

时间分辨瞬发伽马中子活化分析的研究进展

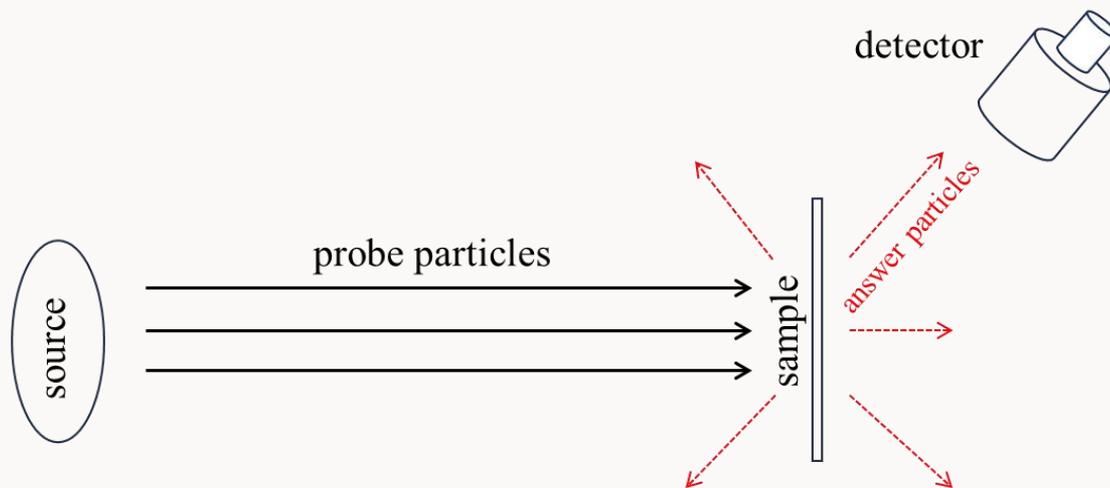
蒋伟，杨高乐，樊瑞睿，唐靖宇

2025.7.25

1. 研究背景
2. 实验开展与数据分析
3. 总结与展望

1、研究背景

- **无损分析检测技术：**是指是在不损伤被检测物体原来的物理性状和化学性质等的前提下, 获取与待测物有关的结构、性质、成分等物理化学信息。
- **无损分析检测方法的一般原理：**将研究目标暴露在外效应下, 一般是某种辐射“探针”, 然后通过测量目标所产生的响应(一般是另一种辐射), 从而获得研究目标的各种物理和化学特征。



无损分析检测方法的一般原理

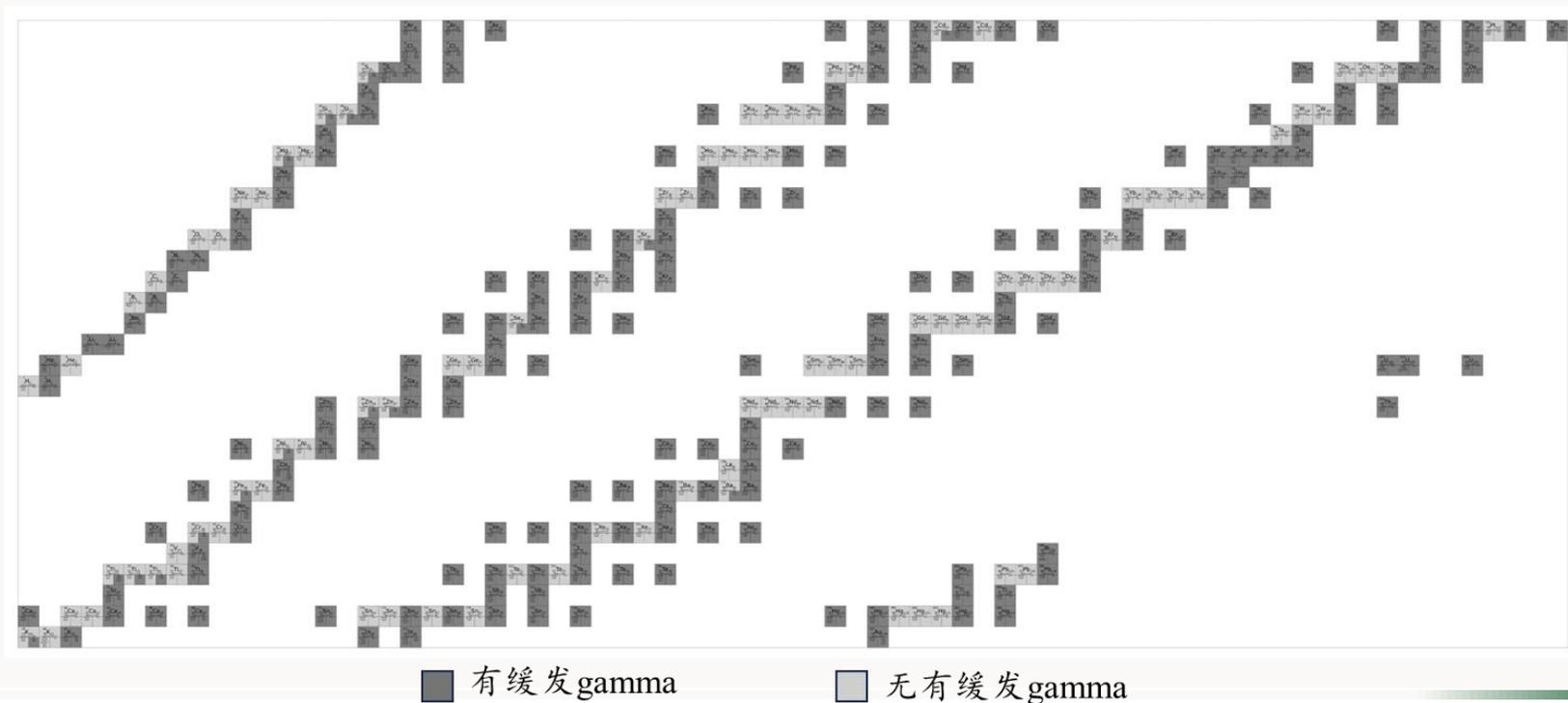
1、研究背景

常见的探针粒子及无损分析检测方法

探针粒子	穿透深度	方法名称	响应粒子	信息获取
photon	~ μm	RAMAN	photon	化学键
		XRD	X-ray	晶格结构
		XRF	X-ray 荧光	元素组成
		XAS	X-ray	化学态
neutron	~cm	TOF-ND	neutron	晶格结构
		PGAA, T-PGAA	prompt γ -ray	元素和同位素成分
		NRA(NRCA, NRTA)	prompt γ -ray, neutron	元素和同位素成分
		NAA	decay γ -ray	元素和同位素成分
		NI	neutron	元素和同位素成分 几何结构
muon	~cm	muon-fluorescence	X-ray 荧光	元素和同位素成分
electron	~ μm	EMPA	X-ray 荧光	元素组成
Ion	~ μm	RBS	Ion	元素组成和晶格结构

