

^{252}Cf 自发裂变中子发射率符合测量的回归分析

李永明 王亮 陈想林 阮念寿 赵德山

Regression analysis of coincidence measurements for determinating the neutron emission rate of ^{252}Cf spontaneous fission

Li Yong-Ming Wang Liang Chen Xiang-Lin Ruan Nian-Shou Zhao De-Shan

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 67, 242901 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181073

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181073>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I24>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于 3.5 MeV 射频四极质子加速器硼中子俘获治疗装置的束流整形体设计

Design of beam shaping assembly based on 3.5 MeV radio-frequency quadrupole proton accelerator for boron neutron capture therapy

物理学报.2018, 67(14): 142801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180380>

抽样法与灵敏度法 k_{eff} 不确定度量化

Uncertainty quantification in the calculation of k_{eff} using sensitivity and stochastic sampling method

物理学报.2017, 66(1): 012801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.012801>

铍反射层临界基准实验分析

Analysis of criticality benchmark experiments with beryllium reflectors

物理学报.2016, 65(21): 212801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.212801>

氘氚聚变中子发生器旋转氚靶传热特性研究

Heat transfer analysis of rotating tritium target of deuterium-tritium fusion neutron generator

物理学报.2015, 64(10): 102901 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.102901>

^{252}Cf 自发裂变中子发射率符合测量的回归分析*

李永明[†] 王亮 陈想林 阮念寿 赵德山

(中国工程物理研究院材料研究所, 绵阳 621907)

(2018年5月31日收到; 2018年10月15日收到修改稿)

^{252}Cf 同位素源具有标准的自发裂变中子能谱, 但由于其半衰期较短, 应用中常需要对源强进行标定修正. 随着源年龄增加, 来自源中 ^{250}Cf 和 ^{248}Cm 自发裂变的影响愈加凸显, 不能简单按 ^{252}Cf 的衰变规律计算源中子发射率, 而通过镅浴活化的间接测量方法周期较长, 且在源强低于 10^4 n/s 时误差较大. 最近, 基于中子多重性计数的源强绝对测量算法已得到验证. 本文进一步从点模型假设的测量方程出发, 在将符合计数率与总中子计数率关联的基础上, 分别对符合计数率随源位置、符合门宽的变化关系进行回归分析, 提取变化过程的特征系数, 建立了两种避规效率变化的 ^{252}Cf 中子发射率测量方法, 并基于 JCC-51 型中子符合测量装置开展实验验证. 结果表明: 两种回归分析方法的测量值均与标称值的修正结果在 2% 的偏差范围内一致; 反推求得装置中轴线上的探测效率也与基于 MCNPX 程序的蒙特卡罗模拟计算值相符. 研究结果可为活度信息不明的 ^{252}Cf 源强标定及符合测量装置的效率刻度提供便携准确的实验方法.

关键词: ^{252}Cf 自发裂变, 中子发射率, 符合测量, 回归分析**PACS:** 29.25.Dz, 25.85.Ca, 28.20.-v**DOI:** 10.7498/aps.67.20181073

1 引言

^{252}Cf 源的自发裂变中子能谱已被推荐为国际 ISO 标准谱^[1], 广泛应用于中子探测器的效率刻度^[2-4]、中子剂量仪器的标定^[5,6]、核材料中易裂变核素含量的激发分析^[7,8]等科研工作. 但由于其半衰期仅有 2.645 年^[9], 且随着源年龄增加, 来自初始 ^{250}Cf 和其 α 衰变产物 ^{248}Cm 的自发裂变影响愈加凸显^[10,11], 不能简单地只按照 ^{252}Cf 的衰变规律计算源中子发射率, 使用前常需要对源强进行标定修正.

基于 $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ 反应的镅浴法^[12]可间接测量源中子发射率, 但为满足较好的统计精度, 一般要求源强不低于 10^4 n/s 且需辐照 MnSO_4 溶液达 8 h 以上^[13]. 而目前国内具备该类基准设备的单位有限, 预约标定将涉及源运输的辐射安保审批, 周期较长且费用较大, 因此发展更加便携、更大

适用动态范围的测量方法具有现实意义.

