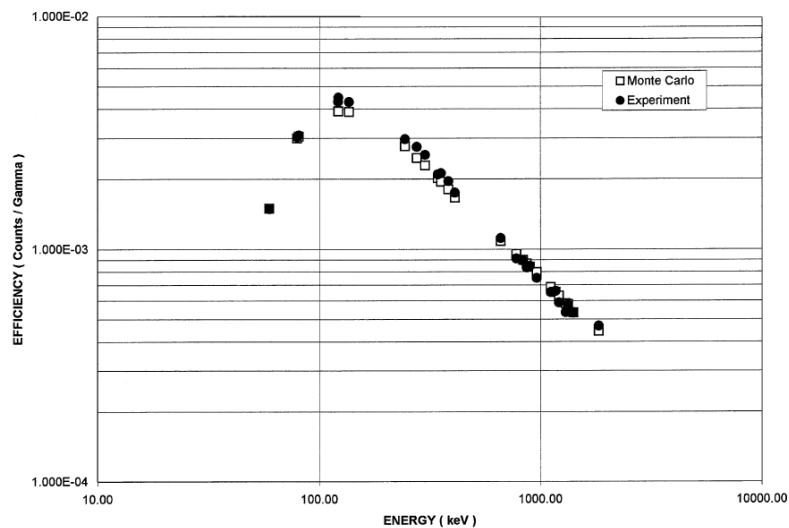
表1 3种探测器性能参数

材料	原子序数	密度/g/cm ⁻³	发射波长/nm	光产额/keV	衰减时间/ns	折射率	晶体尺寸
LaBr ₃	57 35	5.2	380	63	16	1.9	φ76 mm × 76 mm
BGO	83 32 8	7.13	480	9	600	2.15	φ76 mm × 76 mm
HPGe	32	532					φ30 mm × 40 mm

表2 3种探测器在低能区峰位的半高宽能量比较

探测器	能量/ <i>FWHM</i>					
	661.7 keV	η	1 173.2 keV	η	1 332.5 keV	η
HPGe	1.32	0.20%	2.37	0.20%	2.43	0.18%
LaBr ₃	21.23	3.21%	30.96	2.64%	34.65	2.60%
BGO	62.63	9.45%	75.61	6.44%	69.70	6.15%

- 由于HPGe探测器价格高，通常使用的HPGe晶体直径小于2英寸，对于高能伽马射线的探测效率较低，且测量全能峰事件比例偏低。
- 使用反康普顿探测器在HPGe探测器周围进行康普顿散射后粒子探测器，进行反符合，可以降低康普顿散射在HPGe探测器得到的结果中的比例，提高全能峰的峰康比。



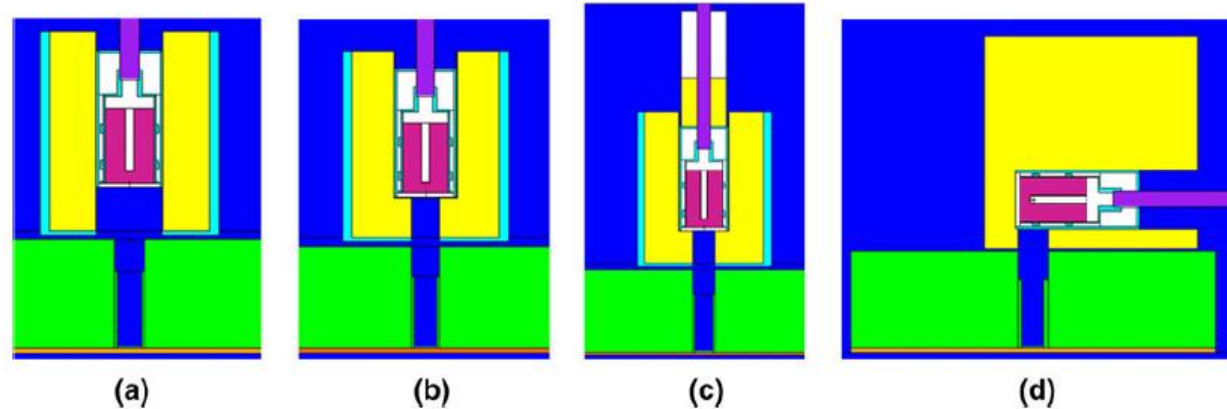
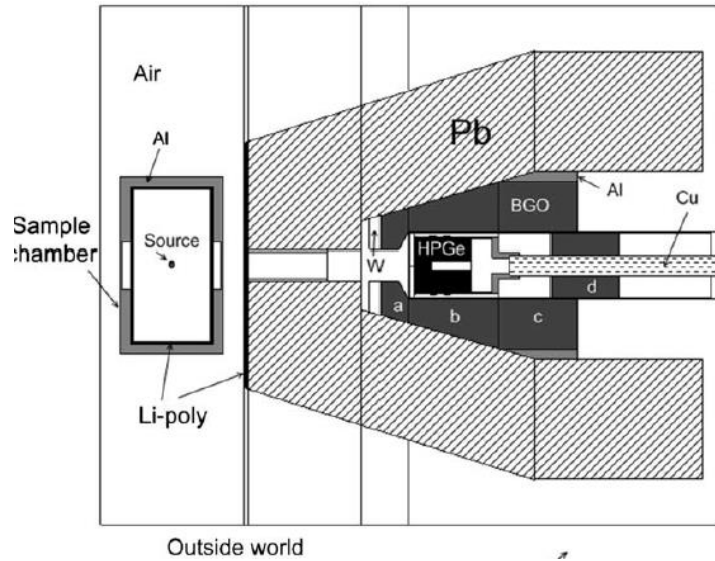


Fig. 1 Basic geometries of Compton-suppressed detectors for PGAA. (a) cylindrical, (b) cylindrical with nose, (c) cylindrical with nose and catcher, (d) perpendicular

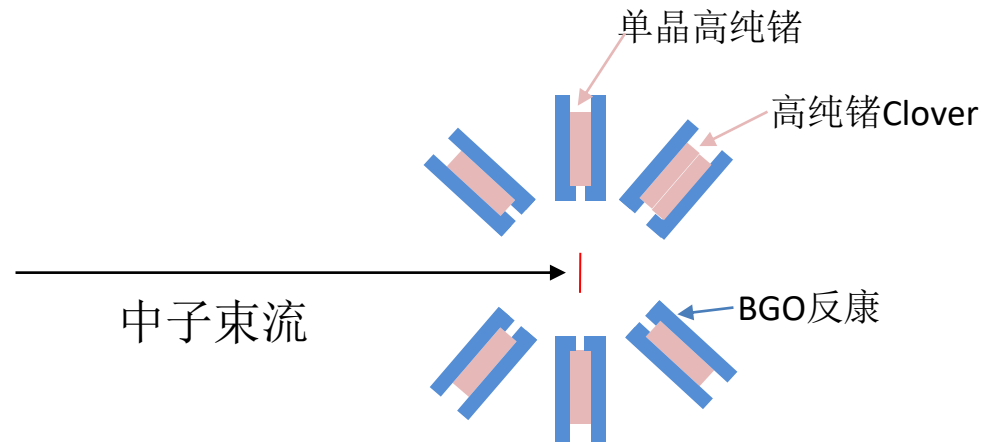
- 根据闪烁体特性及已发表的研究结果，BGO探测器探测效率高，晶体价格低，适合作为反康探测器。
- 根据模拟结果才用了第二种(b)的BGO形状方案。
- 反康探测器长度&厚度：

反康探测器长度适当，覆盖高纯锗探测器的情况下越长越好。

对于伽马射线的反康而言，越高能的伽马射线，需要使用厚的BGO探测器，例如为了有效进行10MeV γ 射线的反康，需要使用45-50 mm厚的BGO。

在Back-n上开展T-PGAA的初步方案

- 考虑在Back-n布置高纯锗探测器开展T-PGAA研究，最终方案考虑Clover-Ge+同轴高纯锗方案，考虑到 γ 出射角度与 γ 跃迁的性质相关，优先放置于 $\theta = 55^\circ$ 处。
- 考虑加铅砖进行中子及散射伽马屏蔽。同时该套系统可以用于伽马谱学开展核数据测量、核结构实验研究。
- 初步方案：采购2套反康高纯锗探测器，放置于 55° 进行探测瞬发伽马。并且也可以离线使用，测量中子活化之后的缓发伽马。