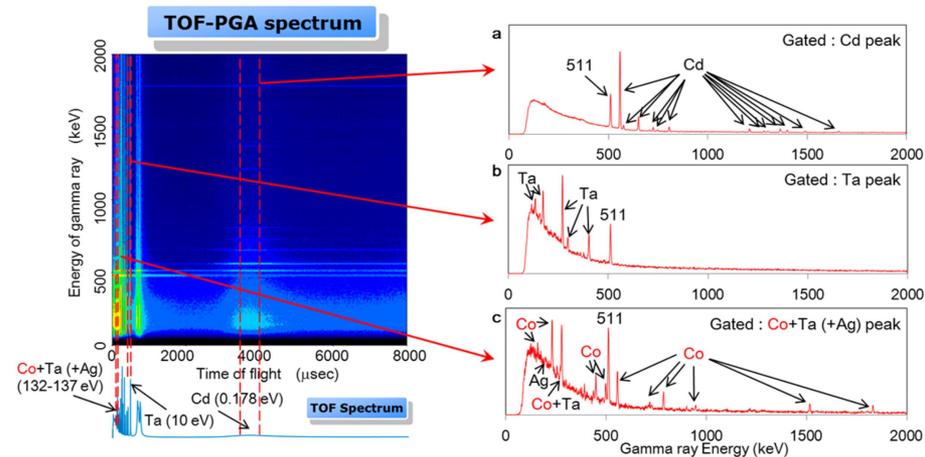
1、研究背景

- 目前比较成熟且广泛使用的中子核分析方法：中子活化分析(NAA)，瞬发伽马中子活化分析(PGAA)；
- 中子活化伽马：287种稳定或长寿命的同位素，有缓发伽马的同位素195个；
- 无损分析方法的同位素分析能力不足，在同位素考古、地外样品研究等领域目前主要使用质谱仪等有损分析方法；

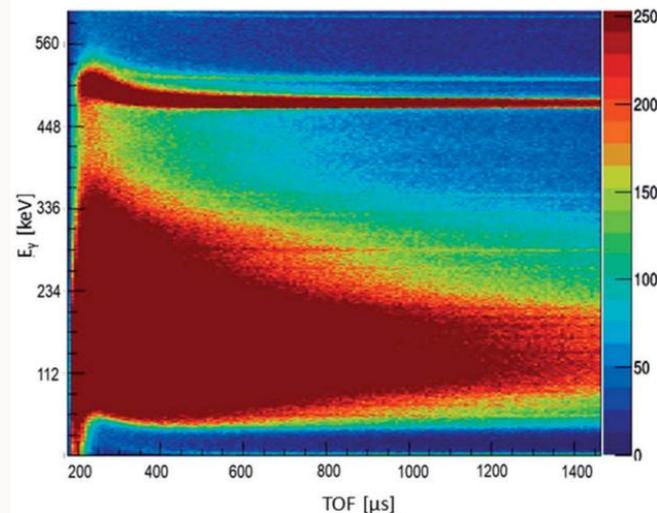


1、研究背景

- 2014年，Yosuke Toh等人首先提出了结合飞行时间的瞬发伽马中子活化分析方法(T-PGAA)[1]；
- J-PARC(日本)和ISIS(英国)中子源都发表过T-PGAA方法验证性的研究工作，都肯定了T-PGAA方法的灵敏度和发展潜力；



(J-PARC)通过飞行时间筛选，以获得更干净的瞬发gamma谱



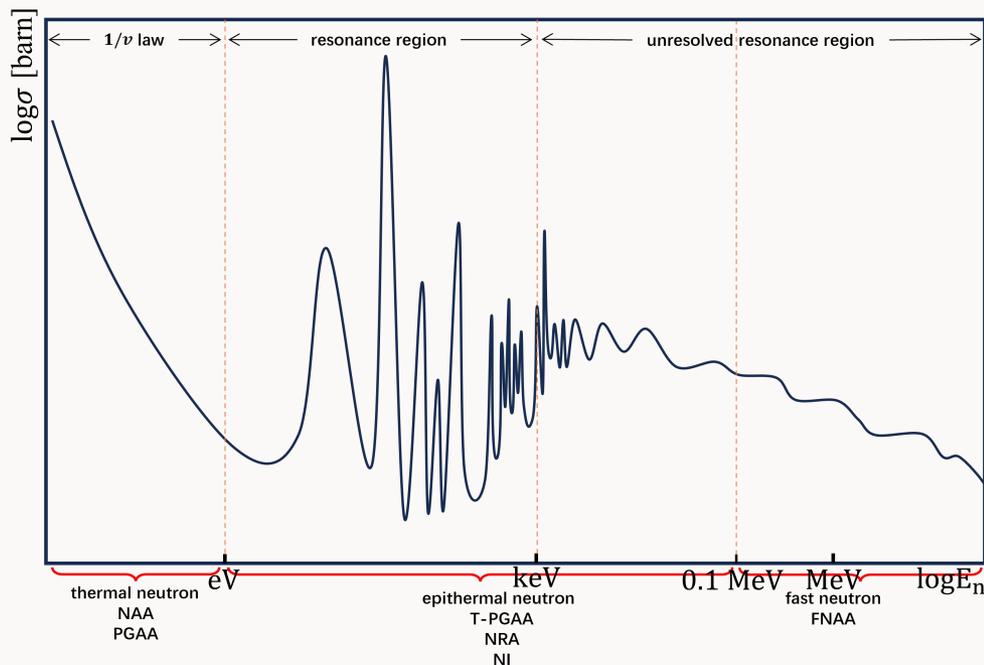
在ISIS束线对黄铜的测量结果

中子能量仅到eV能区

[1] Yosuke Toh, Mitsuru Ebihara, *et al.* Anal. Chem. 86, 24, 12030–12036 (2014).

