



80.5 MeV/u碳离子诱发铜靶的放射性剩余产物测量

周斌 于全芝 张宏斌 张雪荧 鞠永芹 陈亮 阮锡超

Measurement of radioactive residual nuclides induced in Cu target by 80.5MeV/u carbon ions

Zhou Bin Yu Quan-Zhi Zhang Hong-Bin Zhang Xue-Ying Ju Yong-Qin Chen Liang Ruan Xi-Chao

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 70, 072501 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201503

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201503>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

80.5 MeV/u 碳离子诱发铜靶的放射性 剩余产物测量^{*}

周斌¹⁾⁴⁾ 于全芝^{2)1) 5)†} 张宏斌³⁾ 张雪荧³⁾
鞠永芹³⁾ 陈亮³⁾ 阮锡超⁴⁾

1) (散裂中子源科学中心, 东莞 523803)

2) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

3) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

4) (中国原子能科学研究院, 北京 102413)

5) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2020 年 9 月 9 日收到; 2021 年 1 月 6 日收到修改稿)

高能重带电粒子能直接穿透靶原子核外电子层, 与原子核发生直接碰撞, 发生散裂反应, 产生一系列具有放射性的剩余产物核。重带电粒子诱发靶材放射性剩余核与辐射防护和人员安全有着密切联系, 当前, 大部分剩余核产额主要依靠蒙特卡罗粒子输运程序进行模拟计算, 其准确程度亟需通过实验测量进行准确评估。本文利用能量为 80.5 MeV/u 的 $^{12}\text{C}^{6+}$ 粒子对薄铜靶开展了辐照实验与伽玛射线测量, 结合伽玛谱学分析方法, 得出了辐照产生的 18 种放射性剩余产物的初始活度和产生截面值, 并与 PHITS 模拟结果进行对比。结果表明, PHITS 模拟程序对放射性剩余核种类的估计具有较高可靠性, 在其绝对产额方面, 与实验测量仍具有较大偏差。

关键词: 散裂反应, 剩余产物, 蒙特卡罗模拟, 伽玛谱学

PACS: 25.40.Sc, 25.70.Mn, 24.10.Lx, 29.30.-h

DOI: 10.7498/aps.70.20201503

1 引言

近年来, 具有高能量和高功率的粒子加速器被广泛应用于核物理、凝聚态物理、材料辐照效应和肿瘤治疗等研究领域^[1–4]。高能粒子入射到各种材料中, 容易穿透核外电子层而与其原子核发生散裂反应, 生成种类众多的放射性剩余产物。测量并分析高能粒子诱发的散裂反应剩余产物, 有利于校准散裂反应物理模型、评估核设施安全与寿命、气体

裂变碎片、衰变热及遥控维护等的影响等, 具有非常重要的研究意义。目前, 测量剩余产物的实验方法主要有: 结合磁谱仪的飞行时间方法^[5,6]、放射化学方法^[7]、伽玛谱学方法^[8–23]。磁谱仪庞大且昂贵, 放射化学方法比较费时。伽玛谱学方法利用放射性剩余产物在衰变过程中, 伽玛射线按照一定几率向外释放, 不同种类剩余产物由此过程产生的伽玛射线束的能量具有差异, 测量被辐照材料释放的不同能量伽玛射线的总数目, 可以较快便捷地分析出不同剩余产物初始活度以及产生截面等相关信息。