开展T-PGAA研究的探测器方案（初步设计图）

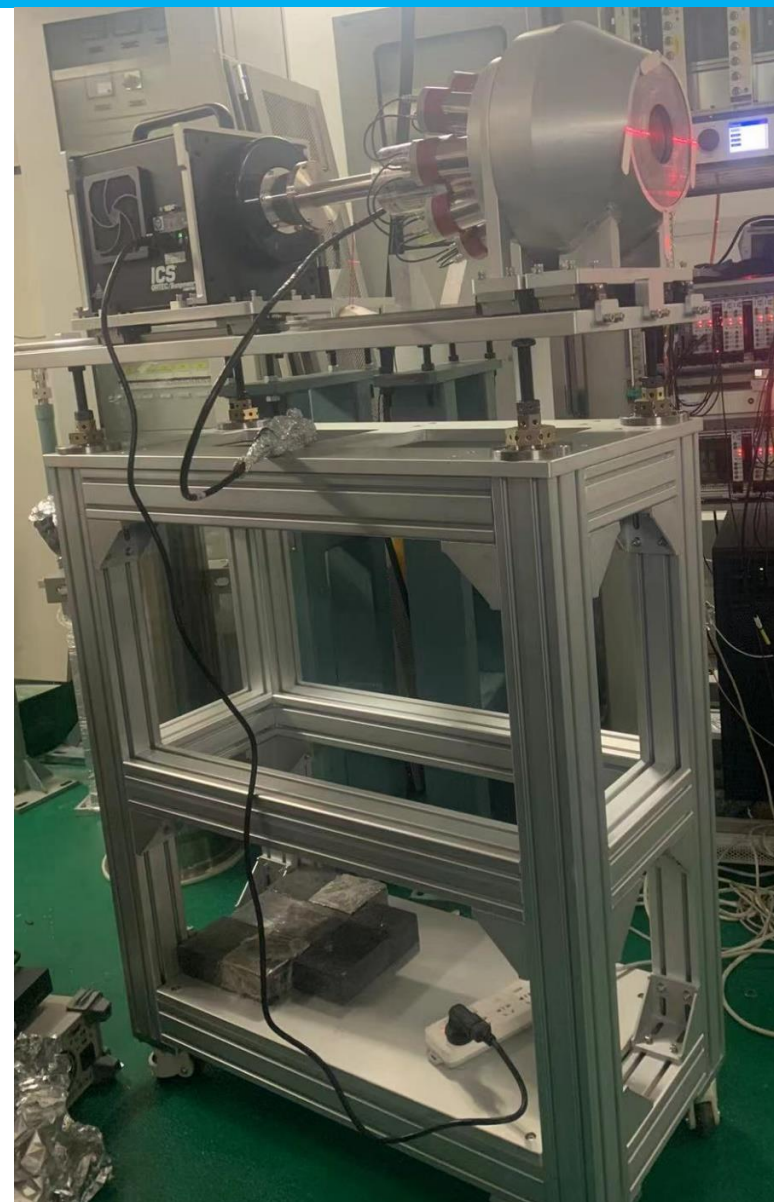
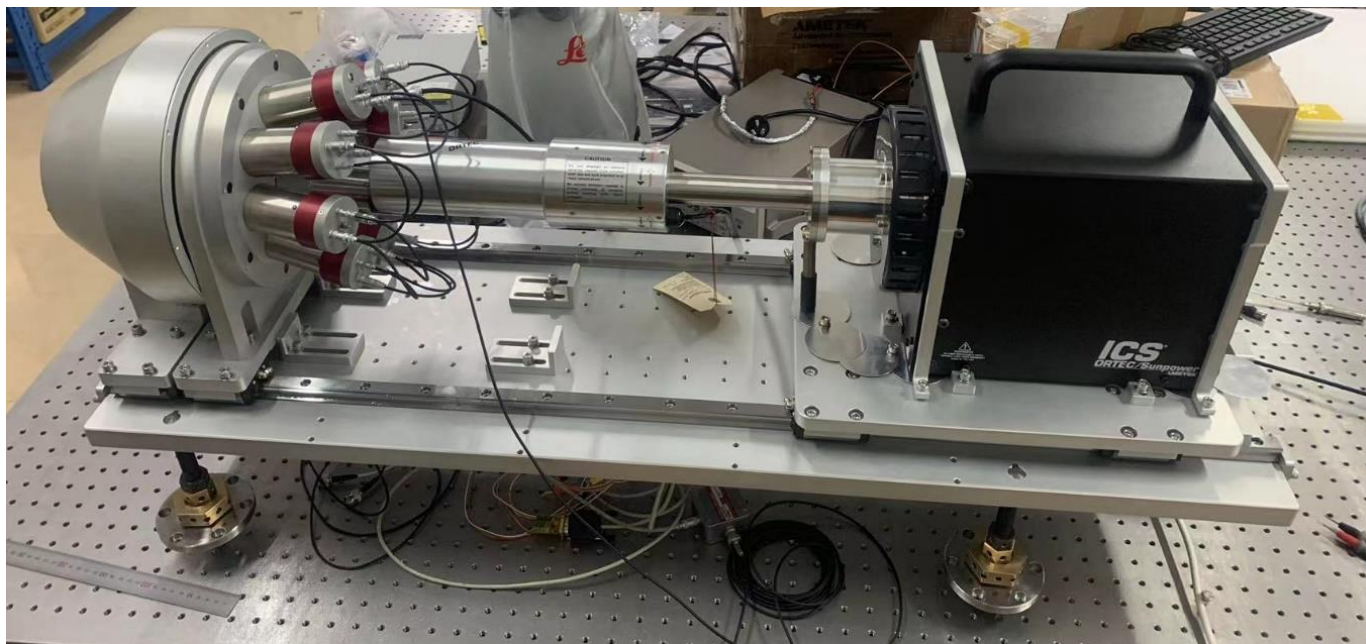
反康高纯锗探测器

- HPGe: 40%效率, n型高纯锗, 电制冷, 晶体管复位型前放
- 反康探测器: 44.5 mm厚度 BGO晶体; 8个光电倍增管读出; Scionix公司生产



反康高纯锗探测器

- 高纯锗+反康探测器支架，探测器中心与束流高度一致
- BGO反康探测器前3cm铅砖
- 反康探测器入射窗 直径5cm，可调

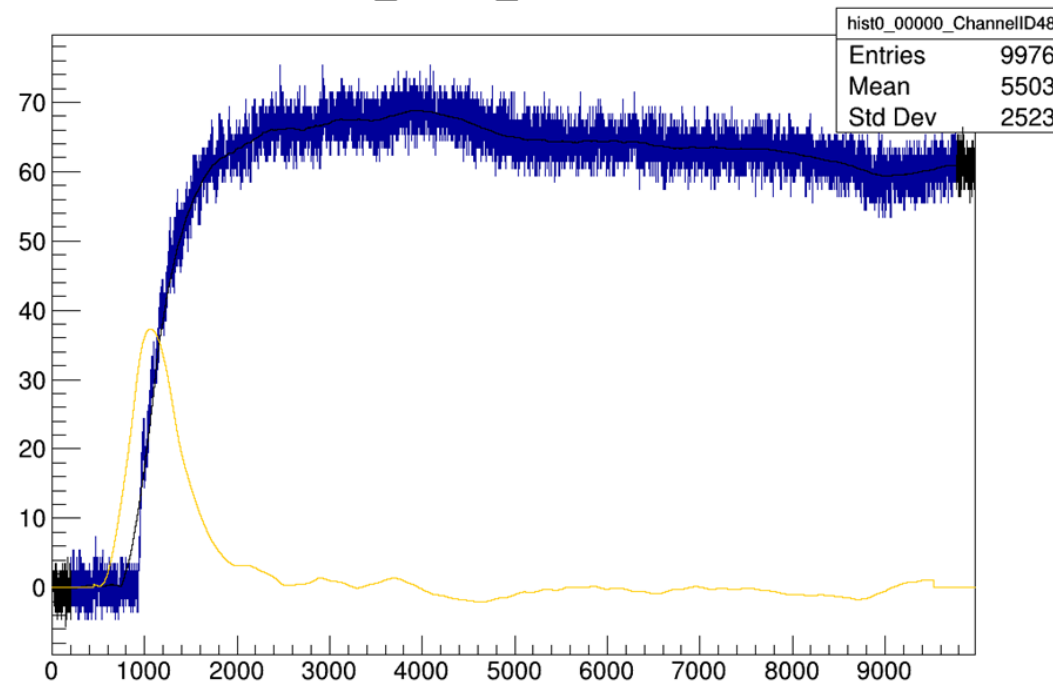




高纯锗探测器信号

复位信号及主放输出(ORTEC 672)
黄色:前放信号; 紫色: inhibit信号; 蓝色: 主放输出

hist0_00000_ChannelID48



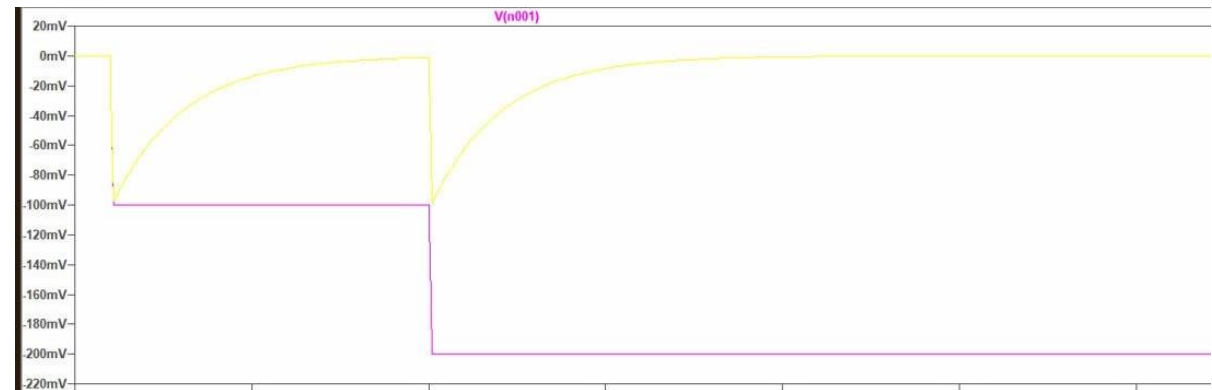
BGO前放输出

■ 为便于测试，使用可变增益板卡PCIe-X1063(科大电子学组制作)测试

- 支持引入T0信号，可使用DAC设置T0阈值
- 输入范围可配：1Vpp，2Vpp，10Vpp，20Vpp
- 14bit @ 125MSPS
- 支持独立测试