1、研究背景

- T-PGAA结合飞行时间方法(tof)给出中子能量，需要宽能谱的脉冲中子源；
- Back-n的宽能谱、高流强、较好能量分辨率的中子束流非常适合开展T-PGAA研究。



各种中子核分析方法所使用的中子能区

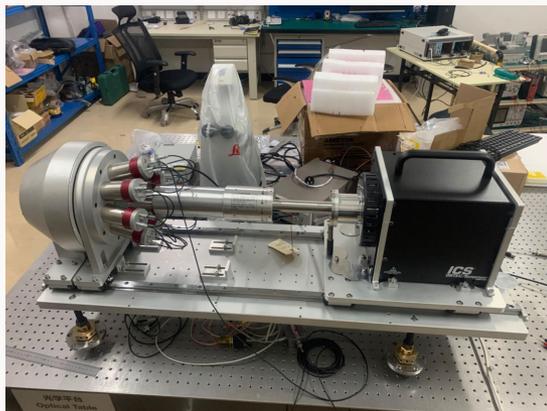
目录

1. 研究背景
2. 实验开展与数据分析
3. 总结与展望

2、Lu靶实验与数据分析

T-PGAA系统:

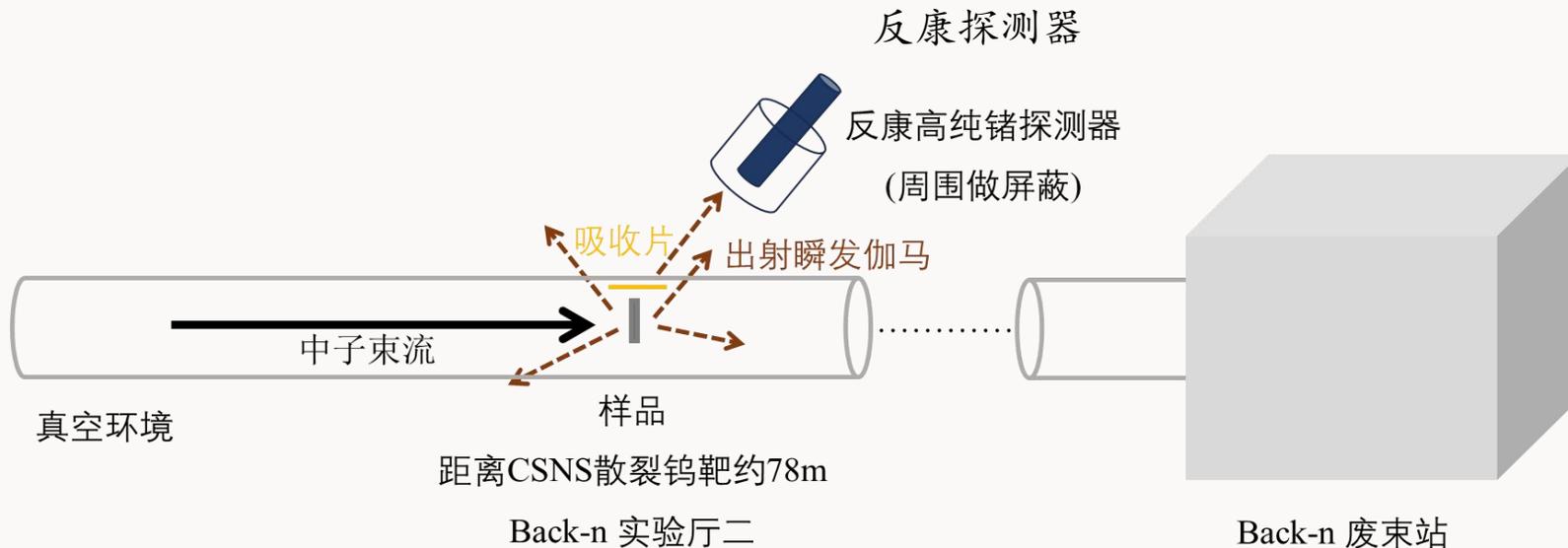
- ✓ 探测器系统;
- ✓ 数据获取系统;
- 辐射屏蔽系统;
- 真空管道与样品支架;