2013 年, Croft 和 Henzlov^[14] 基于中子多重符合测量原理, 建立了点模型假设条件下源强与总中子计数率 S 、符合计数率 D 、三重符合计数率 T 的四种相互关系, 经由 121 根 ^3He 正比计数管组成的高效率中子多重符合测量装置实验验证, 测量量分别为 S - D 、 S - T 、 D - T 、 S - D - T 的求解精度都在 2% 以内, 其中 S - D 方程的误差最小, 其他方法主要受 T 影响有略大的统计涨落. 2014 年, 国内陈利高等^[15]开展了该类测量算法的简化研究, 结合中子在系统内的衰减时间行为先求探测效率, 再反推源强; 并采用由 32 根 ^3He 正比计数管组成的装置对 5 个不同活度的 ^{252}Cf 镀膜源进行测量, 结果与修正标称值的最大相对偏差为 1.41%. 上述两个工作都是在对系统进行参数优化后, 将待测源置于探测器中心开展绝对测量.

若源在测量腔体的不同位置系统探测效率将发生改变, 且符合计数率也随符合门宽的增大而增

* 中国工程物理研究院材料研究所特聘基金 (批准号: TP201302-6) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: nphliym@caep.cn

加. 但由于入射中子的平均能量相同, 其在装置灵敏探测区域内的平均衰减时间近似为一个特征常数, 以上过程可认为满足相同的测量方程. 另外, 近年来数字化分析设备已逐步替代移位寄存分析器用于处理中子响应的脉冲时间序列^[16], 可实现一次测量后加载不同状态参数的离线反演. 由此可探索更为灵活普适的²⁵²Cf源强测量方法.

本文从核材料中子被动符合测量方程出发, 在约化探测效率的基础上, 考察不同源测量位置、不同符合门宽对计数率的影响, 通过回归分析提取变化过程的相同特征系数, 进而求解²⁵²Cf源自发裂变的中子发射率, 并开展相关的实验和蒙特卡罗(MC)模拟验证工作.

2 理论分析

对基于³He阵列的中子符合测量装置, 在将待测样品的空间分布认为是点源, 且假设 (α, n) 反应中子与自发裂变中子具有相同的能量分布和探测效率的条件下, 核材料自发裂变中子的被动符合测量方程可表达为^[17]

$$S = I\varepsilon = F\nu_{s1}M(1 + \alpha)\varepsilon, \quad (1)$$

$$D = \frac{F\varepsilon^2 f_d M^2}{2} \left[\nu_{s2} + (M - 1) \frac{\nu_{s1}\nu_{i2}}{\nu_{i1} - 1} (1 + \alpha) \right], \quad (2)$$

式中, S 为总中子计数率, I 是核材料的中子发射率, ε 是系统平均中子探测效率, F 是核材料的自发裂变率, M 是中子在待测样品中的增殖系数, α 是核材料 (α, n) 反应中子与自发裂变中子的比值, D 为符合中子计数率, ν_{sj} 是自发裂变中子多重性分布的 j 阶矩, ν_{ij} 是诱发裂变中子多重性分布的 j 阶矩, f_d 是双重符合门宽的利用率:

$$f_d = e^{-P/\tau} \times (1 - e^{-G/\tau}), \quad (3)$$

其中, P 为预延迟时间, G 为符合门宽, τ 为中子在装置中的平均衰减时间常数.

从(1)和(2)式可知, 系统探测效率的改变将对 D 值和 S 值均产生影响, 由此经数学变换可约掉效率, 即把符合计数率 D 由总中子计数率 S 进行展开:

$$D = \frac{f_d M S^2}{2I} \left[\frac{\nu_{s2}}{\nu_{s1}(1 + \alpha)} + (M - 1) \frac{\nu_{i2}}{\nu_{i1} - 1} \right]. \quad (4)$$

对不锈钢封焊的小体积²⁵²Cf点源, 源材料与¹⁸O, ¹³C等核素发生 (α, n) 反应以及诱发裂变等中

子增值因素可忽略不计, 可取 $\alpha = 0$, $M = 1$, 则(4)式进一步简化为

$$D = \frac{f_d \nu_{s2}}{2I \nu_{s1}} S^2, \quad (5)$$

其中, 自发裂变中子多重性分布的一阶矩和二阶矩分别为 $\nu_{s1} = 3.757$; $\nu_{s2} = 11.962$ ^[17].