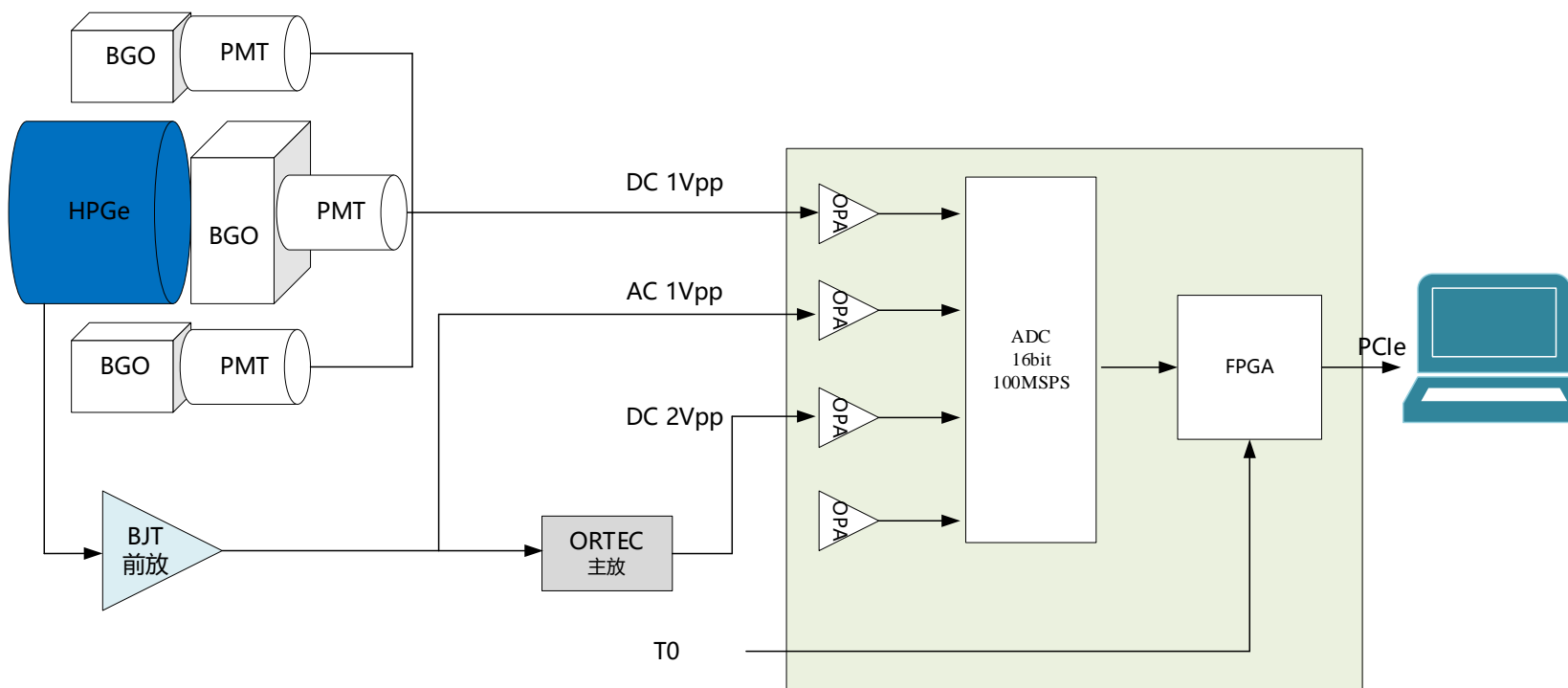
■ 适配HPGe

- 以CSA型HPGe分析，10MeV对应积分后信号幅度0~-550mV
- 直接测量0~-5V动态范围，小信号难以分辨
- 使用交流耦合方式，直接测量0~-550mV
- 选择200pF和10k，实现2 μ s 的 τ (交流)，实现较快下降沿