高纯锗探测器与BGO



14bit数据采集卡

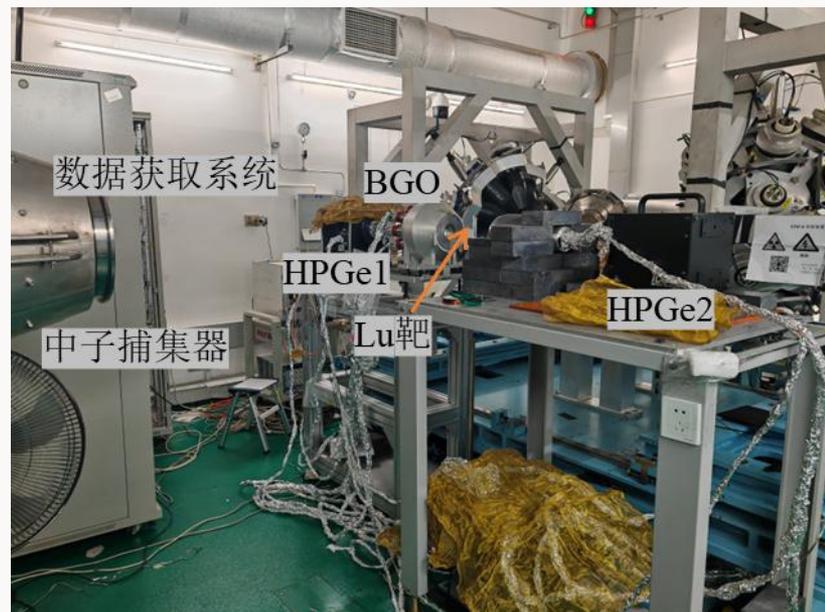


Back-n T-PGAA装置示意图

2、Lu靶实验与数据分析

基于2023年12月的Lu靶实验，我们开展了T-PGAA方法的验证性研究：

- ❑ 探测器系统与数据获取系统；
- ❑ 探究Back-n的实验条件是否适合开展T-PGAA研究；

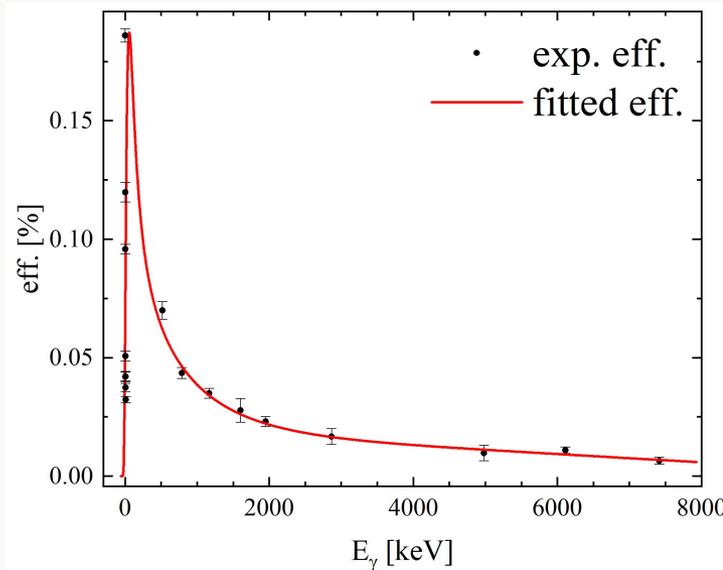
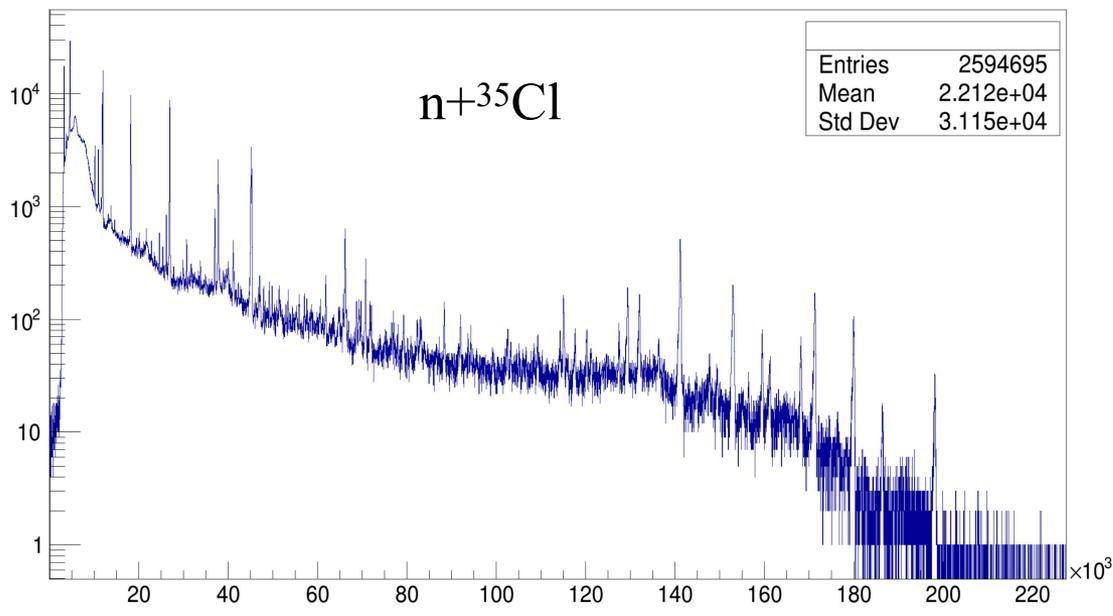
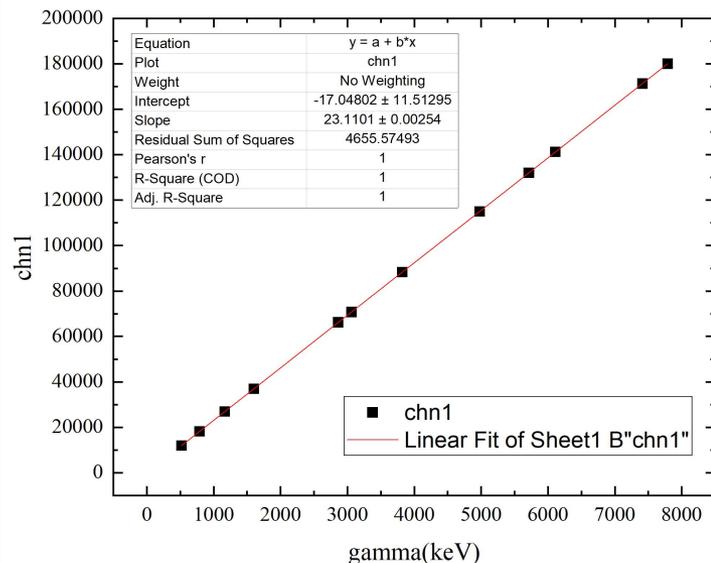


目标靶	尺寸(mm)	功率(kW)	束斑(mm)	测量时长(h)
natLu	Φ40 × 1	160	φ50-50-58	~168
NaCl	~50g			~8
空靶	--			~9