2.1 不同符合门宽的源强回归分析

由(3)和(5)式可知, 在测量位置及预延迟固定的情况下, 系统 f_d 值和符合计数率均随着符合门宽的增大而增加, 但过程中总中子计数率 S 不受影响, 可认为是个不变量, 此时(5)式可进一步简化为线性关系. 设 K_1 为 D 随 f_d 的变化斜率, 可由最小二乘拟合的回归分析求出, 则²⁵²Cf源的中子发射率可表达为

$$I_1 = \frac{S^2 \nu_{s2}}{2K_1 \nu_{s1}}. \quad (6)$$

2.2 不同源位置的源强回归分析

在系统预延迟时间、符合门宽固定, 即 f_d 值为常数的情况下, 随着源在测量系统的位置不同, 符合计数率随总中子计数率呈抛物线的变化规律. 设 K_2 为 D 随 S^2 变化的斜率, 可由最小二乘拟合的回归分析求出, 则²⁵²Cf源的中子发射率表达为

$$I_2 = \frac{f_d \nu_{s2}}{2K_2 \nu_{s1}}. \quad (7)$$

3 实验测量

本文基于JCC-51型中子多重符合测量装置^[18]开展验证工作, 系统组成及原理流程如图1所示. 该装置由42根长度为50 cm、气压为4 atm (1 atm = 1.01325×10^5 Pa)的³He正比计数管分两环内嵌于高密度聚乙烯组成, 测量腔体内径为22.9 cm、外径为47.8 cm. 探测器工作高压为+1680 V, 前置放大器的输出信号由数字化分析器MCA527^[19]获取, 对中子响应的脉冲序列按照列表模式(list mode)进行标记和存储. 可统计出中子在测量装置内的符合计数随时间的衰减分布曲线; 加载预延迟时间、符合门宽、延迟时间等参数进行离线反演, 可得到总中子计数率、符合计数率和长延迟后的偶然符合计数率, 将符合计数率减去偶然符合计数率便得到真符合计数率; 考虑死时间修正

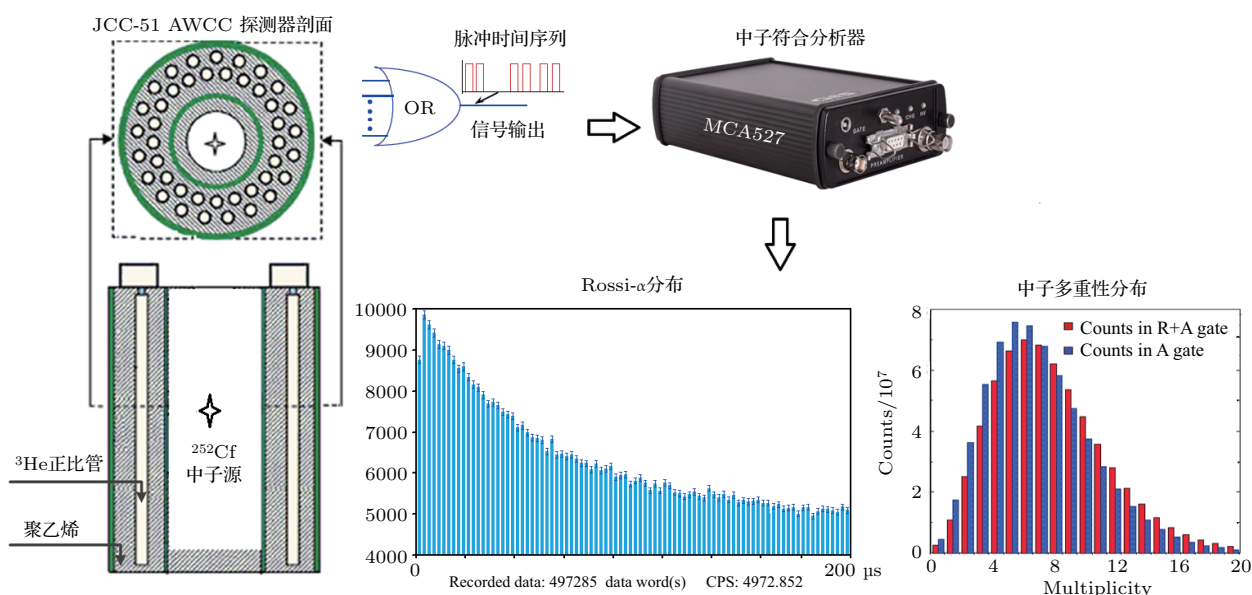


图1 实验系统及设置

Fig. 1. Experimental system and set-up.