* 国家自然科学基金(批准号: 11575289)与中国科学院关键技术人才项目资助的课题。

† 通信作者。E-mail: qzhyu@iphy.ac.cn

2 实验开展

实验采用兰州重离子加速器 RIBLL 终端提供的碳离子束, 其能量为 80.5 MeV/u, 电荷态为 6⁺. 碳离子束经束流传输线到达次级放射性束流的样品腔内, 入射到被固定在纯铝支架的铜靶上, 辐照时间为 1 h. 辐照期间, 采用感应式法拉第筒结合弱电流计进行注量率监测, 束流能量稳定. 采用拦截式法拉第筒对束流监测系统进行标定, 得到碳离子总注量为 3.39×10^{14} 个. 实验采用的铜靶纯度优于 99.9%, 其直径为 20 mm, 厚度为 50.2 μm . 采用 ORTEC 公司生产的、型号为 GMX45 P4、相对探测效率为 45% 的高纯锗伽玛能谱仪对铜靶的伽玛谱进行测量. 该探测器的源探测效率已采用放射性同位素标准点源 ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{152}Eu 和 ^{241}Am 进行了标定. 在测量过程中, 为了避免较高计数率给高纯锗伽玛谱仪带来阻塞效应, 辐照后的铜靶经过一定冷却时间后进行数据采集, 并且铜箔与探头的探测距离为 10 cm. 另外, 为降低环境伽玛本底的干扰, 高纯锗探头被放置于铅室内, 外连计算机软件读出测量数据.

图 1 为实验测量的伽玛能谱图, 分别对应了辐照结束后 3.8, 6.8 与 11.8 d 的伽玛能谱计数.

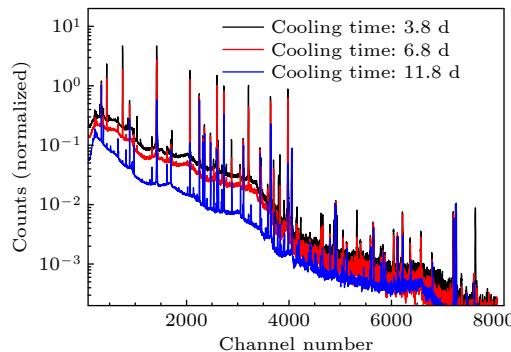


图 1 铜靶冷却后的伽玛能谱

Fig. 1. Gamma spectra of the copper target.

3 数据处理与讨论

放射性剩余核分析流程如图 2 所示. 首先采用伽玛谱分析程序读取铜靶伽玛谱各个全能峰的峰面积, 修正铜靶伽玛自吸收效应和伽玛能谱仪源探测效率值后得出全能峰净面积. 伽玛能谱中通常包含至少几十个能峰, 为了识别不同全能峰所对应的放射性剩余核种类, 需要利用蒙特卡罗粒子输运程

序开展模拟计算并挑选出最有可能贡献于伽玛能谱的产物核, 结合它们的衰变纲图, 基本可实现放射性产物核与伽玛全能峰的匹配.

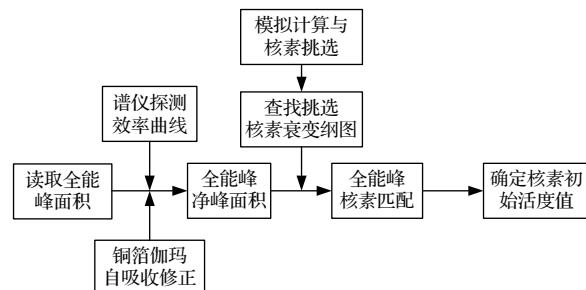


图 2 放射性剩余核分析流程图

Fig. 2. Diagram to analyze radioactive residual nuclei.

全能峰面积与特定放射性剩余核活度值的关系可用 (1) 式进行描述, 剩余核产生截面用 (2) 式进行计算:

$$A = \frac{\lambda C}{\eta k_1 k_2} \cdot \frac{1}{1 - e^{\lambda t_2}}, \quad (1)$$

$$\sigma = \frac{\lambda C e^{\lambda t_1}}{\eta k_1 k_2 I_{\text{beam}} N_{\text{Cu}} d (1 - e^{\lambda t_0}) (1 - e^{\lambda t_2})}, \quad (2)$$

其中 C 为全能峰面积; k_1 为伽玛能谱仪的源探测效率; k_2 为铜靶对伽玛自吸收修正因子; η 为测定放射性剩余核的特征伽玛射线释放分支比; λ 为待分析放射性剩余核的衰变常数; t_0 为铜箔的辐照持续时间; t_1 为辐照结束后的冷却时间; t_2 为伽玛能谱仪获取伽玛谱线的持续测量时间; I_{beam} 为碳离子平均束流强度; N_{Cu} 为铜原子密度值; d 为铜靶厚度.