2、Lu靶实验与数据分析

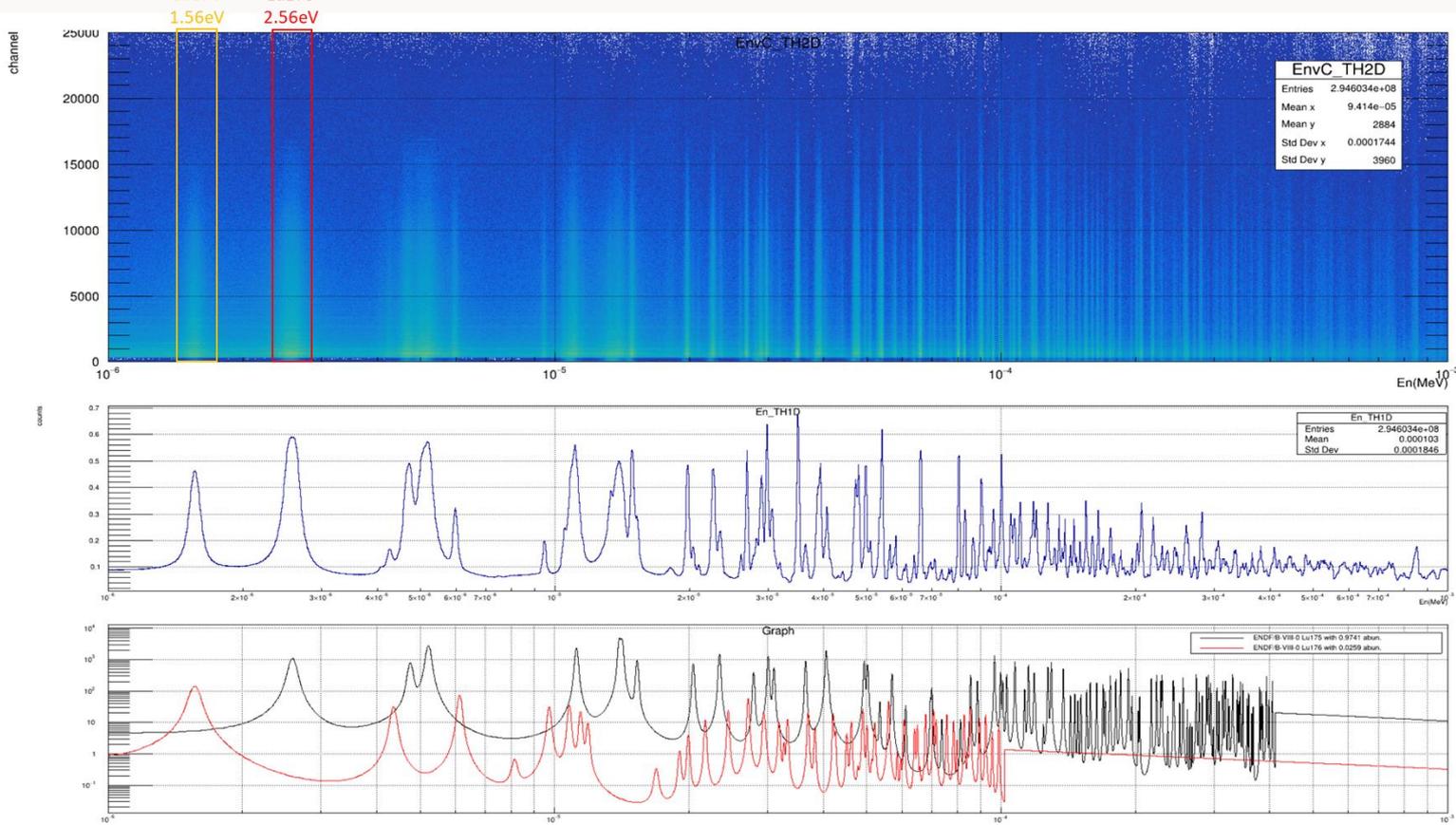
探测器刻度:

- 放射源 ^{60}Co 、 ^{152}Eu , 低能区伽马能量、绝对效率刻度;
- ^{35}Cl 的中子俘获反应, 中高能区的能量、相对效率刻度;



2、Lu靶实验与数据分析

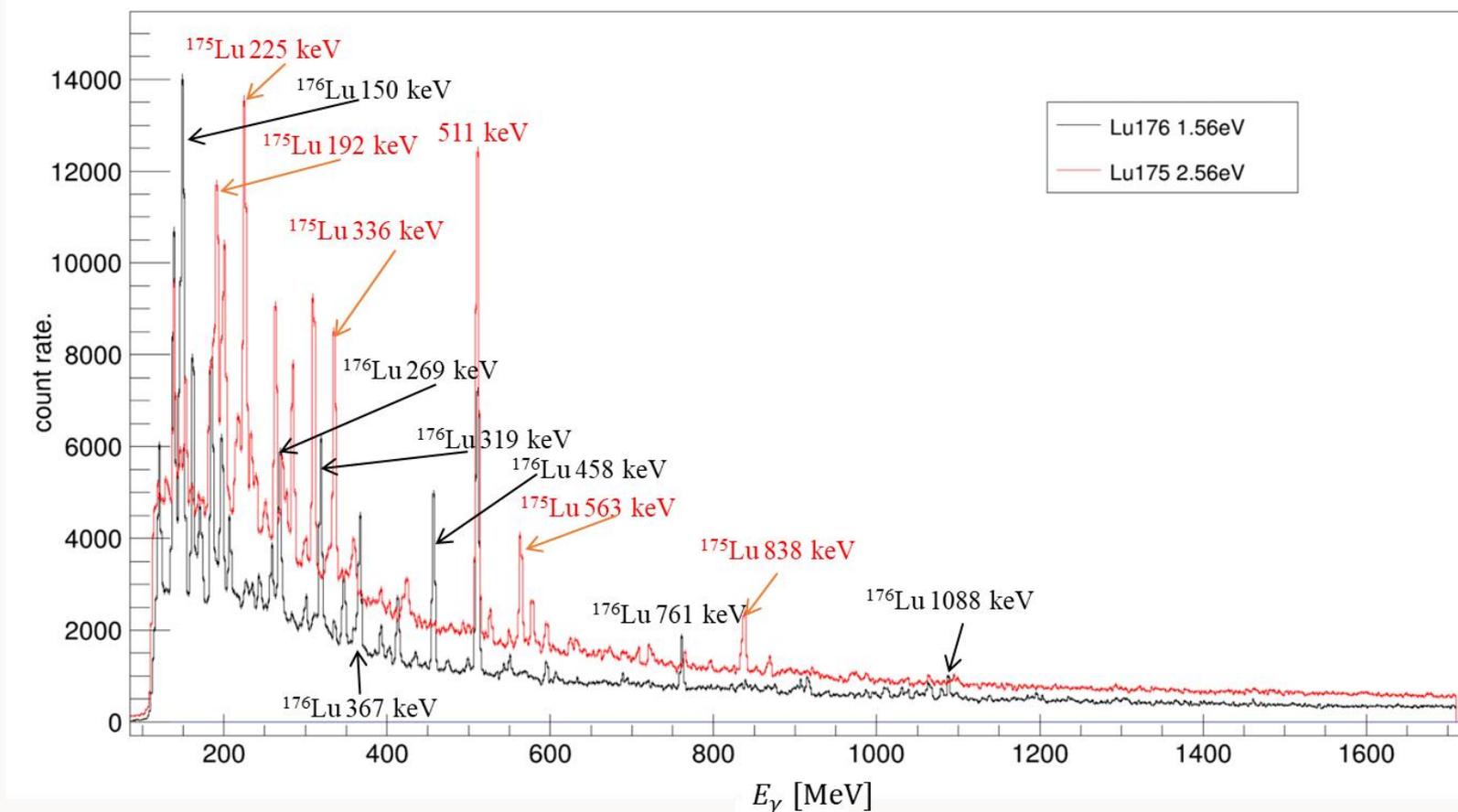
- Lu靶实验结果: $^{175}\text{Lu}:97.41\%$ $^{176}\text{Lu}:2.59\%$
 - ^{175}Lu 2.56 eV: $3.33 \times 10^6 \text{ ns} \leq \text{tof} \leq 3.65 \times 10^6 \text{ ns}$
 - ^{176}Lu 1.56 eV: $4.32 \times 10^6 \text{ ns} \leq \text{tof} \leq 4.62 \times 10^6 \text{ ns}$



