

# 钷体源样品 $\gamma$ 能谱计算的蒙特卡罗方法

郝樊华 胡广春 刘素萍 龚 建 向永春 黄瑞良

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

师学明 伍 钧

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2004 年 8 月 23 日收到, 2005 年 3 月 16 日收到修改稿)

提出了钷体源样品  $\gamma$  能谱分步计算的蒙特卡罗模型和方法. 采用分步和直接计算两种方法对球壳形钷体源样品的  $\gamma$  能谱进行了模拟计算. 用实验测量的  $\gamma$  能谱验证了计算结果的可靠性. 计算结果与实验测量值在 10% 的误差范围符合. 通过对 Steve Fetter 模型的模拟计算表明, 对于外面包有若干屏蔽层的钷体源样品大系统, 采用分步方法进行能谱计算, 可以使结果快速收敛.

关键词: 钷体源样品, 蒙特卡罗方法,  $\gamma$  能谱, Steve Fetter 模型

PACC: 2930K, 2990, 0270

## 1. 引 言

核弹头的属性识别在核弹头核查中具有重要意义. 核弹头属性包括核弹头中裂变材料的种类、年龄、同位素丰度和质量等. 被动  $\gamma$  能谱测量是核弹头属性识别的重要手段之一<sup>[1,2]</sup>. 由于开展实验研究存在多方面的困难, 理论计算是一种较易行且有效的方法. 本文研究的问题是在已知核材料数量和组成的情况下, 利用蒙特卡罗(MC)方法模拟应测得的  $\gamma$  能谱. 类似的工作国内外曾有人做过<sup>[3]</sup>, 但对材料吸收非常强的模型计算和实验尚未见报道.

随着研究对象的复杂化、屏蔽材料加厚, 利用 MCNP4B 程序提供的 F8 卡直接计算  $\gamma$  能谱的效率降低并且计算结果的统计误差增大. 特别是对复杂的、吸收很强的模型, 利用单台微型计算机作直接的 MC 模拟计算几乎是不可能的. 例如对假定的核弹头模型和屏蔽较厚的元件罐外  $\gamma$  能谱的计算, 采用直接记录脉冲高度分布的方法遇到了几乎难以克服的困难. 因此探索一种简便的计算方法以提高计算效率, 降低统计误差成为亟待解决的问题. 本文提出的分步计算方法较好地解决了上述问题.

钷体源样品的能谱可以通过测量  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  等核素及其子体的特征峰获取. 这是一种典型的多核素体源. 本文利用分步和直接两种方法分别模拟计算了钷体源样品的  $\gamma$  能谱, 并将模拟结果与

测量能谱进行了比较, 验证了体放射源能谱分步计算方法的可靠性, 并对两种计算方法作了比较.

## 2. 计算方法

### 2.1. 分步计算方法

分步计算方法是指将粒子的输运过程分为若干步骤完成, 这样便于使用一些 MC 技巧提高计算效率. 在我们的计算中是将  $\gamma$  能谱的计算分为两个步骤: 第一步构造面源, 在该步可以使用 MCNP4B 的各种技巧; 第二步是直接计算面源的探测能谱.

第一步主要完成三步计算.

首先, 估算探测器表面  $\gamma$  射线入射流. 计算分析各表面的入射流大小, 忽略入射流贡献小的表面(例如探测距离较远时探测器的侧表面). 如果侧表面贡献较大, 可以考虑适当增大前表面面积, 由此将探测器体表面计算问题转化为探测器前表面计算问题.

其次, 计算出探测器前表面总入射流的角分布, 以此作为该面源的入射流角分布.