后可获得源中子在探测器内的多重性分布. 待测的小体积 ^{252}Cf 中子源由美国橡树岭国家实验室生产封装, 活性区直径和高度均为1.57 mm, 2003年11月25日出厂时总活度为 4.255×10^5 Bq, 其中 ^{250}Cf 占总活度的3.64%, ^{252}Cf 占总活度的96.31%.

根据装置说明, 固化预延迟时间为4.5 μs , 延迟时间为1000 μs . 另外还需对符合门宽进行优化选取, 设置过小则符合计数率太低而失去统计意义, 过大则偶然符合计数较多, 导致真符合计数将是大量减大数的结果. 这里先将源置于系统中心, 重复3次300 s的测量, 将符合门宽从16 μs 到160 μs 依次步进调节进行数据反演, 步长为16 μs , 考察不同门宽及其利用率对符合计数的影响. 随后固定一个优化符合门宽, 将源沿着探测器中心轴向从距顶部5.0 cm的位置向底部平移, 每次步进5.0 cm后重复3次300 s测量, 考察不同探测效率下符合计数率 D 和总中子计数 S 的变化关系.

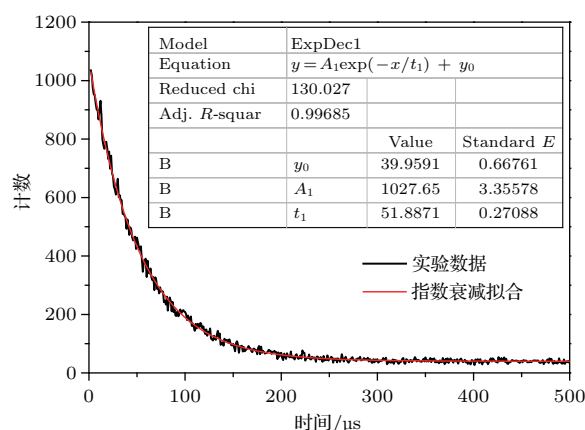
4 结果与讨论

具有时间关联特性的源自裂变中子在装置中被聚乙烯慢化, 以其中一个中子被 ^3He 俘获形成的脉冲作为符合触发信号, 系统之后 t 时刻相邻 dt 间隔内测到中子数 $N(t)$ 的分布如图2所示, 满足指数衰减的Rossi- α 分布规律^[17]:

$$N(t) = A dt + R e^{-t/\tau} dt, \quad (8)$$

式中 A 为随机符合计数率, R 为真符合相关的计数率. 取 $dt = 1 \mu\text{s}$, 可拟合出中子在装置中的平均衰减时间常数 $\tau = 51.887 \mu\text{s} \pm 0.27 \mu\text{s}$, 按(3)式可进一步求出不同条件对应的符合门宽利用率 f_d . 由于预延迟时间 P 与符合门宽 G 是精确给定的反演参数, 可忽略其不确定性, 则 f_d 的标准误差可由下式求出:

$$\sigma_{f_d} = \sigma_{\tau} \tau^{-2} \sqrt{e^{-2P/\tau} P^2 + e^{-2(P+G)/\tau} (P+G)^2}. \quad (9)$$

图2 ^{252}Cf 源位于装置中心的中子 Rossi- α 分布Fig. 2. Neutron Rossi- α distribution as ^{252}Cf source in the central of counter.