2、Lu靶实验与数据分析

^{175}Lu 与 ^{176}Lu 通过飞行时间筛选，选择对应共振峰后的伽马谱

- 通过飞行时间的筛选，即便没有辐射屏蔽系统，且两种核素的含量相差两个量级，在各自的共振峰处也获得了干净瞬发伽马谱；



2、Lu靶实验与数据分析

定量分析：测量得到的特征伽马全能峰净计数 $N_{x,\mu,k}$ 存在如下关系：

$$N_{x,\mu,k} = n_x F(E_\mu) \sigma_x(E_\mu) \Omega \Phi(E_\mu) \varepsilon(E_k) f_{x,\mu,k} t,$$

中子俘获产额

$$F(E_\mu) = \frac{1 - e^{-\sum_j n_j \sigma_{j,\text{tot}}(E_\mu)}}{\sum_j n_j \sigma_{j,\text{tot}}(E_\mu)}$$

$F(E_\mu)$: 中子自屏蔽因子

$\Phi(E_\mu)$: 中子通量

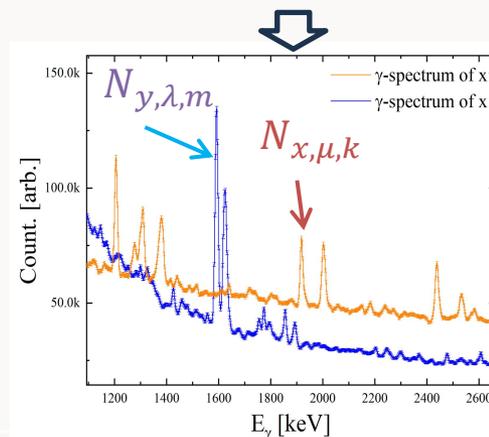
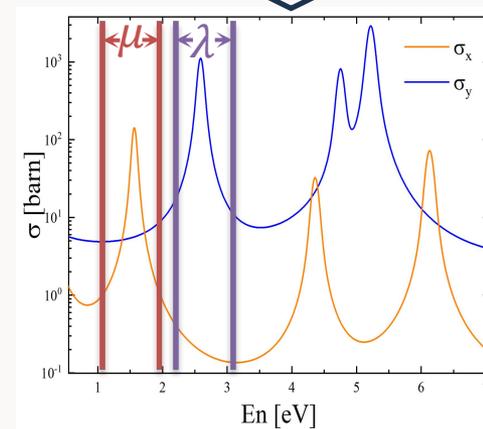
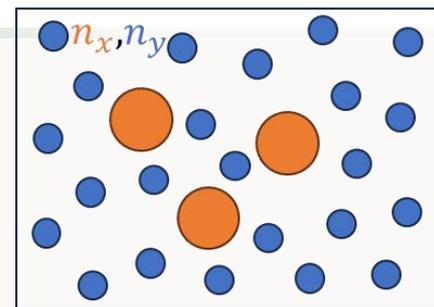
Ω : 中子束流与靶的重叠面积

$\varepsilon(E_k)$: 探测效率

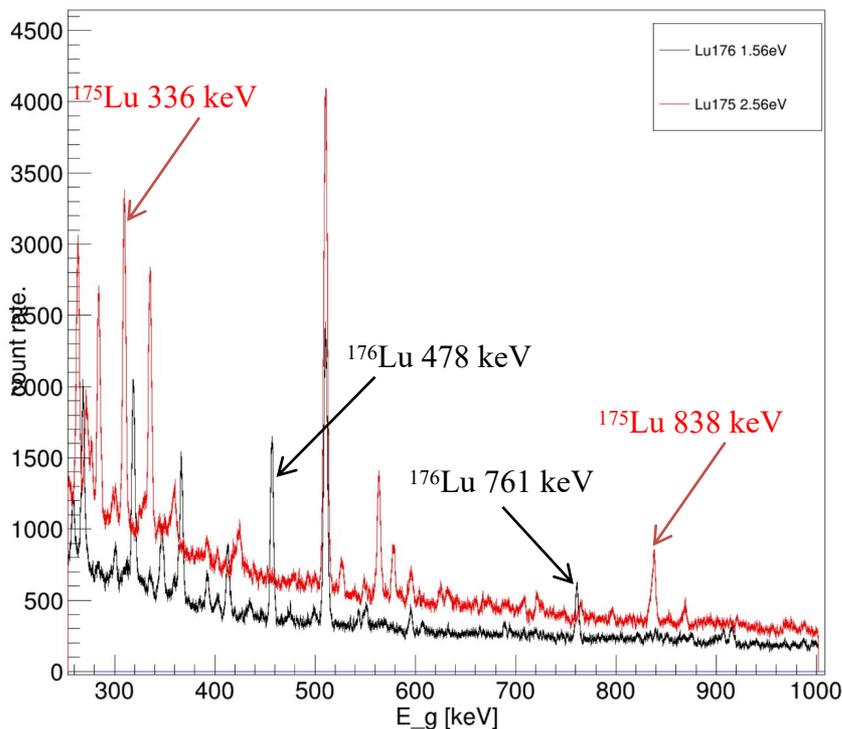
$f_{x,\mu,k}$: 核素(x)在共振峰(μ)处特征伽马(k)的分支比

由测量得到的特征伽马全能峰净计数就可以得到靶中两种同位素的相对含量：

$$\frac{n_x}{n_y} = \frac{N_{x,\mu,k} F(E_\lambda) \sigma_y(E_\lambda) \Phi(E_\lambda) \varepsilon(E_m) f_{y,\lambda,m}}{N_{y,\lambda,m} F(E_\mu) \sigma_x(E_\mu) \Phi(E_\mu) \varepsilon(E_k) f_{x,\mu,k}} \quad (1)$$