最后, 计算前表面的能量-强度分布. 在实际计算中采用点通量替代法<sup>[4]</sup>简化了前表面的能量-强度分布计算. 定义在体表面  $S$  上的任一分布函数  $f_S(\mathbf{r})$ , 用  $v$  表示粒子进入体表面时的运动方向与体表面法线方向夹角余弦, 则由流量与通量的关系式

$$J(\mathbf{r}, E, t, v) = |v| \Phi(\mathbf{r}, E, t), \quad (1)$$

得到体表面流量表达式为

$$J(S) = \int_S \int_t \int_E \int_v J(\mathbf{r}, E, t, v) dv dE dt dS. \quad (2)$$

进一步可以得到

$$\begin{aligned} J(S) &= \int_S \int_t \int_E \int_v |v| \Phi(\mathbf{r}, E, t) dv dE dt dS \\ &= \int_S \int_t \int_E \int_v \frac{|v| \Phi(\mathbf{r}, E, t)}{f_S(\mathbf{r})} f_S(\mathbf{r}) dv dE dt dS. \end{aligned} \quad (3)$$

因此,体表面流量的无偏估计公式为

$$J^*(S) = \frac{1}{f_S(\mathbf{r}_{f_S})} \int_t \int_E \int_v |v| \Phi(\mathbf{r}_{f_S}, E, t) dv dE dt, \quad (4)$$

式中  $\mathbf{r}_{f_S}$  表示分布  $f_S(\mathbf{r})$  中的抽样值. 表面流量点通量替代法就是用计算点通量的(4)式代替(2)式,即点通量(4)式的任一种 MC 方法估计,都将是体表面流量(2)式的一个估计.

针对本文要解决的问题,分布函数  $f_S(\mathbf{r})$  选取探测器前表面的均匀分布,则(2)式变为如下的形式:

$$J^*(S_A) = S_A \int_t \int_E \int_v |v| \Phi(\mathbf{r}_{f_{S_A}}, E, t) dv dE dt, \quad (5)$$

式中,  $S_A$  表示探测器前表面的面积,  $\mathbf{r}_{f_{S_A}}$  表示在前表面上均匀产生的点,本文在计算时选取前表面的中心点.

考虑到散射对点通量的贡献在探测器上也将形成本底,探测器的响应计算只考虑点通量的直穿部分.另外,因为  $\gamma$  特征射线较多,所以特征能量附近区间的划分应取适当的值.

第二步主要完成两步计算.

首先,以前表面的入射流的能量-强度分布、角分布构造一个面源,以此为源项作输运计算,从而将问题转化为面源能谱计算.利用 MCNP 程序的 F8 卡计数获得归一化的  $\gamma$  谱.

其次,将归一化的  $\gamma$  能谱乘以源强就得到计算的能谱.为此要计算探测器前表面的总源强.当实际源强  $I_0$  已知,则探测器前表面的总源强  $I_t$  为

$$I_t = P_0^{\text{in}} I_0 \pi r^2, \quad (6)$$

式中,  $P_0^{\text{in}}$  为粒子流入探测器前表面中心点的点通量,  $r$  为探测器前表面半径.由此在能量区间  $\Delta E$  内的计数率  $C_{\Delta E}$  为

$$C_{\Delta E} = I_t F_8^{\Delta E}, \quad (7)$$

式中  $F_8^{\Delta E}$  为能量区间  $\Delta E$  内的脉冲高度记录.

## 2.2. 直接计算方法

由物理问题出发,直接模拟  $\gamma$  源粒子在介质中的输运以及由它和它的次级电子引起的探测器中脉冲能量分布.利用 MCNP 程序提供的 F8 卡,可获得由辐射引起的探测器中脉冲能量分布,即归一化  $\gamma$  能谱,它的归一化因子为放射源源强.在直接计算脉冲幅度的过程中,除可对源本身进行偏倚抽样以外,其他的抽样技巧都被严格限制.

