

文章编号: 1007-4627(2005)01-0103-03

瞬发 γ 中子活化分析系统的建立*

张兰芝, 倪邦发*, 田伟之, 王平生, 黄东辉, 刘存兄, 张贵英, 刘立坤

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要: 瞬发 γ 中子活化分析是重要的核分析方法之一, 是 H 和 B 等轻元素的重要分析手段, 近年来应用范围不断增加. 概要介绍了瞬发 γ 中子活化分析的基本原理, 重点介绍了中国原子能科学研究院重水研究堆热中子束瞬发 γ 中子活化分析实验装置以及 50 keV—11 MeV 的宽能区 γ 效率刻度方法. 还应用瞬发 γ 中子活化分析方法分析了海底锰结核标准物质 GSPN-3 中 11 种元素, 结果与标准值基本一致.

关键词: 瞬发 γ 中子活化分析; γ 射线效率刻度; 瞬发 γ 中子活化分析设施

中图分类号: TL99 **文献标识码:** A

1 前言

瞬发 γ 中子活化分析 (PGNAA) 是一种重要的核分析方法, 其基本原理是通过测量样品中各种元素的原子核俘获中子、瞬时 ($< 10^{-14}$ s) 发射特征 γ 射线, 根据射线的能量和强度, 对相应元素进行定性和定量分析. 用该方法理论上可以分析任何元素, 但在实际应用中只对轻元素和中子吸收截面大的元素才具有显著的分析优势. 它可以作为传统中子活化分析技术的重要补充.

2 PGNAA 技术的发展历史及现状

自 20 世纪 60 年代以来, 随着高纯锗探测器制造技术、快电子学、中子束流装置以及相应软件的迅速发展, PGNAA 也得到快速的发展. 迄今为止, 全世界至少在 30 座反应堆上建立了 PGNAA 设备^[1], 这些反应堆的中子注量率在 10^6 — 10^{11} neutrons/cm²/s 范围. 目前 PGNAA 的发展主要集中在以下两个方面.

方法学方面: 目前主要集中在 PGNAA K_0 法研究^[2]及数据库的建立、宽能区 γ 射线效率的准确刻度方法研究^[3]和高能 γ 谱全能峰面积计算软件

开发, 从而提高了元素分析的准确度和分析效率.

设备方面: 目前主要是发展高注量的冷中子束装置, 如美国 NIST、匈牙利 IKI、日本 JAERI 和韩国的 HANARO 堆等均建立了永久性用于 PGNAA 的冷中子束流装置. 美国的 NIST 还建立了聚焦冷中子束流分析系统^[4], 其聚焦束流斑小于 $\phi 1$ mm, 大大提高了分析灵敏度.

在应用方面: PGNAA 应用很广, 广泛用于工业生产过程的控制、违禁物品成分的探测, 活体成分的在线测定、高科技材料 H 和 B 等轻元素测量、标准参考物质定值等非破坏多元素分析.

3 本实验室的 PGNAA 设施建设

由于 PGNAA 对于一些特定元素和特殊领域的应用十分重要, 本实验室正在开展一些 PGNAA 的探索性研究. 在即将建立起来的中国先进研究堆 (CARR) 上设计了用于 PGNAA 的热中子和冷中子孔道, 以便将来深入开展 PGNAA 研究. 目前我们在 101 重水研究堆水平孔道上建立了简单的热中子束 PGNAA 实验设施, 装置结构示意图如图 1 所示. 主要包括锗 γ 谱仪测量系统、样品盒及其支

收稿日期: 2004-08-31

* 基金项目: 国家自然科学基金资助

作者简介: 张兰芝 (1976-), 女 (汉族), 山东人, 学生, 从事中子活化分析的研究.