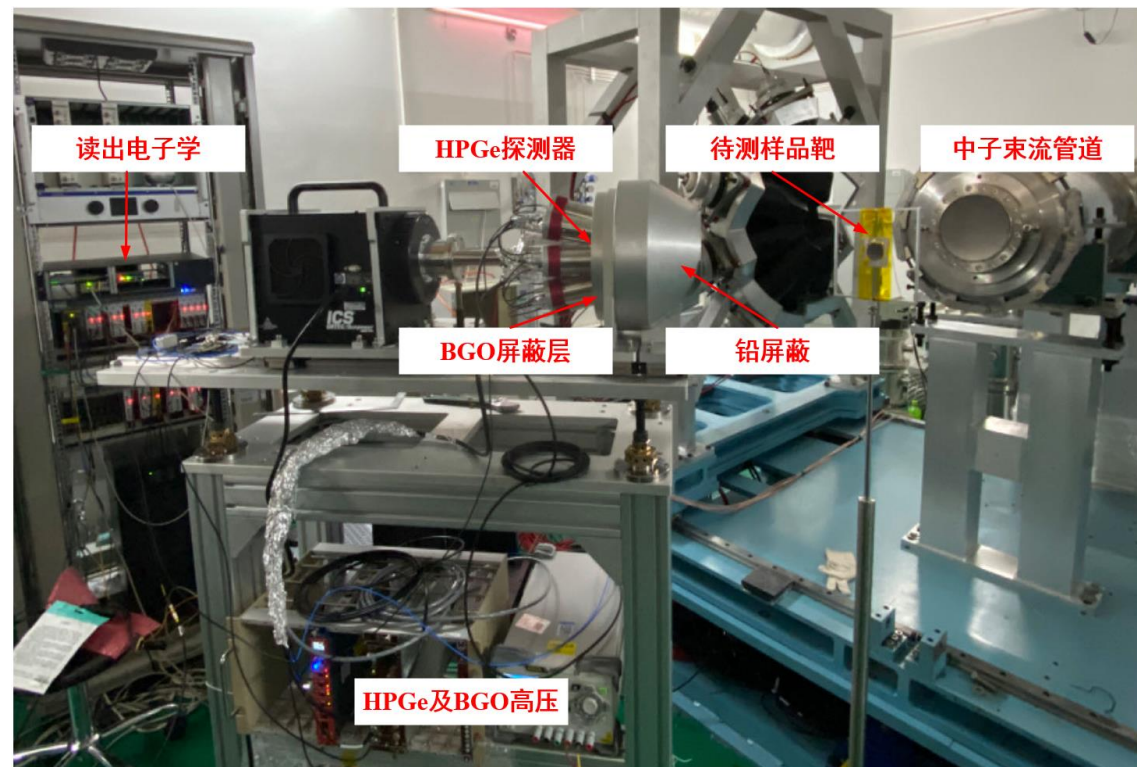


■ 使用可变增益板卡PCIe-X1063测试

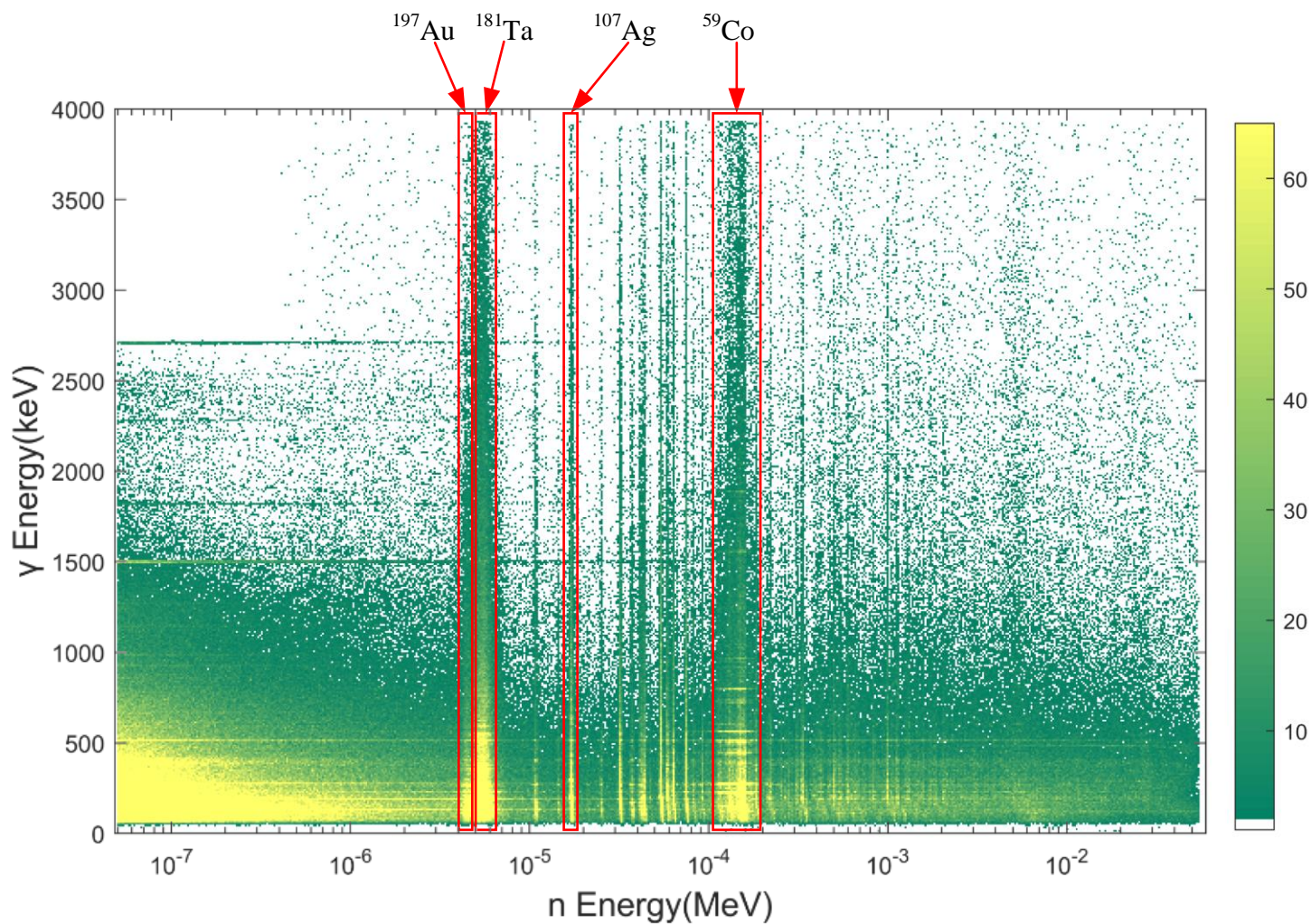
- 使用AC 1Vpp测量HPGe前放输出信号，成型为 τ 为2 μ s的指数衰减信号
- 使用DC 1Vpp测量BGO信号
- 使用DC 2Vpp测量ORTEC 672主放输出信号



- 探测器距离样品 ~30cm
- 探测器与束流线 50°
- 测量样品: ^{197}Au 、 $^{\text{nat}}\text{Ag}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Co}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Ta}$ 、BN
- 电子学设置
 - 噪声增大, 使用前放输出作为触发条件, 实现阈值在300 keV
 - 为降低阈值, 使用**HPGe主放输出信号**作为触发来源, 阈值设置为70 keV
 - 主放信号过阈时, 同时采集**HPGe前放、主放、BGO信号**
 - 波形长度25 μs , 触发前10 μs
- γ -flash事件并未导致信号饱和
- 前放复位信号实际采集约20 μs (交流模式)
- γ -flash在的采样窗口25 μs 内事件未被反康
- 考虑将有记录恢复信号的束团的事件排除