## 2.3. 源能量-强度分布计算

### 2.3.1. 钚同位素及其衰变规律

MCNP4B 程序完成的是源粒子的输运计算,但是由于每种钚同位素的丰度和相应的  $\gamma$  射线强度有差异,作为计算源项,首先需要计算出钚同位素的每条  $\gamma$  射线的强度,建立能量-强度的源分布.钚同位素及  $^{241}\text{Pu}$  的子体  $^{241}\text{Am}$  和  $^{237}\text{U}$  在如图 1 所示的衰变过程中都有能量和强度各不相同的  $\gamma$  射线发出.图 1 中, sf 及其后的数字分别表示自发裂变及其分支比,  $\alpha$ ,  $\beta$  及其后的数字分别表示衰变类型及其分支比, a 和 d 分别表示半衰期单位.钚材料的属性主要通过测量  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  和  $^{241}\text{Pu}$  子体的  $\gamma$  特征峰获取,为此本工作主要对以上同位素的  $\gamma$  射线来源和强度进行分析.

钚同位素衰变过程中  $t$  时刻的单位质量核数满足下列公式:

$$N_j(t) = \frac{N_A}{M_j} e^{-\lambda_j(t-t_0)} f_j, \quad (8)$$

式中,  $N_j(t)$  为钚的同位素 ( $j = ^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) 在  $t$  时刻的单位质量核数;  $N_A$  为阿伏伽德罗常数,  $N_A = 6.023 \times 10^{23}$ ;  $M_j$  为钚的同位素的原子量 ( $M_j = 239, 240, 241$ );  $\lambda_j$  为钚的同位素的衰变常数;  $f_j$  为钚的同位素的单位质量含量;  $t_0$  为钚分离的参考时间.

$^{241}\text{Pu}$  的子体  $^{237}\text{U}$  和  $^{241}\text{Am}$  在  $t$  时刻单位质量的核数  $N_{237\text{U}}(t)$ ,  $N_{241\text{Am}}(t)$  由下列公式给出:

$$N_{237\text{U}}(t) = \frac{e^{-\lambda_{237\text{U}}(t-t_0)} - e^{-\lambda_{241\text{Pu}}(t-t_0)}}{\lambda_{241\text{Pu}} - \lambda_{237\text{U}}} \lambda_{241\text{Pu}} f_{237\text{U}} N_0^{241}, \quad (9)$$

$$N_{241\text{Am}}(t) = \frac{e^{-\lambda_{241\text{Am}}(t-t_0)} - e^{-\lambda_{241\text{Pu}}(t-t_0)}}{\lambda_{241\text{Pu}} - \lambda_{241\text{Am}}} \lambda_{241\text{Pu}} f_{241\text{Am}} N_0^{241}, \quad (10)$$