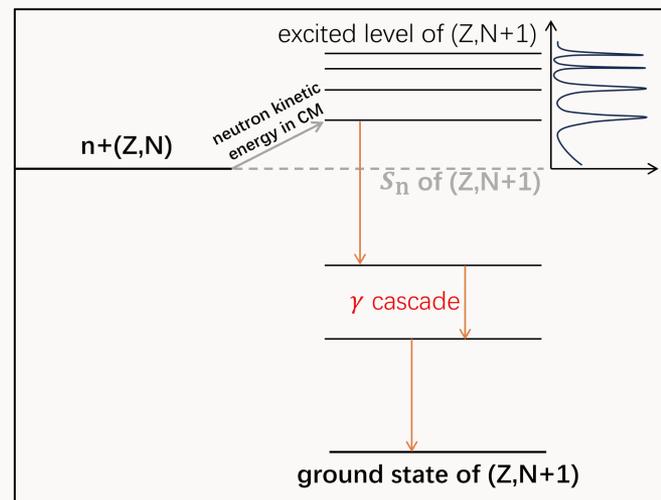
2、Lu靶实验与数据分析



$^{175}\text{Lu}/^{176}\text{Lu}$ 的相对含量:

- 选择较强且相对独立的特征伽马峰;
- 选择不同的伽马峰得到的相对含量差异较大, 大于统计误差;

目前缺乏共振能区的特征伽马的能量和分支比数据库, 需要结合标定法实现定量分析。



中子的共振吸收

^{175}Lu 共振	^{175}Lu 伽马	^{176}Lu 共振	^{176}Lu 伽马	$^{175}\text{Lu}/^{176}\text{Lu}$
2.56 eV	838 keV	1.56 eV	761 keV	0.0245
			458 keV	0.0180
	335 keV		761 keV	0.0265
			458 keV	0.0195

Lu靶实验的得到的靶内 $^{175}\text{Lu}/^{176}\text{Lu}$ 比值, 理论值: $2.5\%/97.5\%=0.0256$

注: 所使用的伽马能量和分支比数据来自于IAEA的PGAA数据库

标定法

对于需要精确测量或某些关键参数的待测元素(核素), 通常使用**标定法**(标样法)进行测量, 这种方法在扫描电子探针(EPMA)等分析方法的精确定量分析中被广泛应用, 其基本思想是: 对与待测样品含有相同成分并且含量精确已知的样品进行测量, 再在相同条件下对待测样品进行测量, 以抵消待测元素(核素)的某些未知量和系统误差, 以获得更精确的结果。

上式(1)移项可得

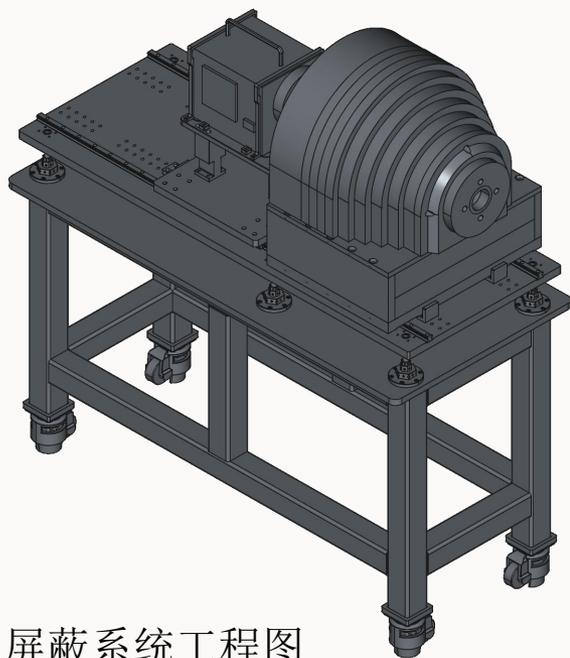
$$\frac{n_x N_{y,\lambda,m} F(E_\mu) \sigma_x(E_\mu) f_{x,\mu,k}}{n_y N_{x,\mu,k} F(E_\lambda) \sigma_y(E_\lambda) f_{y,\lambda,m}} = \frac{[\varepsilon(E_m)\Phi(E_\lambda)]}{[\varepsilon(E_k)\Phi(E_\mu)]} \begin{matrix} \text{仅与实验} \\ \text{条件相关} \end{matrix}$$

通过测量一个已知成分的样品就可以确定等式的右边, 此时对于一个含有相同元素但含量位置的样品, 这两个核素的面密度比值为: $\frac{n_x'}{n_y'} = \frac{N_\mu' F_\lambda(n_{y'}) \sigma_x(E_\mu) f_{x,\mu,k} [\varepsilon(E_m)\Phi(E_\lambda)]}{N_\lambda' F_\mu(n_{x'}) \sigma_y(E_\lambda) f_{y,\lambda,m} [\varepsilon(E_k)\Phi(E_\mu)]} = \frac{N_\mu' F_\lambda(n_{y'})}{N_\lambda' F_\mu(n_{x'})} \frac{n_x N_\mu F_\mu(n_x)}{n_y N_\lambda F_\lambda(n_y)}$

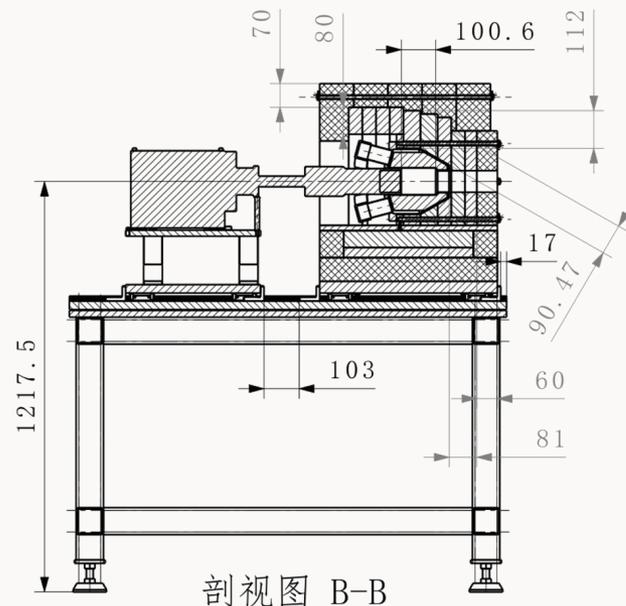
令 $K_{\mu,\lambda} = \frac{n_x N_\mu F_\mu(n_x)}{n_y N_\lambda F_\lambda(n_y)}$, 则有: $\frac{n_x'}{n_y'} = \underbrace{K_{\mu,\lambda}}_{\text{标定}} \underbrace{\frac{N_\mu' F_\lambda(n_{y'})}{N_\lambda' F_\mu(n_{x'})}}_{\text{实验测量}} \text{变分法}$