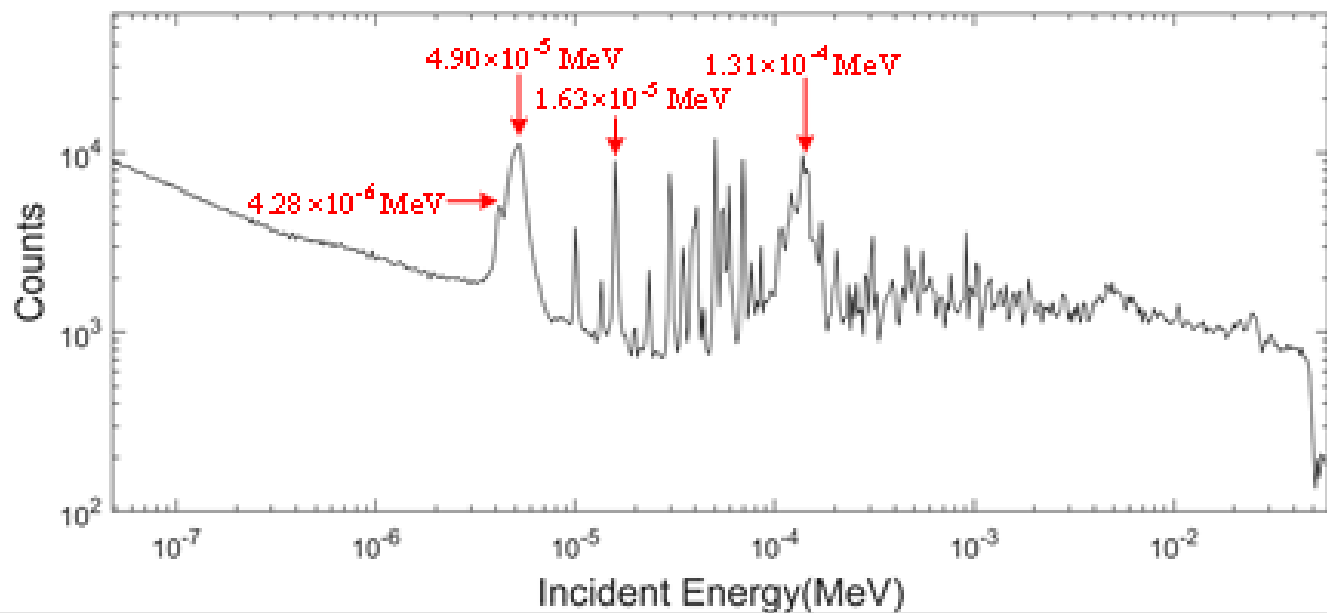
混合样品的 E_γ - E_n 谱



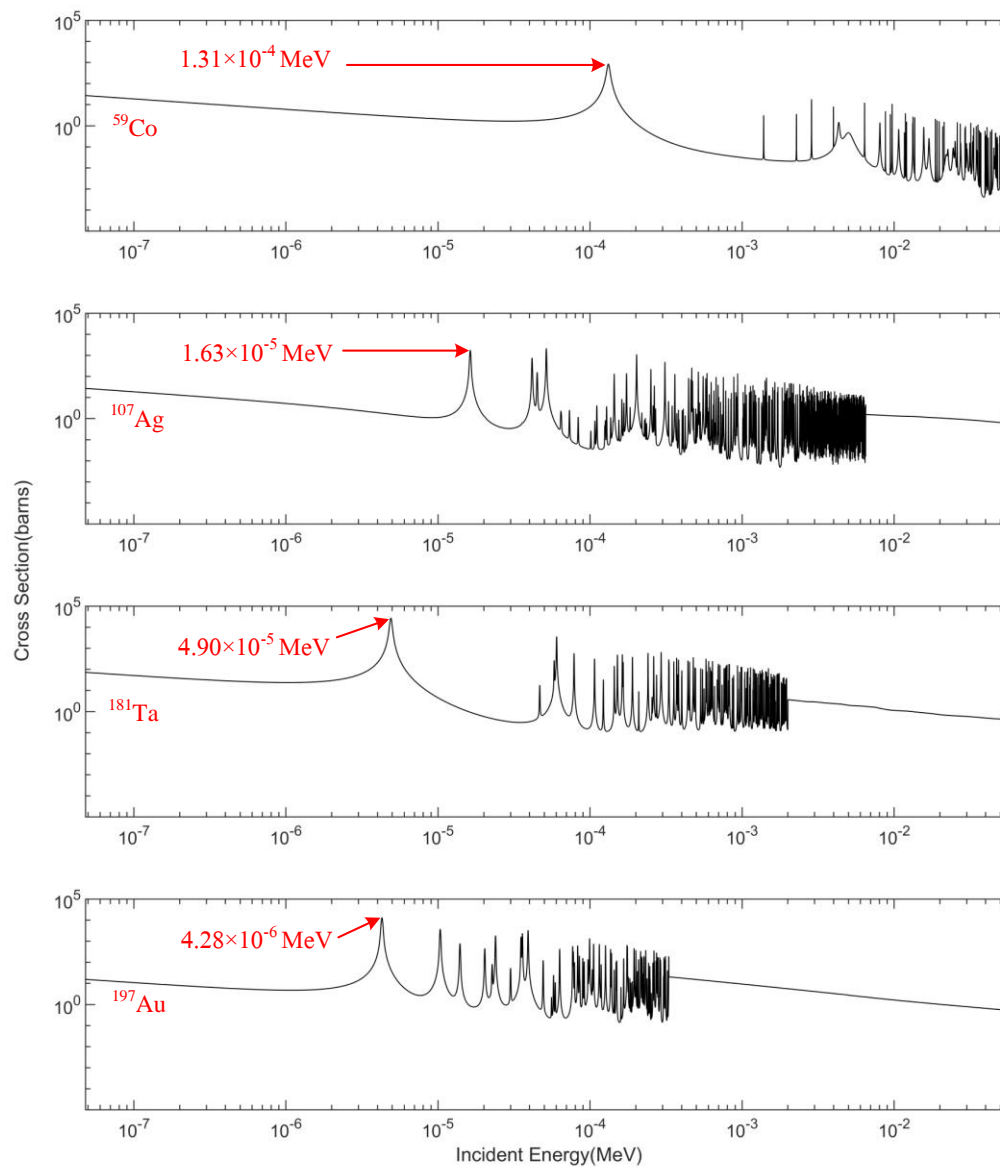
- 中子与不同核素的中子俘获共振峰。
- 特定能量的伽马峰。

^{nat}Co ^{nat}Ag ^{nat}Ta ^{197}Au 组合样品的 E_γ - E_n 谱

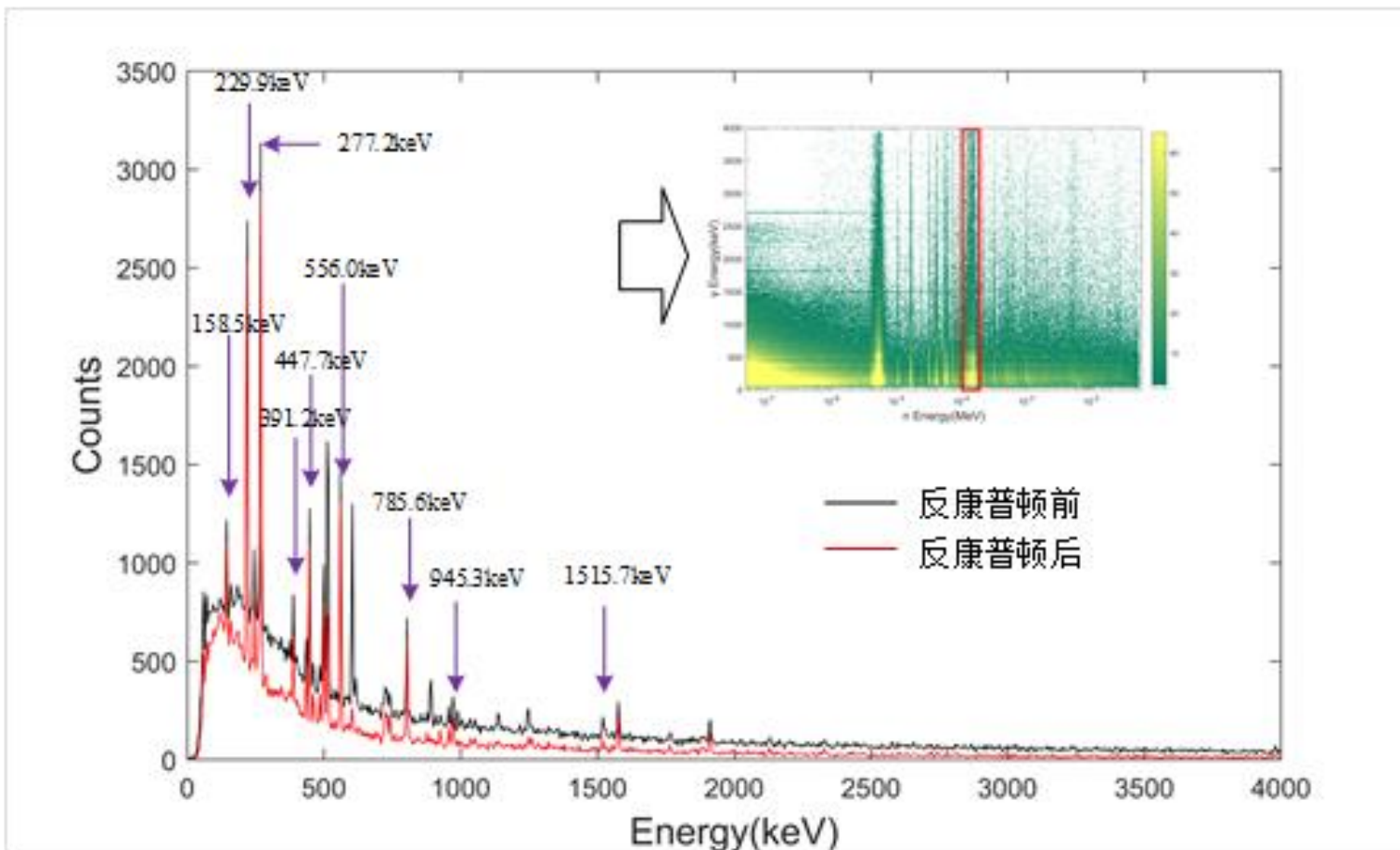
中子能量计数谱



natCo natAg natTa ^{197}Au 组合样品的 E_n 谱



选择Co的中子共振峰



反康普顿前后选择 ^{59}Co 特征峰的 γ 能谱

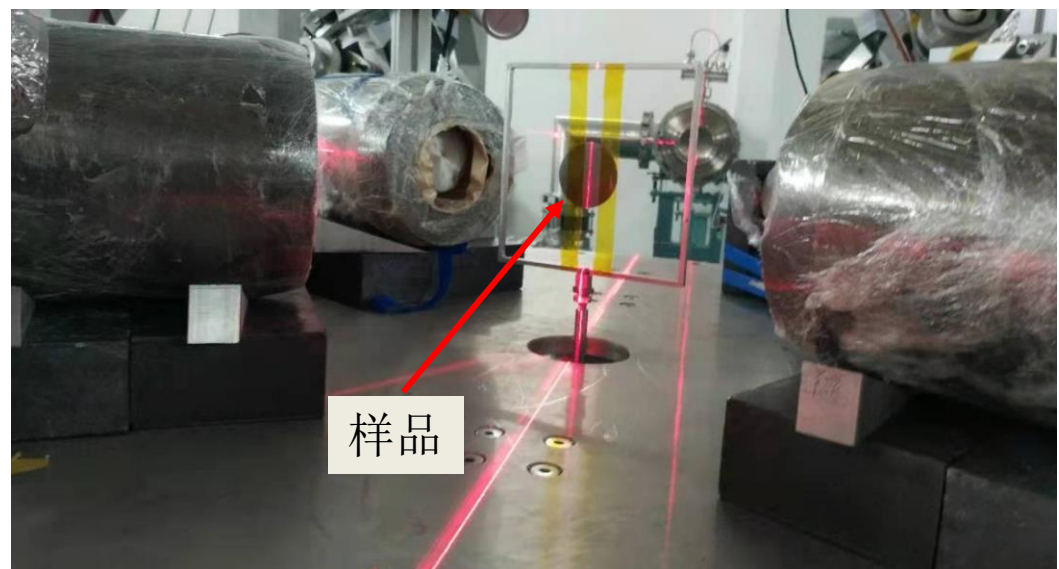
- 选择 1.31×10^{-4} MeV 处的 ^{59}Co 中子共振峰的 γ 能谱。
- 反康vs无反康。
- 反康及中子共振峰选择可以提高信噪比。