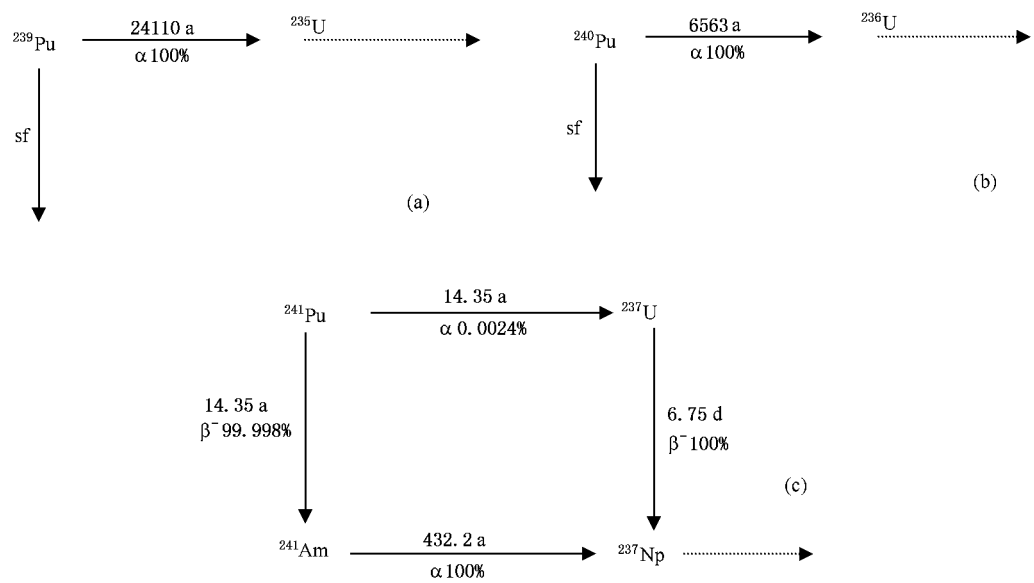


图 1 钚同位素衰变链 (a)  $^{239}\text{Pu}$  衰变链 (b)  $^{240}\text{Pu}$  衰变链 (c)  $^{241}\text{Pu}$  衰变链

式中,  $N_0^{241}$  为分离时  $^{241}\text{Pu}$  单位质量的核数;  $\lambda_{241\text{Pu}}$ ,  $\lambda_{237\text{U}}$  和  $\lambda_{241\text{Am}}$  分别为  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{U}$  和  $^{241}\text{Am}$  的衰变常数;  $f_{237\text{U}}$  和  $f_{241\text{Am}}$  分别为  $^{241}\text{Pu}$  衰变为  $^{237}\text{U}$  和  $^{241}\text{Am}$  的衰变份额。

2.3.2. 钚同位素的单位质量  $\gamma$  射线强度

$t$  时刻钚同位素及  $^{241}\text{Pu}$  的子体的  $\gamma$  射线强度为

$$A_k(t) = \sum_i P_k^i \lambda_k N_k(t), \tag{11}$$

式中,  $P_k^i$  为  $k$  核素第  $i$  条  $\gamma$  射线发射分支比 ( $k = ^{239}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu}, ^{241}\text{Pu}, ^{237}\text{U}$  和  $^{241}\text{Am}; i = 1, 2, \dots, N$ );  $\lambda_k$  为  $k$  核素的衰变常数;  $N_k(t)$  为  $k$  核素在  $t$  时刻单位质量的核数。

2.4. 计算参数

本文模拟计算钚体源样品中钚衰变链的同位素  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  及  $^{241}\text{Pu}$  的子体  $^{237}\text{U}$  和  $^{241}\text{Am}$  的  $\gamma$  射线能谱。在核弹头或屏蔽较厚的模型中, 由于屏蔽和自吸收的原因, 低能部分衰减比较严重, 从而将高能部分较弱的  $\gamma$  射线凸现出来, 因此在模拟计算中为了提高计算效率, 忽略了对低能部分的抽样, 只考虑 100 keV 以上的出射  $\gamma$  射线。

钚同位素及  $^{241}\text{Pu}$  的子体都具有较多的  $\gamma$  射线, 它们的分支比、半衰期等数据选自 LLNL 实验室报告<sup>[5]</sup>。

MCNP4B 程序提供 F8 计数类型输入卡用于计算脉冲高度分布, 然后可选用计数特殊处理卡对脉

冲能量分布进行高斯展宽, 计算能峰半高宽  $E_{\text{FWHM}}$  的公式<sup>[6]</sup>为

$$E_{\text{FWHM}} = a + \sqrt{b(E + cE^2)},$$

式中,  $E$  为  $\gamma$  射线能量(单位为 MeV);  $E_{\text{FWHM}}$  的单位为 MeV;  $a, b, c$  为系数,  $E_{\text{FWHM}}$  取决于探测器性能。我们通过对实验测到的  $E_{\text{FWHM}}$  进行曲线拟合, 获得了各个系数值。能谱的增益设定为每道 0.125 keV, 能谱偏置为 3.125 keV。

3. 计算模型和结果分析

3.1. 计算模型

为了验证计算的准确性和比较两种方法, 本文设计了两种计算模型。

模型 1 为半球壳模型。钚体源样品是金属半球壳。计算模型如图 2 所示, 沿钚半球壳的轴向正前方布置高纯锗探测器, 探测器前端面距离球心 1250 mm, 探测器四周及前端有一个铁的屏蔽罩, 厚度为 6.5 mm。