联系人: 倪邦发, E-mail: bfnl@iris.ciae.ac.cn

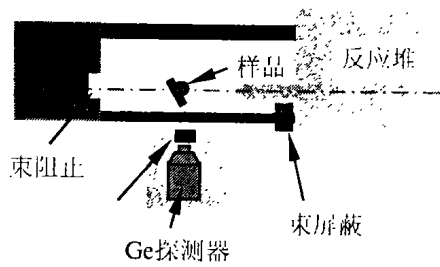


图 1 中国原子能科学研究院 PGNAA 装置系统结构示意图

持架、屏蔽系统和高纯热中子束等组成。图 2 展示了高纯热中子束装置^[5]的内部结构，它包括 50 mm 厚的石墨层、2 m 长的内准直器、电动控制门、堆外 50 cm 的单晶硅、低温装置和外准直器。准直器总长 3 m，中子捕集器及探测器屏蔽室。

测量结果表明，在液氮温度下，准直器出口的中子注量率为 1.3×10^7 neutrons/cm² · s，辐比为 30 000，束中 γ 剂量为 0.75 μ R/s。

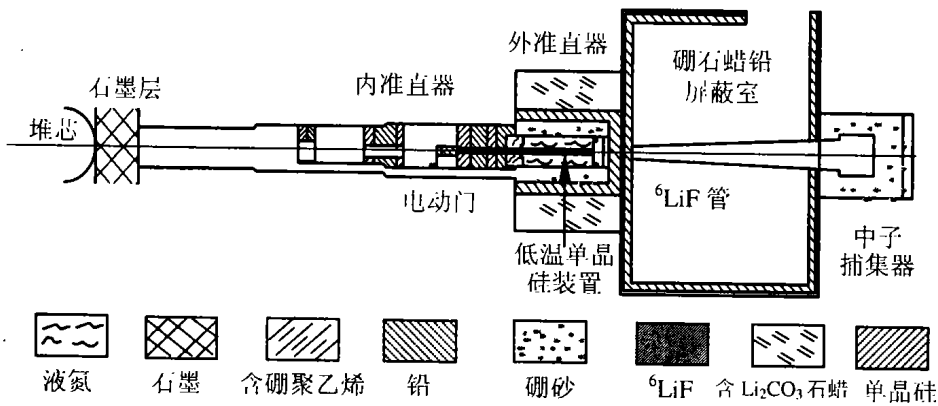


图 2 中国原子能科学研究院 101 堆 PGNAA 装置系统结构示意图

4 γ 射线宽能区的效率刻度

效率的准确刻度对于 K_0 分析法是十分重要的。PGNAA 的 γ 射线不仅数量多（几万条），而且能量高达 11 MeV，因而探测效率的准确刻度相对困难，主要是在高能区没有刻度标准源。目前，标准源的衰变 γ 射线能量覆盖范围小于 4.5 MeV。本工作对 PGNAA 宽能区的效率刻度同时采用了标准源、多能 γ 源和瞬发 γ 源进行相对效率刻度，再用标准源归一成绝对效率。在低能部分主要使用了 ¹⁵²Eu, ¹⁸²Ta, ¹⁶⁹Yb, ¹³⁷Cs 和 ⁶⁰Co 等，⁶⁶Ga 亦是一个很好的中能过渡源，在高能部分采用 ³⁵Cl(n, γ) ³⁶Cl 的瞬发 γ 射线，³⁶Cl 的瞬发 γ 能量在 500—8 500 keV。本工作共计算了 41 个全能峰的效率。在全能区根据效率曲线的特点分为 4 个区段进行了拟合。在低能区选用了 2 次拟合多项式，高能区选用了 3 次拟合多项式。把各段得到的拟合曲线整体归一，得到宽能区绝对效率曲线，如图 3 所示。拟合分析得出，不确定度在低能段一般小于 2%，高能段在 3% 左右。同时本工作还用 5 次多项式进行了拟合，但拟合效果不如分段拟合好。以后我们还将改变实验条件，降低环境本底，希望能将整体效率刻度的不确定度控制在 2% 左右。

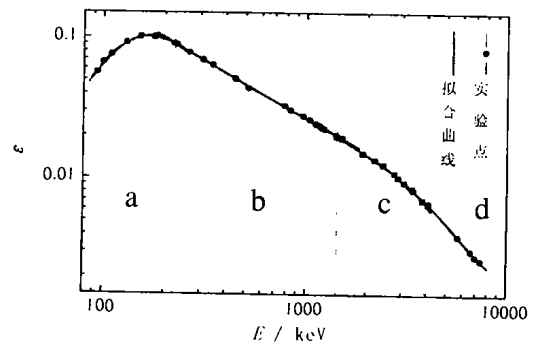


图 3 分区段绝对效率拟合曲线示意图

5 PGNAA 样品分析

根据 PGNAA K_0 法的特点是，在样品中如果已知一个元素的含量，就可以用它作为比较器元素，根据 K_0 值、探测效率、比较器与其它元素特征 γ 射线计数率之比，就可以对其他所探测到的元素进行定量。本工作利用这一原理测量了大洋多金属结核标准物质 GSPN-3 中元素的含量，以 Mn 为比较器元素，对 H, B, Ba, Cu 和 Cl 等 11 种元素进行了定量，结果列于表 1。