多探测器测试实验

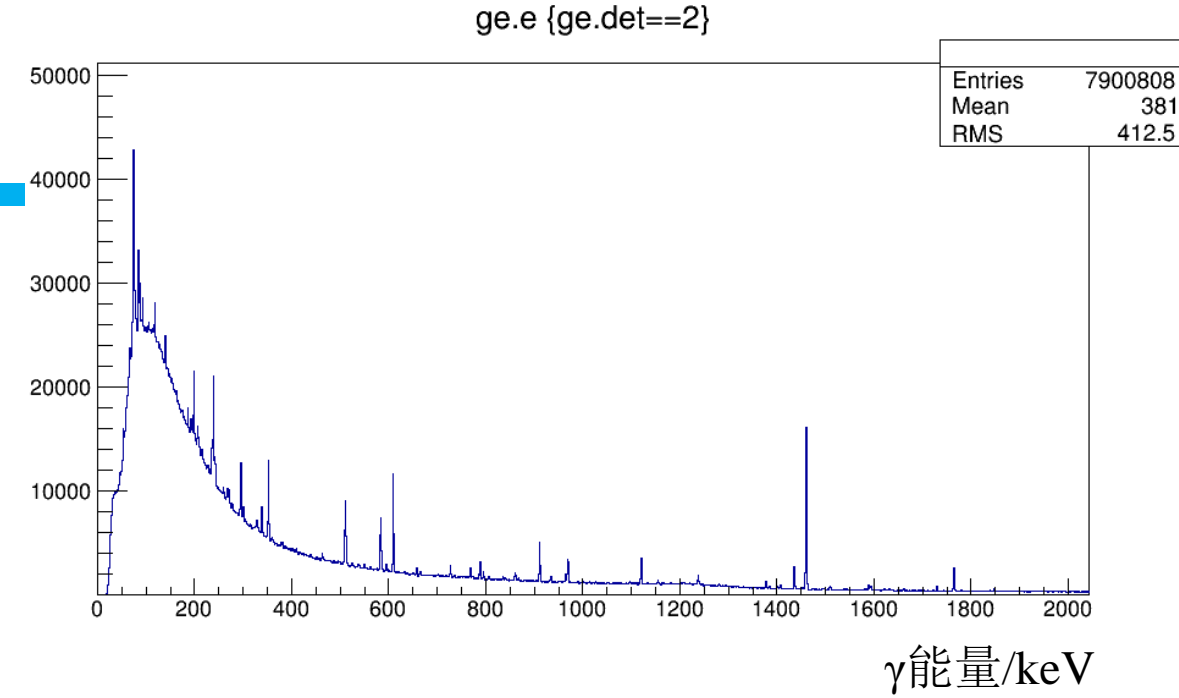
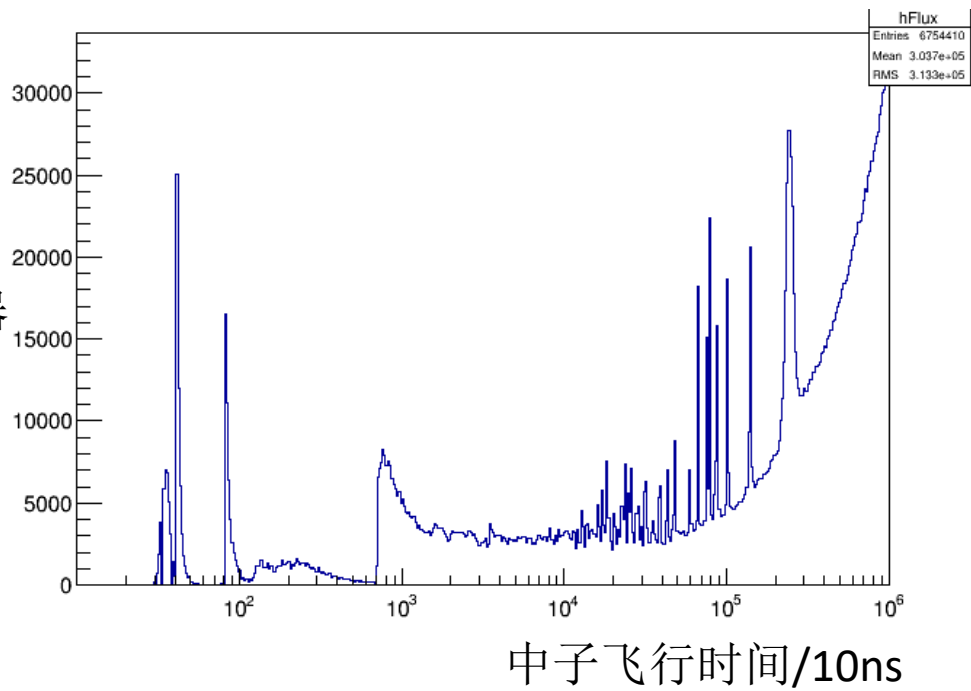
- 2021年利用用户开展物理实验期间开展了Ta、Co、Ag标准样品测试实验。



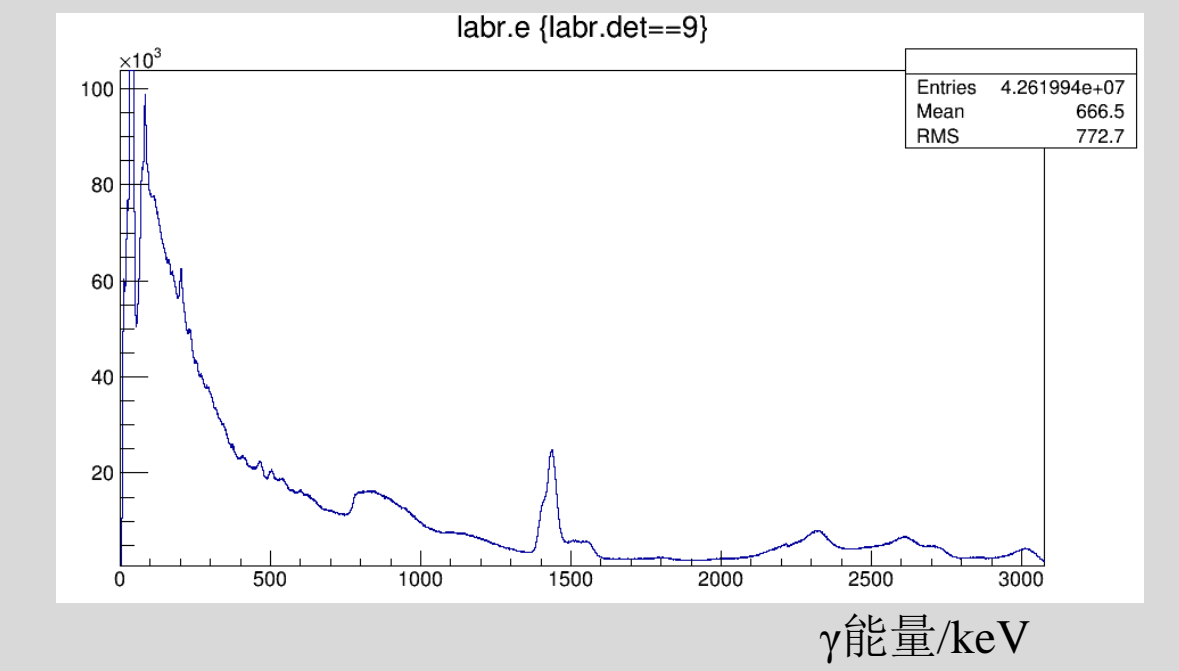
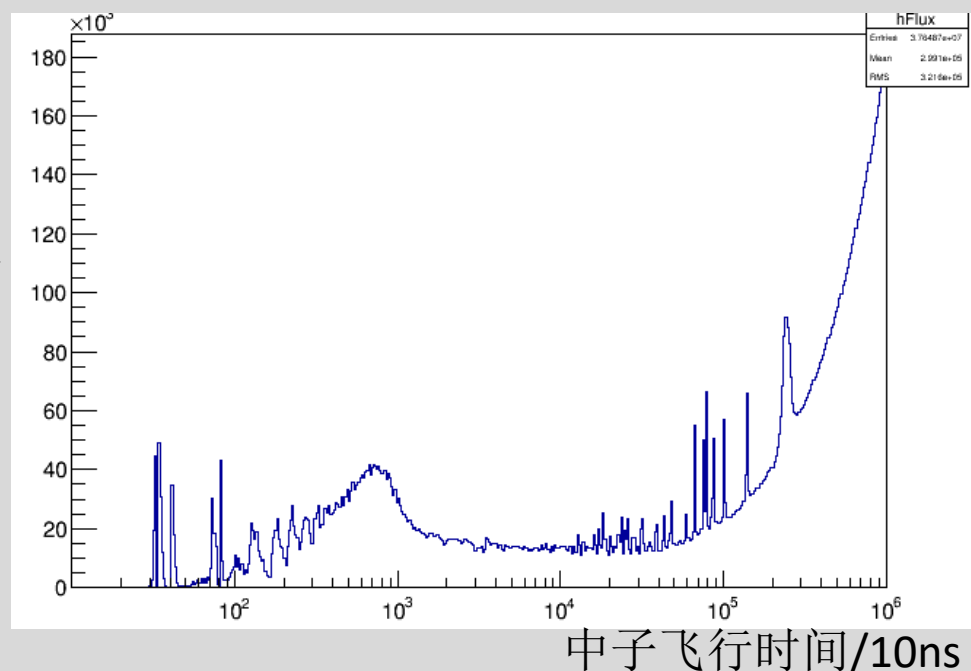
2个HPGe、3个Clover探测器及5个LaBr₃探测器