采用由日本 RIST, JAEA 和 KEK 等机构开发的 PHITS^[24] 程序进行了蒙特卡罗模拟计算. PHITS 采用三种反应模型来开展粒子输运, 分别为强子级联模型 JAM、核-核碰撞分子动力学模型 JQMD 和基于评价核数据 (如 JENDL-4.0 和 JENDL-HE) 的用于中低能中子和光子的计算模型. 重离子诱发放射性剩余核的模拟通常采用 JQMD 模型开展, 获得的反应产物剩余核在采用广义蒸发模型 (GEM) 处理后进行放射性衰变, 并最终纳入统计.

短寿命产物经过足够长冷却时间后其活度值可达到忽略不计, 为了简化数据处理流程和提高数据分析精确度, 可优先处理较长冷却时间的伽玛能谱, 并基于分析数据, 进一步推导和验证冷却时间短的伽玛谱所包含的丰富的放射性剩余核活度信息. 表 1 以降序方式列出了铜靶经过不同冷却时间

后具有较长半衰期放射性剩余核的测量活度值, 其中推导值是指采用冷却时间为 11.8 天的测量活度值结合剩余核放射性衰变规律所得。从表 1 的数据对比表明, 实际测量活度值与推导值能保持较好的一致性, 这验证了放射性剩余核分析流程和方法的准确性。

表 1 长半衰期放射性剩余核的测量活度值
Table 1. Radioactivity of long-life residual nuclides.

剩余核名称	半衰期/d	$T = 11.8$ d/Bq	$T = 6.8$ d/Bq	推导值 /Bq	$T = 3.8$ d/Bq	推导值 /Bq
^{51}Cr	27.7	1526.2	1695.1	1729.6	1831.9	1864.5
^{48}V	15.97	1107.9	1351.0	1376.4	1512.9	1567.8
^{52}Mn	5.59	934.9	1690.1	1737.9	2437.4	2521.0
^{58}Co	70.82	876.1	893.5	920.0	949.7	947.5
^{56}Co	77.27	239.1	233.5	250.1	233.6	256.9
$^{44\text{m}}\text{Sc}$	2.44	228.9	907.4	536.4	2105.5	2218.0
^{57}Co	271.79	211.3	209.4	214.0	216.5	215.7
^{46}Sc	83.79	169.7	179.9	176.9	174.9	181.3
^{47}Sc	3.345	155.2	433.7	437.4	799.6	814.4
^{54}Mn	312.3	140.7	139.8	142.3	139.2	143.2
^{59}Fe	44.5	58.1	55.6	60.9	65.1	65.8

表 2 给出了铜靶经过 3.8 d 冷却后, 放射性活度大于 100 Bq 的剩余核名称、模拟活度值及实测活度值, 铜靶内放射性剩余核的模拟活度值按降序排列, 对比表明, 模拟计算的可能被探测的放射性剩余核均得以实验测量, 可见 PHITS 对高能重离子与铜靶相互作用产生的放射性剩余核种类评估具有较高可靠性。