当源置于探测装置中心, 反演得到如图 3(a) 所示的符合计数率 D 随符合门宽利用率 f_d 的变化趋势, 两者近似满足线性关系, 在测量时间 t_m 内, 总中子计数率 S 不变, 其和 D 的标准误差分别为

$$\sigma_S = \sqrt{S/t_m}, \quad \sigma_D = \sqrt{D/t_m}. \quad (10)$$

由于系统稳定性较好, 在 300 s 内测量到足够的统计计数, σ_S 和 σ_D 值相对较小, 对 D - f_d 关系进行带误差的最小二乘拟合, 可得斜率 $K_1 = 176.133 \pm 0.090$, 按 (6) 式求得源中子发射率 I_1 , 其对应的标准误差为

$$\sigma_{I_1} = I_1 \sqrt{(2\sigma_S/S)^2 + (\sigma_{k_1}/k_1)^2}, \quad (11)$$

结果为 $I_1 = (1202.1 \pm 7.3) \text{ n/s}$.

将符合门宽设定为 $64 \mu\text{s}$, 反演 ^{252}Cf 源置于腔体中轴线不同位置的符合计数率随总中子计数率平方的变化关系, 结果如图 3(b) 所示, 也近似呈线性, 对 D - S^2 数据进行带误差的最小二乘拟合可得斜率 $K_2 = 8.524 \times 10^{-4} \pm 0.029 \times 10^{-4}$, 进而按 (7) 式求得源中子发射率为 I_2 , 其标准误差如下式计算:

$$\sigma_{I_2} = I_2 \sqrt{(\sigma_{f_d}/f_d)^2 + (\sigma_{k_2}/k_2)^2}, \quad (12)$$

结果为 $I_2 = (1213.7 \pm 5.5) \text{ n/s}$.

上述实验于 2017 年 12 月 27 日开展并完成, 根据半衰期、自发裂变分支比 ($T_{1/2}^{250}\text{Cf} = 13.08$ 年, $F_{250}\text{Cf} = 7.7 \times 10^{-4}$; $T_{1/2}^{252}\text{Cf} = 2.645$ 年, $F_{252}\text{Cf} = 3.092 \times 10^{-2}$) [9] 等参数对源强的出厂标称值进行修正计算, 结果为 1225.9 n/s , 与两种回归分析的测量值在 2% 的偏差范围内相符.

求出源中子发射率后, 由 (1) 式可得到装置中轴线上不同位置的探测效率 ε , 其标准误差可由下式求出:

$$\sigma_\varepsilon = \varepsilon \sqrt{(1/St_m) + (\sigma_{I_2}/I_2)^2}. \quad (13)$$

另外, 基于 MCNPX [20] 软件对测量装置进行几何建模和 MC 计算, 跟踪 10^6 个 ^{252}Cf 自发裂变中子, 其出射能谱选取为瓦特分布 (参数 $a = 1.18 \text{ MeV}$, $b = 1.03419/\text{MeV}$), 通过统计 $^3\text{He}(\text{n}, \text{p})^3\text{H}$ 俘获反应事件数获得不同源位的系统探测效率. 图 4 展示了模拟结果与实验值的比较情况. 当源位于装置底部时, 中子与底座材料发生相互作用的概率增加, S 的测量值中包含了部分随

机散射中子的贡献, 导致实验获得的效率略高于 MC 计算值, 除此之外的大部分灵敏测量区域内两者均符合得很好, 也进一步验证了该分析方法的准确性.