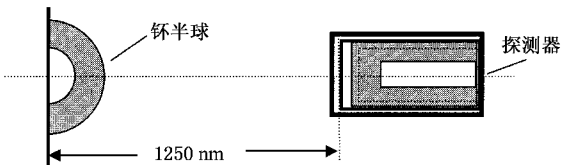


图 2 半球壳模型

模型 2 为 Steve Fetter 模型<sup>[7]</sup>. 计算模型如图 3 所示, 探测距离(从 Steve Fetter 模型的外表面到探测器窗口的距离)为 30 cm, 数据见表 1.

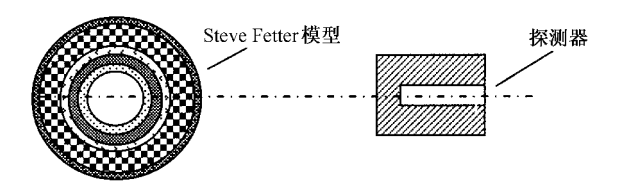


图 3 Steve Fetter 探测模型

探测器采用 ORTEC 公司的同轴型高纯锗探测器, 它的外壳是 1.27 mm 厚的铝壳, 灵敏区是外径为 52.6 mm, 长度为 67.7 mm 的高纯锗, 灵敏区中央为直径 9.1 mm, 深 55.0 mm 的空腔, 灵敏区与铝壳之间是 0.6 mm 厚的死层, 探测器前端铝壳距离前端死层为 0.3 mm, 中间为真空区.

采用直接和分步两种计算方法计算了模型 1 的  $\gamma$  能谱并进行了相应的实验验证. 计算模型 2 的目的是展示分步计算方法对于吸收强的大屏蔽系统能

表 1 Steve Fetter 模型参数

| 武器级钚/钨模型 |       |       | 武器级钚/铀模型 |       |       |
|----------|-------|-------|----------|-------|-------|
| 材 料      | 外径/mm | 重量/kg | 材 料      | 外径/cm | 重量/kg |
| 空腔       | 42.5  | 0     | 空腔       | 42.5  | 0     |
| 武器级钚     | 50    | 4     | 武器级钚     | 50    | 4     |
| 铍        | 70    | 2     | 铍        | 70    | 2     |
| 钨        | 100   | 53    | 贫化铀      | 100   | 52    |
| 高能炸药     | 200   | 56    | 高能炸药     | 200   | 56    |
| 铝        | 220   | 14    | 铝        | 220   | 14    |

谱计算的优越性.

3.2. 计算结果

计算中假定分离时钚同位素质量含量分别为某

一定值, 假定分离时间为 10 a, 探测时间 1000 s.

表 2 给出了用两种计算方法分别计算模型 1 中  $^{239}\text{Pu}$  的部分  $\gamma$  特征峰面积的结果, 并与实验测量值作了比较. 从比较结果可以看出, 直接和分步计算方

表 2 模型 1 中  $^{239}\text{Pu}$  部分  $\gamma$  特征峰面积比较

| 能量/MeV | 测量 $\gamma$ 强度/ $\text{s}^{-1}$ | 直接计算 $\gamma$ 强度/ $\text{s}^{-1}$ | 相对偏差/% | 分步计算 $\gamma$ 强度/ $\text{s}^{-1}$ | 相对偏差/% |
|--------|---------------------------------|-----------------------------------|--------|-----------------------------------|--------|
| 0.129  | 56906                           | 52689                             | 8.00   | 52401                             | 7.86   |
| 0.203  | 20982                           | 21754                             | 3.55   | 19836                             | 5.43   |
| 0.345  | 48873                           | 54226                             | 9.87   | —                                 | —      |
| 0.375  | 148346                          | 152047                            | 2.43   | 161760                            | 9.00   |
| 0.392  | 54040                           | 58757                             | 8.03   | —                                 | —      |
| 0.414  | 152051                          | 156987                            | 3.14   | 170951                            | 12.48  |
| 0.422  | 12410                           | 12995                             | 4.50   | —                                 | —      |
| 0.451  | 20496                           | 22535                             | 9.05   | 23136                             | 12.82  |
| 0.645  | 1886                            | 1980                              | 4.75   | 1923                              | 1.49   |
| 0.769  | 1435                            | 1575                              | 8.89   | 1490                              | 3.22   |

法与实验值的相对偏差均在 10% 左右(相对偏差包含了统计和计算偏差). 由此验证了两种计算方法的可靠性.