在剩余核产生的放射性活度方面, ^{51}Cr , ^{48}V , $^{44\text{m}}\text{Sc}$, ^{58}Co , ^{57}Co , ^{56}Co 和 ^{55}Co 的 PHITS 的模拟计算数据与实验测量结果有较好的吻合; 而 ^{44}Sc , ^{52}Mn , ^{7}Be 和 ^{43}K 的差别则较大。把表 2 所列的 18 种放射性核素看成一个整体, 则 E/C 值约为 85%。可见, 对单个剩余核的放射性活度与铜靶整体的放射性活度, PHITS 模拟计算与实验测量存在一定差异。文献 [22,23] 中介绍了 MCNPX, GEANT4 对质子诱发铜靶放射性剩余核的模拟, 其结论亦表明了受限于散裂物理模型的可靠性, 模拟程序对不同产生剩余核的模拟准确程度不一。另外, 表 2 中标注“纯 β 衰变”的剩余核, 即 ^{33}P , ^{49}V 与 ^{3}H , 表示在其发生 β 衰变过程中, 直接从母核基态衰变到子核基态, 不产生任何伽玛射线, 因此无法基于伽玛谱学方法进行分析。标注“特征峰微弱”的 ^{47}Ca 和

^{42}K 剩余核, 由于其自身活度值太低, 释放的特征伽玛射线全能峰面积非常小, 以至于在伽玛谱分析时仅能被观察到而无法被正常读取和分析, 在表 2 中仅给出了模拟计算值。

表 2 剩余核实验测量与模拟活度值(冷却时间 3.8 d)
Table 2. Radioactivity of residual nuclides in copper target by measurement and PHITS simulation (cooling for 3.8 d).

剩余核名称	半衰期	模拟活度值/Bq	实测活度值/Bq	Exp./Cal.
^{47}Sc	3.345d	2832.3	799.6 ± 29.9	0.28
^{51}Cr	27.7d	1953.0	1831.9 ± 68.5	0.94
^{44}Sc	2.927h	1920.0	4507.8 ± 288.6	2.47
^{48}V	15.97d	1642.2	1512.9 ± 110.1	0.86
$^{44\text{m}}\text{Sc}$	58.6h	1813.3	2105.5 ± 78.8	1.22
^{48}Sc	43.67h	1416.6	152.0 ± 13.2	0.11
^{52}Mn	5.59d	1106.3	2437.4 ± 111.7	2.20
^{58}Co	70.82d	915.5	949.7 ± 43.5	1.04
^{7}Be	53.29d	776.7	186.3 ± 12.9	0.24
^{43}K	22.3h	598.6	143.3 ± 5.4	0.24
^{32}P	14.26d	490.4	纯 β 衰变	—
^{57}Ni	35.6h	486.5	203.2 ± 13.5	0.42
^{46}Sc	83.79d	408.7	174.9 ± 9.6	0.43
^{33}P	14.26d	327.8	纯 β 衰变	—
^{47}Ca	4.536d	233.2	特征峰微弱	—
^{57}Co	271.79d	214.4	216.5 ± 8.1	1.01
^{56}Co	77.27d	213.3	233.6 ± 15.5	1.09
^{37}Ar	35.04d	208.6	纯 β 衰变	—
^{54}Mn	312.3d	199.6	139.2 ± 6.4	0.70
^{42}K	12.36h	176.3	特征峰微弱	—
^{49}V	330d	163.5	纯 β 衰变	—
^{3}H	12.33a	130.3	纯 β 衰变	—
^{55}Co	17.53h	116.4	133.1 ± 13.8	1.14
^{59}Fe	44.5d	109.4	61.8 ± 5.8	0.56
^{48}Cr	21.56h	93.5	47.5 ± 1.8	0.51

采用 (2) 式, 可计算铜靶中放射性剩余核的产生截面值, 如表 3 所列, 其中 Sc, Cr, Mn 和 Co 这四种元素分别测量得到了多种放射性同位素的截面。从表 3 观察可得出, 对于质量数与其对应的天然稳定核差值较大的剩余核, 其反应截面的测量数据与模拟结果之间的差异往往较大, 如 Sc 的天然稳定同位素是 ^{45}Sc , 放射性剩余核 ^{46}Sc , ^{47}Sc 和 ^{48}Sc 的 E/C 值分别为 0.43, 0.28 和 0.11。对此, 其主要原因在于质量数越偏离稳定核, 其原子核稳定性

性往往越低,这些核素需依靠相对复杂的核反应生成,物理模型对这些过程的描述准确度不高,另外,奇异核反应截面一般不高,这导致了物理模型所计算的截面数据具有较大不确定度。

表 3 铜靶放射性剩余产物的反应截面

Table 3. Cross sections of residual nuclides in copper target by measurement and PHITS simulation.