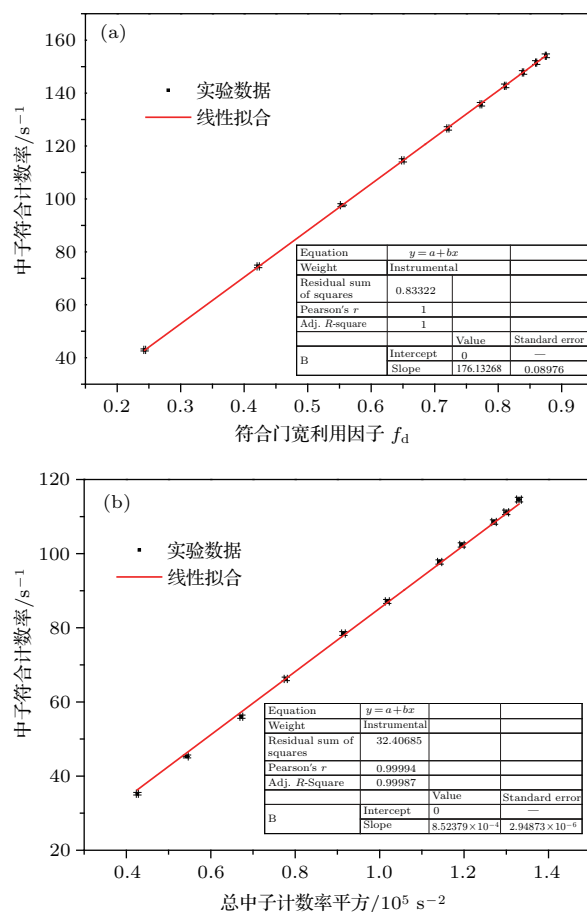


图 3 中子符合计数率的回归分析 (a) 不同的符合门宽; (b) 不同的源位置

Fig. 3. Regression analysis of the neutron coincidence counting rate: (a) Different coincidence gates; (b) source at different positions.

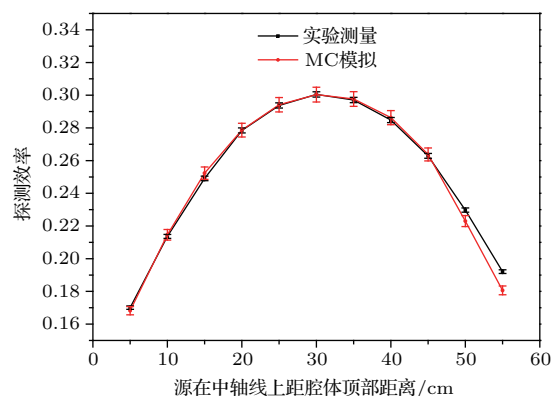


图 4 ^{252}Cf 源在装置中轴线不同位置的探测效率

Fig. 4. Neutron detection efficiency of system as ^{252}Cf source at the central axis.

5 结 论

本文建立了两种不依赖于效率的 ^{252}Cf 源强回归分析方法. 当源固定在测量腔内合适的位置时, 通过一次测量后进行多个符合门宽等参数的离线反演, 在保障数据的一致性的同时提高了测量的便携性; 当源固定在一优化的符合门宽时, 可在灵敏体积内开展较大动态范围的测量, 也有效地降低了对源位的置放精度要求. 采用出厂中子强度已知的小体积 ^{252}Cf 源与JCC-51型中子符合测量装置进行实验验证, 源中子发射率测量值与标称值按半衰期修正的结果在2%的误差内一致, 获得装置中轴线上不同位置的探测效率也与MCNPX程序的MC模拟结果相符, 表明该技术方法是行之有效的. 其可应用于新购或未知源强的核对标定; 也可在未知源强度的条件下开展符合测量系统的效率刻度, 减少了对标准源的依赖.

值得指出的是, 随着源经历时间的增加, 来自 ^{250}Cf 自发裂变的影响将逐步增强^[10,11], 采用本方法对大于20年以上的老源进行测量时, 需要先求解初始 ^{250}Cf 与 ^{252}Cf 的活度比值, 再对多重性分布参数进行权重的修正.