图 4 给出了模型 1 的计算和实验测量能谱. 从图 4 可以看出, 200 keV 以下由于本底影响大, 实验

测量能谱偏高, 200 keV 以上计算结果与实验测量能谱符合较好.

图 5 和图 6 分别给出了用两种方法计算 Steve Fetter 模型得到的模拟能谱.

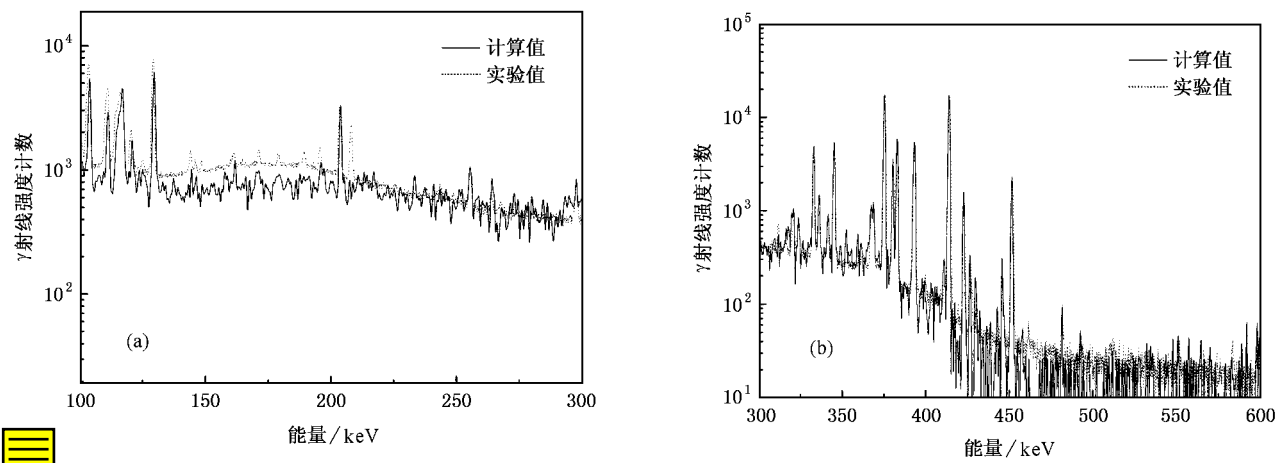


图4 钚半球壳的模拟能谱 (a) 100—300 keV 能区 (b) 300—600 keV 能区

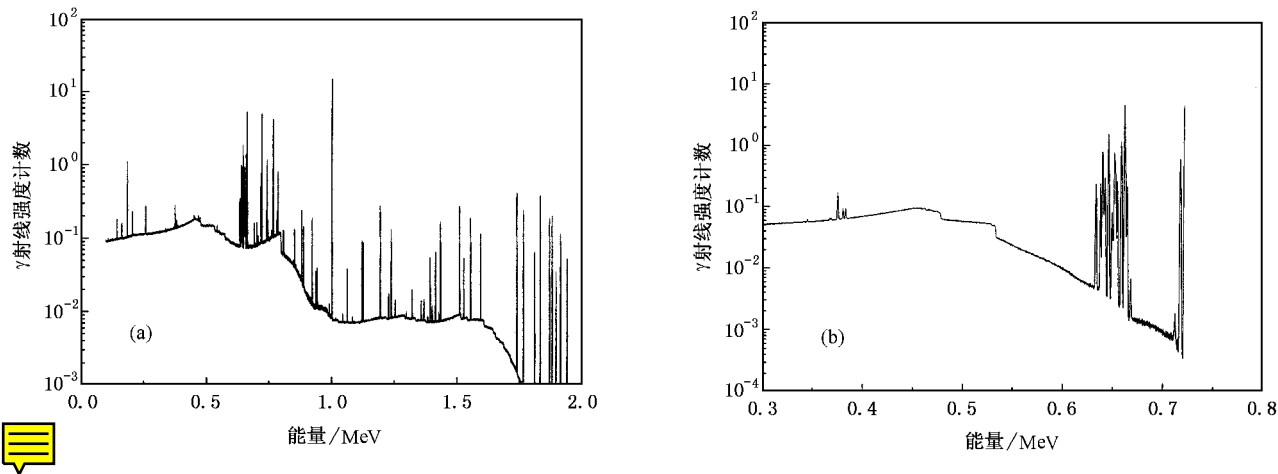


图5 Steve Fetter模型的分步计算结果 (a) 钚/钚模型 (b) 钚/钚模型

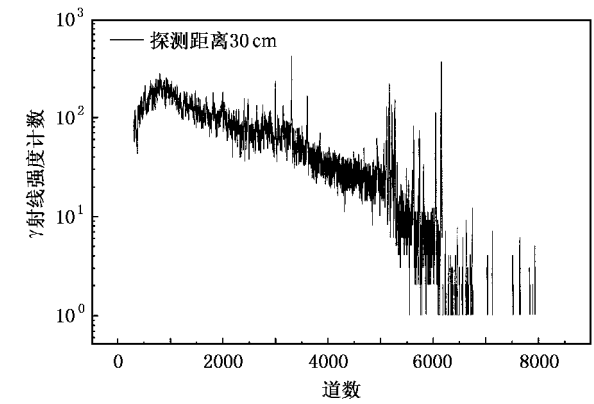


图6 Steve Fetter 模型(钚/钚模型)的直接计算结果

#### 4. 两种计算方法的比较

在计算模型 1 或类似的无屏蔽层体源样品时，

两种计算方法的效率差别不大,但是在计算屏蔽层多、吸收强的大体系(如模型 2 时),分步计算就体现出很大的优越性。

在用直接方法计算模型 2 时采用 MC 程序 EGSnrc.由于吸收强,对于 32 位计算机即使历史数达到运行上限(抽样数达到  $2.63 \times 10^9$  个),计算结果的精度也是难以接受的.为此采用以 12 台 Pentium IV 计算机组成集群的计算平台,做分段接续的并行运算.所谓“分段”是指按能区分段;“接续”是指当抽样粒子数超过普通计算机的极大数  $2.63 \times 10^9$  个时,输运程序可以自动产生另一组独立的抽样随机数序列,使得抽样粒子数不断地累加,直到追踪完足够多的粒子数.采用此方法可以大大提高计算的速度,使得依靠分段接续运算来提高计算精度的思想具有现实意义.在作模型 2 的武器级钚/钚模型计算中,抽样数达到  $7.1 \times 10^{11}$  时计算结果方始收敛,满足计算要求.由于耗时太大,本文只对武器级

钚/钨模型钚材料中含量较大的<sup>239</sup>Pu 特征峰作了计算. 分步计算则由于采用了一定的抽样技巧,只需使用一台 Pentium IV 计算机便能使模型 2 的计算结果很快收敛.表 3 给出了直接并行计算与分步计算耗时的比较.