通过测量标样即可标定 $K_{\mu,\lambda}$ 值, 其中待测靶的 $\frac{F_\lambda(n_{y'})}{F_\mu(n_{x'})}$ 可由变分法确定, 从而确定 $\frac{n_x'}{n_y'}$ 值。

- 伽马射线通过光电效应、康普顿散射、电子对效应与物质相互作用，反应截面随原子序数 Z 增大而增加，所以通常选择高 Z 材料做被动屏蔽，还可通过BGO主动屏蔽，伽马射线与物质相互作用会产生大量次级粒子，使得屏蔽能力随材料厚度的变化更复杂，屏蔽的设计一般需要通过模拟完成；
- 理想的中子屏蔽材料应该满足在短距离内吸收所有能量的中子(高吸收截面)，通常在中子屏蔽材料中通常掺入B和Li吸收中子；Back-n覆盖 $0.3\text{eV}\sim 300\text{MeV}$ 能区的中子，单独的B和Li对超热中子和快中子的吸收截面都比较小，需要加入入中子慢化材料(比如聚乙烯材料)以屏蔽较高能量的中子；



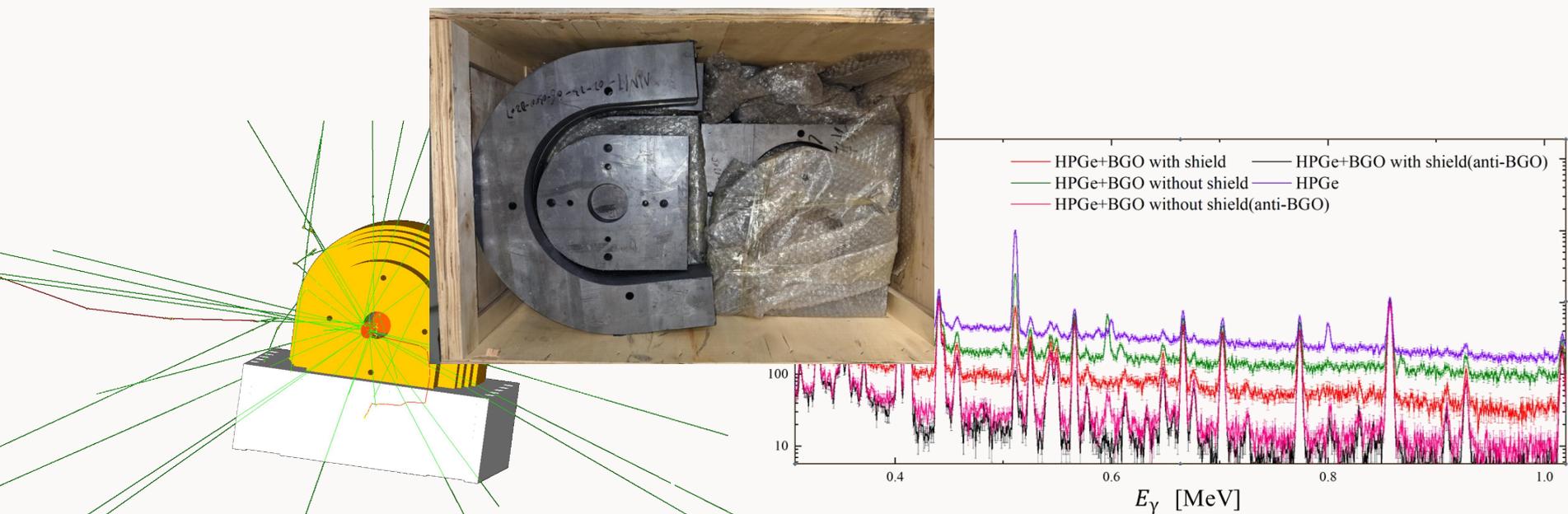
T-PGAA屏蔽系统工程图



T-PGAA屏蔽系统结构图

屏蔽系统模拟

- 为了验证的屏蔽系统的设计，我们在geant4中构建了完整的屏蔽系统和探测器结构，此外还在模拟中考虑了：
 1. gamma 本底：1~15MeV的均匀随机本底；0.2、0.4、0.6、0.8、2、3、5、7、10、13MeV gamma 本底；
 2. 中子本底：入射中子能量 $\pm 10\%$ ；
 3. 为了模拟BGO探测器的反康效果，模拟中考虑了时间结构，本底粒子在20us内随机发射；
- 模拟结果显示：
 1. HPGe+BGO(无反康)的本底高于只使用HPGe的情况，与实验中观察到的现象一致；
 2. 屏蔽系统可以很好的抑制加入的本底gamma，本底gamma全能峰计数至少下降1个量级，即便是穿透性最强的 2~5 MeV gamma；



Geant4构建的屏蔽系统模型

Geant4模拟结果对比

3、总结与展望

- 通过Lu靶实验的数据分析验证了Back-n具备良好的开展T-PGAA研究的束流条件；
- T-PGAA具备高精度定量分析的潜力，目前已经开展了模拟工作，结合模拟设计了屏蔽系统，计划2025年下半年开展新的实验；
- 目前T-PGAA方法定量分析仍存在需要解决的技术难题，与缺乏共振能区的特征伽马的能量、分支比数据库有关，需要结合标定法等方法来得到定量分析结果；



请各位专家批评指正！

- Sr同位素考古技术在示踪古人类、动物迁移等研究领域发挥了重要的作用，原因是Sr、Pb等元素的同位素在自然界中分馏效应不明显，可以用于示踪研究。 ^{87}Sr 及 ^{86}Sr 两种同位素的比值是锶同位素考古中测量的关键，现在通常使用热电离耦合质谱仪来开展 ^{87}Sr 及 ^{86}Sr 两种同位素的比值测量。这种分析方法需要破坏样品，是有损的，这种 ^{87}Sr 及 ^{86}Sr 分析方法在珍贵文物等场景下具有局限性。
- ^{87}Sr 在3.5 eV处有共振峰，590 eV处 ^{86}Sr 有较大共振峰，意味着该中子能区可以开展PGAA及T-PGAA研究工作。