剩余核名称	测量截面值/mb	模拟截面值/mb
⁷ Be	9.11 ± 0.98	38.0
⁴³ K	2.05 ± 0.19	8.6
⁴⁴ mSc	13.37 ± 1.21	10.9
⁴⁶ Sc	13.21 ± 1.31	30.9
⁴⁷ Sc	5.10 ± 0.46	18.1
⁴⁸ Sc	1.04 ± 0.13	9.7
⁴⁸ V	24.93 ± 2.75	28.5
⁴⁸ Cr	0.72 ± 0.07	1.4
⁵¹ Cr	48.78 ± 4.41	48.0
⁵² Mn	19.16 ± 1.81	8.7
⁵⁴ Mn	38.28 ± 3.61	38.3
⁵⁵ Co	3.26 ± 0.43	2.9
⁵⁶ Co	16.31 ± 1.72	14.9
⁵⁷ Co	51.88 ± 4.69	51.4
⁵⁸ Co	60.97 ± 5.76	58.8
⁵⁷ Ni	1.59 ± 0.17	3.8
⁵⁹ Fe	2.55 ± 0.32	4.5

表 3 中的数据表明铜靶内产生截面较大的剩余核为⁵⁸Co, ⁵⁷Co 和⁵¹Cr。然而,由于它们所具有较长半衰期,这导致了相对较低强度放射性。在评估碳束所轰击铜靶的环境影响时,需要综合考虑加速器束流强度、剩余核产生截面、冷却时间和伽玛射线释放强度等因素。

实验开展与数据处理过程中,束流强度监测的不确定度约为7%,铜靶质量误差为2%,峰面积读取带来的不确定度为2%—6%,其中统计误差为1%—3%,伽玛谱仪源探测效率曲线的不确定度为2%—4%,总的说来,实验测量数据的不确定度误差为8%—10%。

4 总 结

铜作为一种常用导电、导热、结构和射线屏蔽材料,被广泛应用于现代粒子加速器装置中。粒子加速器产生的高能粒子入射到铜中,将产生一系列具有放射性的剩余产物核,带来辐射安全方面的威

胁。本文利用能量为80.5 MeV/u的¹²C⁶⁺粒子为入射粒子轰击薄铜靶,结合伽玛谱学分析方法,得到了铜靶中18种不同放射性剩余产物的初始活度和产生截面值,通过与模拟计算对比,验证了PHITS计算程序的可靠程度,为散裂物理模型开发、辐射防护、加速器设计等方面提供了实验数据参考。