由于文献[6]中锰结核标准给出的 B 含量为参考值。而对于 PGNAA 来说，对 B 元素含量的分析

具有很高的分析灵敏度和准确度. 因此文献给出的 B 的含量参考值需要修正. 从表 1 还可以看出, 分析结果与标准值相比还存在较大的不确定度, 其主

要原因是该系统的环境本底很高, 统计误差也较大, 同时文献中也没有给出标准值的不确定度, 相信本分析结果的大部分元素应该在误差范围之内.

表 1 锰结核样品分析结果

元素	B	Ba	Cu	Ni	Co	Mn	Cl	Al	K	H	Ca
能量/keV	477	818	830	3 685	1 515	7 242	1 164	1 779	2 073	2 223	1 942
计数率比	8.01×10^1	1.93×10^1	4.01×10^2	1.06×10^1	8.67×10^1	1.00	8.53×10^1	6.21×10^1	1.81×10^1	2.23×10^1	1.50×10^1
参考值 ^[6]	1.02×10^{-4}	2.40×10^{-3}	1.36×10^{-2}	1.55×10^{-2}	1.70×10^{-3}	3.22×10^{-1}	8.00×10^{-3}	4.70×10^{-2}	1.14×10^{-2}	8.10×10^{-2}	2.25×10^{-2}
计算值	1.67×10^{-4}	2.04×10^{-3}	1.10×10^{-2}	1.30×10^{-2}	1.66×10^{-3}	3.22×10^{-1}	8.00×10^{-3}	5.22×10^{-2}	1.11×10^{-2}	8.21×10^{-2}	2.74×10^{-2}
误差 100%	-64.0	14.9	18.9	16.2	2.1	0.0	0.2	-11.1	2.9	-1.4	-21.7

6 结束语

PGNAA 在轻元素的定性定量分析方面具有独到之处, 尤其是影响材料性能的 H 和 B 等轻元素分析. 这也是目前 PGNAA 活跃的一个重要原因.

但是, PGNAA 也受到一些局限, 比如对大多数元素的灵敏度不高(相对于 NAA), 每次只能分析一个样品, 而且分析周期长. 另外, 本 PGNAA 系统 γ 本底较高, 需要精心设计中子和 γ 屏蔽系统, 这些都将在新建的 CARR 堆上得到改进.

参 考 文 献:

- [1] Paul R L, Lindstrom R M. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2000, **243**: 181.
- [2] Molnar G L, *et al.* *J Radioanal Chem*, 1998, **234**: 21.
- [3] Molnar G L, *et al.* *Nuclear Instruments and Methods in Physics A*, 2002, **489**: 140.
- [4] Heather H, Chen-Mayer, George P, *et al.* *Analytical Sciences*, 2001, **17**(Supplement): i629.
- [5] 石宗仁等. *核技术*, 1989, **112**(3): 143.
- [6] 王毅民等. *岩矿测试*, 1997, **116**(3): 183.

System of Prompt γ -ray Neutron Activation Analysis*

ZHANG Lan-zhi, NI Bang-fa, TIAN Wei-zhi, WANG Ping-sheng, HUANG Dong-hui,
LIU Cun-xiong, ZHANG Gui-ying, LIU Li-kun
(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: Neutron-induced prompt- γ activation analysis (PGNAA) is one of the nuclear analytical methods, which is a powerful tool for quantitative determination of H, B, etc. The applications of PGNAA are increased in recent years. In this paper, the basic principle of PGNAA was introduced briefly. The facilities of PGNAA in HWRR of China Institute of Atomic Energy as well as the efficiency calibration for a wide range gamma from 50 keV to 10 MeV were emphasized. A deep sea polymetallic nodule CRM, GSPN-3 was analyzed by using PGNAA, and the results are in agreement with the certified values.

Key word: prompt gamma activation analysis; efficiency calibration; facility of neutron-induced prompt- γ activation analysis

* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China