HPGE探测器



LaBr₃探测器

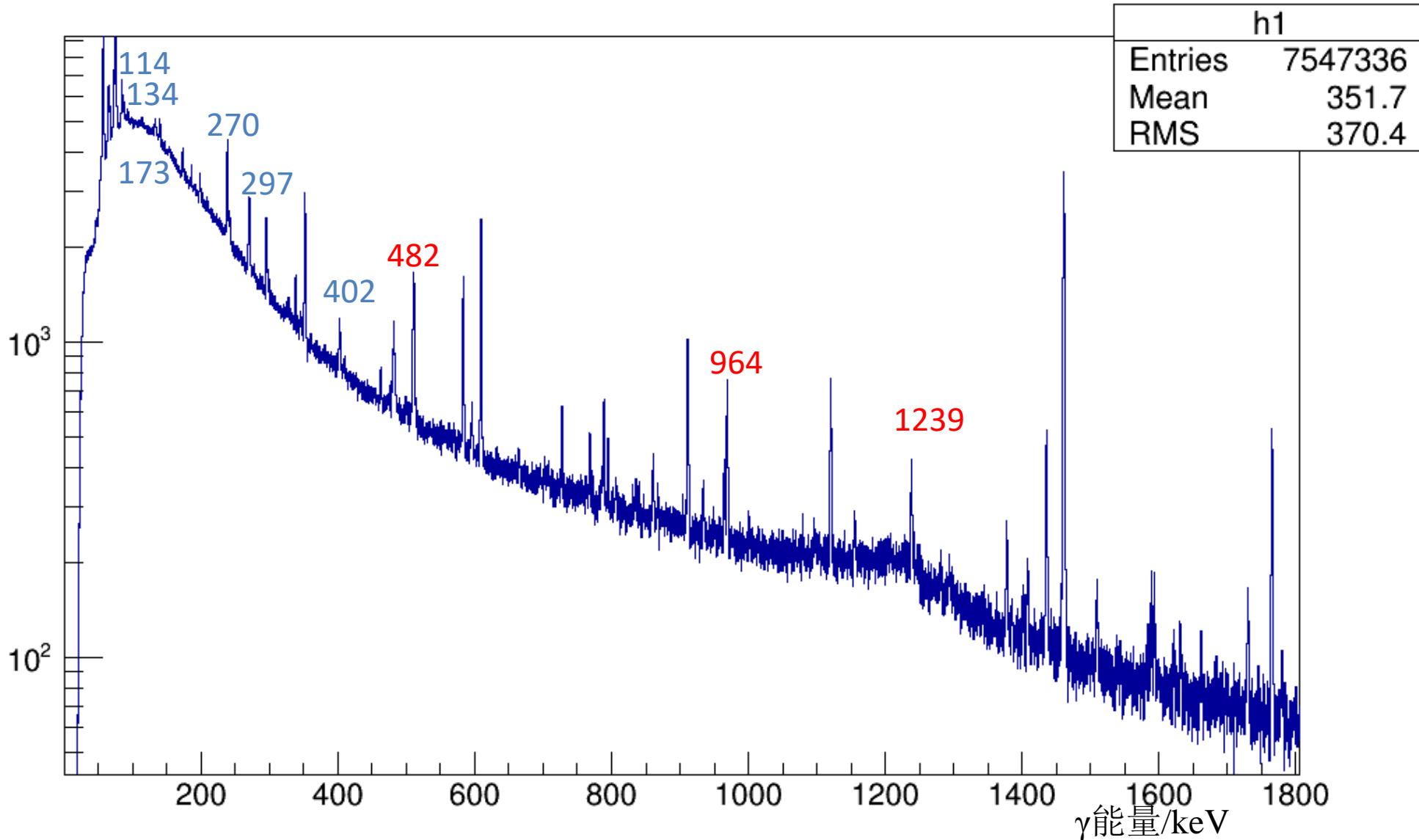


^{181}Ta

- $^{181}\text{Ta}(n,p)^{181}\text{Hf}$
- $^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182}\text{Ta}$
- $^{181}\text{Ta}(n,e)^{181}\text{Ta}$



ge.e {ge.det==2}



^{181}Ta

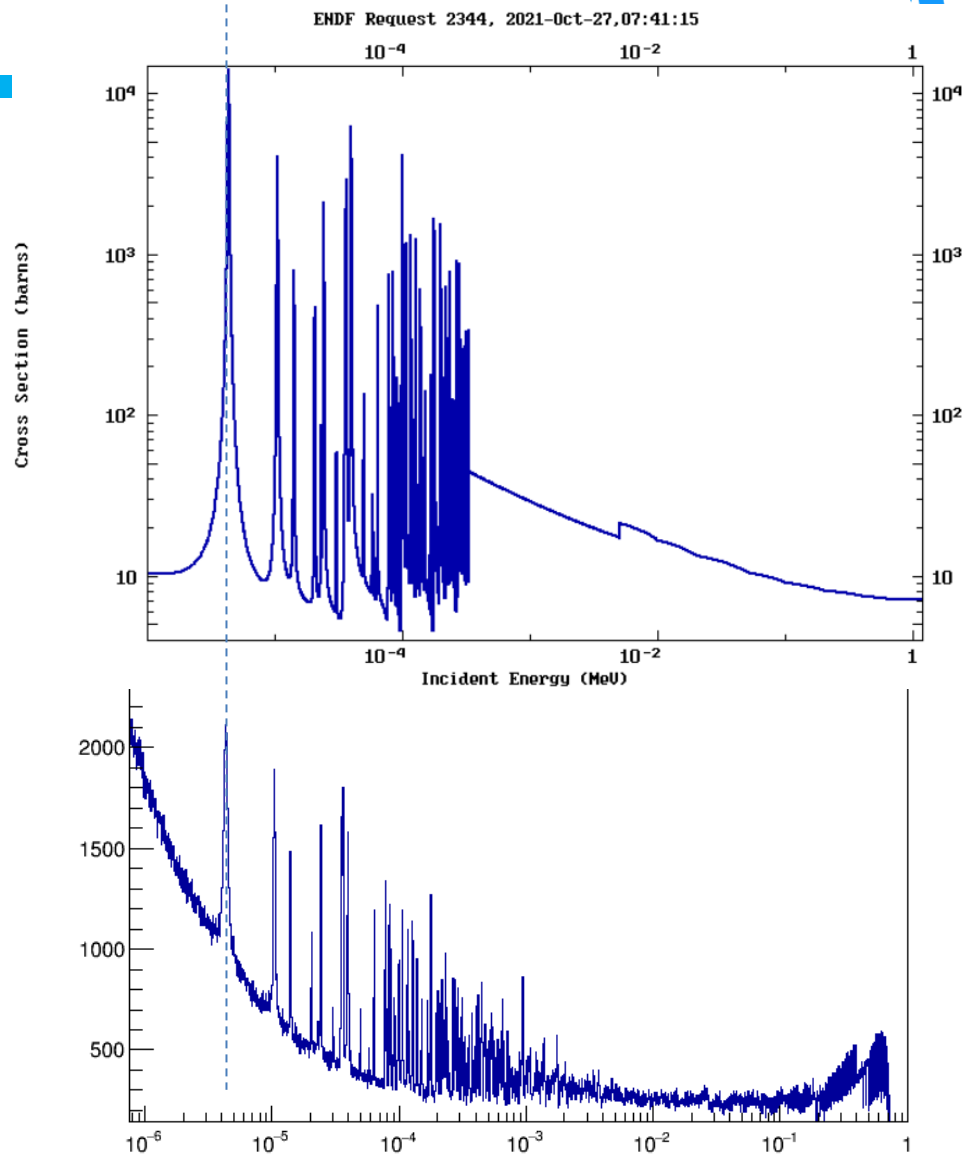
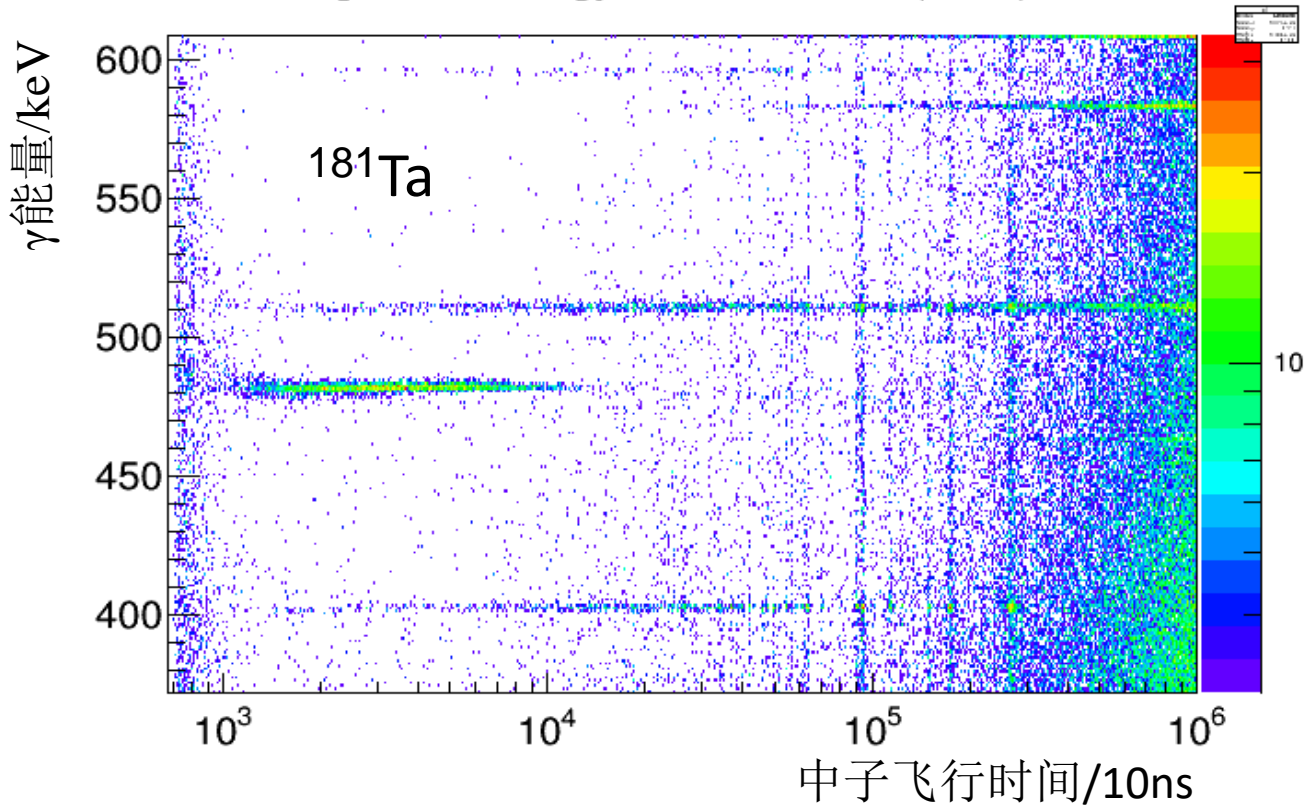
$^{181}\text{Ta}(n,p)^{181}\text{Hf}$