参考文献

- [1] Xia J W, Zhan W L, Wei B W, et al. 2002 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **488** 11
- [2] Wei J, Chen H S, Chen Y W, et al. 2009 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A* **600** 10
- [3] Zhu S Y, Guo G, He M, Wu Z D, Ruan D Q, Sui L, Jiao X S, Chang H W, Zuo Y, Fan P, Ge Z G, Chen D F 2020 *Atom. Ener. Sci. Technol.* **54** 1 (in Chinese) [朱升云, 郭刚, 何明, 吴振东, 袁大庆, 隋丽, 焦学胜, 常宏伟, 左义, 范平, 葛智刚, 陈东风 2020 原子能科学技术 **54** 1]
- [4] Liu S Y 2012 *Proton and Heavy Ions Therapy and Facility* (Beijing: Science Press) p152 (in Chinses) (in Chinese) [刘世耀 2012 质子和重离子治疗及其装置 (北京: 科学出版社) 第152页]
- [5] Villagrassa-Cabton C, Boudard A, Ducret J E, et al. 2007 *Phys. Rev. C* **75** 044603
- [6] Lin Y G, Zhan W L, Guo Z Y, et al. 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 564 (in Chinese) [林源根, 詹文龙, 郭忠言, 等 1998 物理学报 **47** 564]
- [7] Roger E B, Daniel R M, Glenn T S 1951 *Phys. Rev.* **84** 671
- [8] Cumming J B, Haustein P E, Stoermer R W 1974 *Phys. Rev. C* **10** 739
- [9] Cumming J B, Stoermer R W 1976 *Phys. Rev. C* **14** 1554
- [10] Cumming J B, Haustein P E, Ruth T J, Virtes G J 1978 *Phys. Rev. C* **17** 1632
- [11] Porile N T, Cole G D, Rudy C R 1979 *Phys. Rev. C* **19** 2288
- [12] Hicks K H, Ward T E, Bowman H, et al. 1982 *Phys. Rev. C* **26** 2016
- [13] Whitfield J P, Porile N T, 1993 *Phys. Rev. C* **47** 1636
- [14] Michel R, Gloris M, Lange H J, et al. 1995 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **103** 183
- [15] Michel R, Bodermann R, Busemann H, et al. 1997 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **129** 153
- [16] Titarenko Y E, Shvedov O V, Igumnov M M, et al. 1998 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **414** 73
- [17] Titarenko Y E, Shvedov O V, Batyaev V F, et al. 2002 *Phys. Rev. C* **65** 064610
- [18] Yashima H, Uwamino Y, Sugita H, et al. 2002 *Phys. Rev. C* **66** 044607
- [19] Yashima H, Uwamino Y, Iwase H, et al. 2004 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **226** 243
- [20] Shams A M, Uosif M A, Michel R, et al. 2013 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **298** 19
- [21] Ogawa T, Morev M N, Sato T, Hashimoto S ??? *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **300** 35
- [22] Ge H L, Ma F, Zhang X Y, et al. 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **337** 34
- [23] Zhang H B, Zhang X Y, Ma F, et al. 2015 *Chin. Phys. Lett.* **32** 042501
- [24] Tatsuhiko S, Koji N, Norihiro M, et al. 2013 *J Nucl. Sci. Technol.* **50** 913

Measurement of radioactive residual nuclides induced in Cu target by 80.5 MeV/u carbon ions*

Zhou Bin¹⁾⁴⁾ Yu Quan-Zhi^{2)1) 5)†} Zhang Hong-Bin³⁾ Zhang Xue-Ying³⁾
Ju Yong-Qin³⁾ Chen Liang³⁾ Ruan Xi-Chao⁴⁾

1) (*Spallation Neutron Source Science Center, Dongguan 523803, China*)

2) (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

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

5) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

(Received 9 September 2020; revised manuscript received 6 January 2021)

Abstract

Radioactive residual nuclides, which are usually closely related to radiation protection and personnel safety, will be generated when target materials are irradiated by high energy particles. Based on different nuclear reaction models, Monte Carlo code is a usual method to obtain residual nuclide production. The simulation accuracy needs to be evaluated by experimental data. In this paper, an irradiation experiment of thin copper target irradiated by $^{12}\text{C}^{6+}$ particles with energy of 80.5 MeV/u is carried out. The radioactivities and cross-sections of 18 radioactive residual nuclides are obtained by gamma spectrometry analysis. Compared with the Monte Carlo simulation by PHITS, the results show that the spallation model of PHITS has a high reliability in estimating the types of radioactive residual nuclei, and it could be optimized in the aspect of the absolute yield.

Keywords: spallation reactions, residual nuclides, Monte Carlo simulations, gamma spectrometry method

PACS: 25.40.Sc, 25.70.Mn, 24.10.Lx, 29.30.-h

DOI: [10.7498/aps.70.20201503](https://doi.org/10.7498/aps.70.20201503)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11575289) and CAS Key Technology Talent Program.

† Corresponding author. E-mail: qzhyu@iphy.ac.cn