表 3 直接计算与分步计算耗时的比较

| 计算<br>方法 | 直接计算                   | 分步计算                |
|----------|------------------------|---------------------|
|          | 使用 12 台 Pentium IV 计算机 | 使用单台 Pentium IV 计算机 |
| 耗时/min   | 3355                   | 1900                |

由表 3 可见,应用集群技术的直接计算方法为分步计算方法耗时量的 2 倍左右,如分配到单台机器其计算耗时是难以接受的,而且由于抽样样本数的限制,直接计算方法在利用单台微机计算如 Steve Fetter 模型的多层屏蔽、吸收强的大系统时遇到几乎难以克服的困难.本文提出的分步计算方法为解决

这种大系统问题的模拟计算提供了一种新的方法.

5. 结 论

分步计算方法通过对输运过程的分解,有效地使用了一些抽样技巧,使计算结果很快收敛.该方法步骤较多,需要熟悉粒子输运的中间过程,输入卡的描述比较繁琐,并且只适用于探测器正对放射源的探测问题,但是在解决多层屏蔽、吸收强的大系统问题时显示出很大的优越性,提供了一种新的模拟计算方法.

直接计算由于只能使用源偏倚抽样,计算效率低,而且对于大系统问题结果很难收敛.但是该算法不需过多了解输运的中间过程,计算过程简洁,适用于探测器与放射源任意方位的问题,在计算时间和抽样粒子允许的情况下可计算中小型系统的问题.

[ 1 ] Liu S P ,Hu G C ,Gong J *et al* 2001 *Acta Phys . Sin .* **50** 1405 ( in Chinese )[ 刘素萍、胡广春、龚 建等 2001 物理学报 **50** 1405 ]

[ 2 ] Xiong Z H ,Kang W ,Gong J *et al* 2003 *Acta Phys . Sin .* **52** 1 ( in Chinese )[ 熊宗华、亢 武、龚 建等 2003 物理学报 **52** 1 ]

[ 3 ] Wu J 1997 *Chin . J . Comput . Phys .* **14** 532 ( in Chinese )[ 伍 钧 1997 计算物理 **14** 532 ]

[ 4 ] Pei L C ,Zhang X Z 1980 *Application of Method of Monte-Carlo in Particle Transport* ( Beijing : Science Press ) pp386—387 ( in Chinese )[ 裴鹿成、张孝泽 1980 蒙特卡罗方法在粒子输运问题中的应用 ( 北京 : 科学出版社 ) ]第 386—387 页

[ 5 ] Gunnink R 1976 *Gamma Rays from the Plutonium Isotopes and Their Daughters* ( Livermore : Lawrence Livermore National Laboratory ) UCRL-52139

[ 6 ] Briesmeister J F 1997 *MCNP——A General Monte-Carlo N-Particle Transport Code , Version-4B* ( Los Alamos : Los Alamos National Laboratory ) LA-12625-M

[ 7 ] Fetter S 1990 *Reversing the Arms Race* ( New York : Gordon & Breach Science Publisher ) p267

# Monte-Carlo method in calculating the $\gamma$ spectrum of plutonium volume source

Hao Fan-Hua   Hu Guang-Chun   Liu Su-Ping   Gong Jian   Xiang Yong-Chun   Huang Rui-Liang

( *Institute of Nuclear Physics and Chemistry ,China Academy of Engineering Physics ,Mianyang 621900 ,China* )

Shi Xue-Ming   Wu Jun

( *Institute of Applied Physics and Computation Mathematics ,Beijing 100088 ,China* )

( Received 23 August 2004 ; revised manuscript received 16 March 2005 )

## Abstract

A multi-step Monte-Carlo method is established for calculating the  $\gamma$  spectrum of plutonium volume source. The  $\gamma$  spectra of a spherical plutonium source is calculated by using a multi-step and direct method, and compared with the experimental  $\gamma$  spectrum. The calculated results are in agreement with the experimental results within 10%. It is proven by the calculated result of Steve Fetter model that the multi-step calculation converges faster than the direct method in the calculation of the  $\gamma$  spectrum of plutonium volume source with shields.

**Keywords :** plutonium volume source , Monte-Carlo method ,  $\gamma$  spectrum , Steve Fetter model

**PACC :** 2930K , 2990 , 0270