$^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182}\text{Ta}$

$^{181}\text{Ta}(n,\text{el})^{181}\text{Ta}$



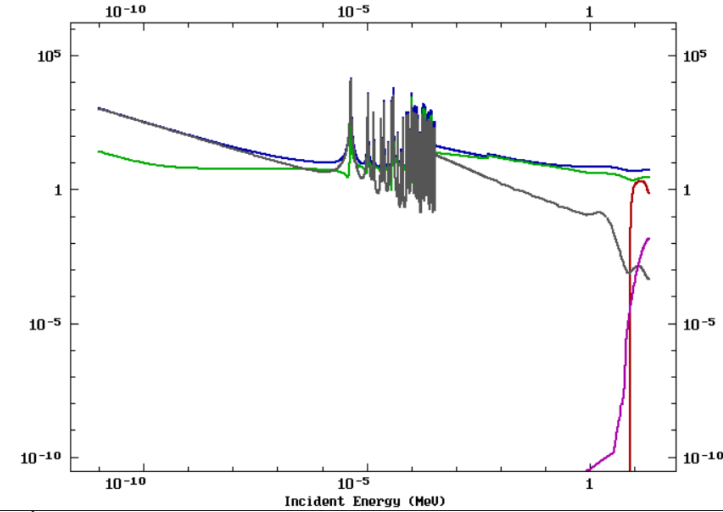
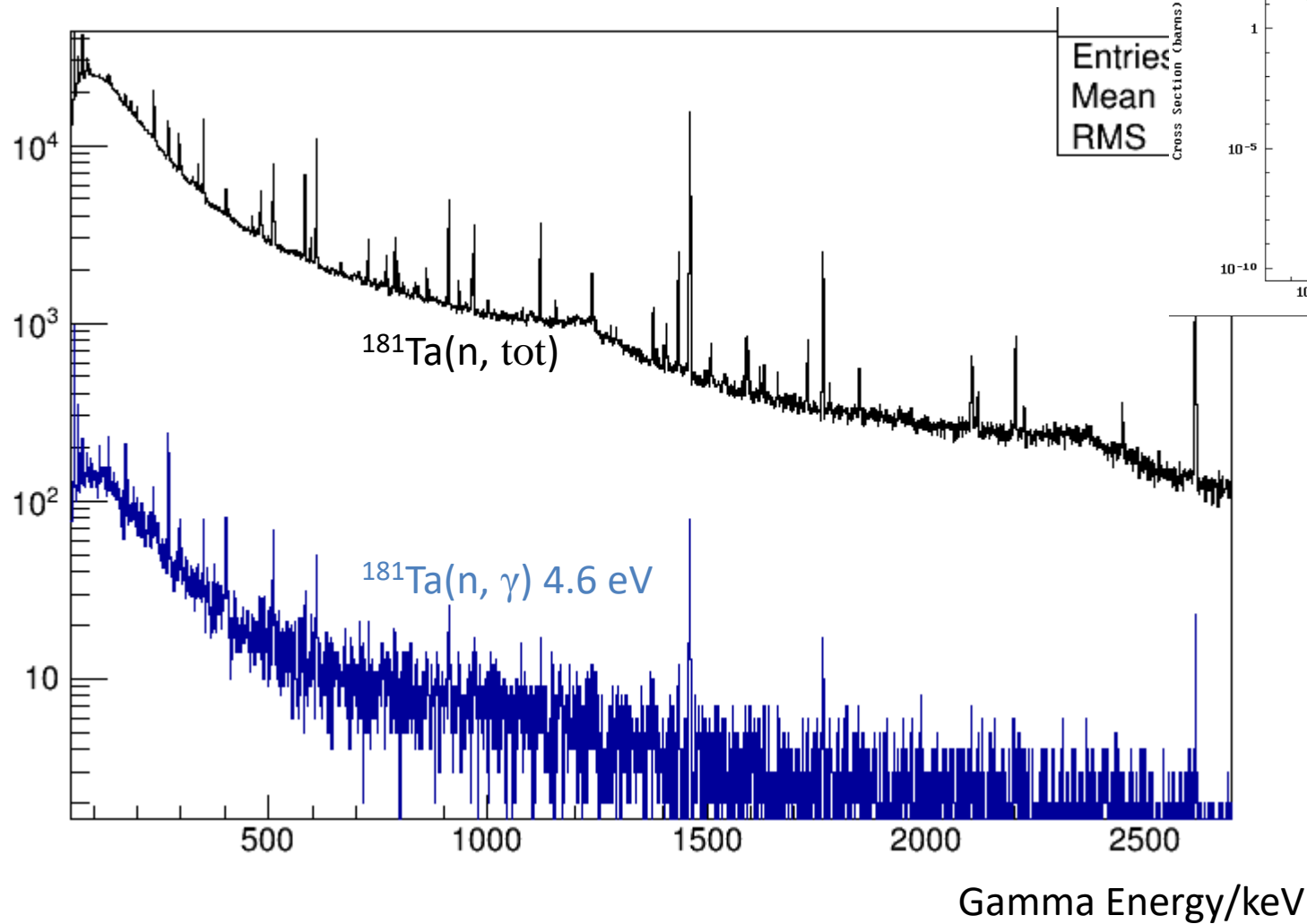
gamma energy and neutron tof(10ns)



^{181}Ta

$^{181}\text{Ta}(n,p)^{181}\text{Hf}$
 $^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182}\text{Ta}$
 $^{181}\text{Ta}(n,\text{el})^{181}\text{Ta}$

选取 $^{181}\text{Ta}(n, \text{tot})$ 反应 4.6 eV处共振峰 (认为是 $^{181}\text{Ta}(n, \gamma)$ 反应)



Select data for plotting [all] [none]

- 1) ENDF/B-VIII.0: TA-181(N,TOT)
- 2) ENDF/B-VIII.0: TA-181(N,EL)TA-181-L
- 3) ENDF/B-VIII.0: TA-181(N,2N)TA-180
- 4) ENDF/B-VIII.0: TA-181(N,G)TA-182
- 5) ENDF/B-VIII.0: TA-181(N,P)HF-181

6) Use my data [example][2]

Use my control file [init] [help]

See: [plotted data \(1006Kb\)](#) out: e6 json+p

- 结合中子飞行时间的瞬发伽马中子活化分析研究结合中子共振俘获分析和瞬发伽马中子活化分析两种无损检测方法，可以有效提高元素检测精度。
- 结合Back-n的宽能谱中子束流条件及国内外研究情况，在Back-n搭建了反康高纯锗探测器。
- 于2021年及2023年开展测试实验，看到了特征核素的特征瞬发 γ 峰，以及 (n, γ) 反应的中子能量共振峰。
- 研究工作中本底等问题，还需要进一步细致的数据分析以及屏蔽、电子学设计。