参考文献

- [1] David T, Roberto B, Roberto M, Alan T, Andreas Z 2018 *Radiat. Prot. Dosim.* **180** 21
- [2] Tadashi A, Toshikazu S, Ikuo M, Masakuni N, Yuichi O 1991 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **38** 1040
- [3] Reeder P L, Bowyer S M 2002 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **484** 469
- [4] Lawrence C C, Flaska M M, Ojaruega M, Andreas E, Clarke S D, Pozzi S A, Becchetti F D 2010 *IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference* Knoxville, USA, October 30–November 6, 2010 p110
- [5] Józefowicz K, Golnik N, Tulik P, Zielczyński M 2007 *Radiat. Prot. Dosim.* **126** 134
- [6] Thiem N L, Hoai N T, Khai T N, Giap V T 2017 *Nucl. Eng. Technol.* **49** 277
- [7] Mihalcz J T, Mullens J A, Mattingly J K, Valentine T E 2000 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **450** 531
- [8] Pozzi S A, Segovia J 2002 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **491** 326
- [9] Table of Radioactive Isotopes, Schmorak M R <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/nuclide.asp?iZA=980252> [2018-10-23]
- [10] Roberts N J, Jones L N 2007 *Radiat. Prot. Dosim.* **126** 83
- [11] Li J J, Du J F, Zheng C 2015 *High Power Laser and Particle Beams* **27** 124007 (in Chinese) [李俊杰, 杜金峰, 郑春 2015 强激光与粒子束 **27** 124007]
- [12] Hwang S T, Lee K 1988 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **273** 381
- [13] Teng Z S 1983 *Preparation and Application of Californium-252* (Beijing: Atomic Energy Press) p140 (in Chinese) [滕征森 1983 钚-252的制备及应用 (北京: 原子能出版社) 第140页]
- [14] Croft S, Henzlov D 2013 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **714** 5
- [15] Chen L G, Gong J, Wang K, Xie Q L, Liu X B, Fan X Q 2014 *Atom. Energy Sci. Technol.* **148** 14 (in Chinese) [陈利高, 龚建, 王侃, 谢奇林, 刘晓波, 范晓强 2014 原子能科学技术 **148** 14]
- [16] Ridnik T, Dubi C, Israelashvili I, Bagi J, Huszti J 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **735** 53
- [17] Ensslin N, Harker W C, Krick M S, Langner D G, Pickrell M M, Stewart J E 1998 *Los Alamos National Laboratory Report LA-13422-M*
- [18] Francesca F, Paolo P 2010 *Radiat. Meas.* **45** 1034
- [19] Berndt R, Brutscher J, Mortreau P 2014 *Symposium on International Safeguards: Linking Strategy, Implementation and People* Vienna, Austria, October 20–24, 2014 p1
- [20] Pelowitz D B 2011 *Los Alamos National Laboratory Report LA-CP-11-00438*

Regression analysis of coincidence measurements for determining the neutron emission rate of ^{252}Cf spontaneous fission^{*}

Li Yong-Ming[†] Wang Liang Chen Xiang-Lin Ruan Nian-Shou Zhao De-Shan

(Institute of Materials, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621907, China)

(Received 31 May 2018; revised manuscript received 15 October 2018)

Abstract

The ^{252}Cf isotope sources have a recommended standard neutron spectrum of spontaneous fission, and have been widely used in scientific researches, such as the detection efficiency calibration of neutron detectors, the characterization of neutron dose equivalent meters, the active analysis of special nuclear materials, etc. However, it is often necessary to correct the neutron emission rate due to its short half-life of 2.645 years. As the source age increases the contributions from ^{250}Cf and ^{248}Cm spontaneous fission become more significant, thus the neutron emission rate cannot be calculated simply according to the ^{252}Cf decay law. In addition, the indirect measurement method by manganese bath activation needs a long period more than 8 hours; and it will have a large uncertainty while the source strength is lower than 10^4 n/s. In order to develop a more portable measurement method for larger suitable dynamic range, the comprehensive algorithms based on the neutron multiplicity counting are studied in this paper. On the basis of the measurement equations under the point model assumption, the neutron coincidence counting rate is correlated with the total neutron counting rate, and then the regression analyses with different coincidence gates and different source locations in the counter are performed. On the assumption that the average neutron die-away time is constant in the sensitive range of detection system, therefore the characteristic coefficient from the changing process can be extracted, and two kinds of methods of measuring the neutron strength are established, which are independent of the efficiency variation. The verification experiments are carried out by the JCC-51 neutron coincidence counter. It is shown that the values measured by the two regression methods are consistent with the corrected results of the nominal value within 2% deviation. Furthermore, the detection efficiency is inversed by dividing the total neutron counting rate with the neutron emission rate when the source is placed at the central axis, which accords with the result of Monte Carlo simulation by using the MCNPX code well. It can provide an accurate method of determining the neutron emission rate of ^{252}Cf spontaneous fission, and also an approach to calibrating the detection efficiency of neutron coincidence counter while the source strength is unknown.

Keywords: ^{252}Cf spontaneous fission, neutron emission rate, coincidence measurements, regression analysis

PACS: 29.25.Dz, 25.85.Ca, 28.20.-v

DOI: 10.7498/aps.67.20181073

^{*} Project supported by the Special Engage Foundation of Institute of Materials in China Academy of Engineering Physics (Grant No. TP201302-6).

[†] Corresponding author. E-mail: nphlym@caep.cn