



核科学与工程

基于 HI-13 串列加速器的中子俘获反应截面测量方法

张奇玮¹, 贺国珠¹, 栾广源¹, 程晶晶^{1,2}, 阮锡超¹, 朱兴华³

(1. 中国原子能科学研究院 核数据重点实验室, 北京 102413; 2. 南华大学 核科学技术学院, 湖南 衡阳 421001;
3. 华能山东石岛湾核电有限公司, 山东 荣成 264312)

摘 要: 利用 BaF₂ 晶体对 γ 射线探测效率高、时间分辨率好的特点, 研制了国内首套由 40 个 BaF₂ 探测器单元组成的 γ 全吸收型探测装置, 用于在线测量中子俘获反应截面。在 HI-13 串列加速器上建立 250~850 keV 的中子源, 其 0° 角的源强约为 5.09×10^6 n/(Sr·s), 使用 γ 全吸收型探测装置, 通过瞬发 γ 射线法测量了 ⁹³Nb、¹⁹⁷Au、^{nat}C 和空样品的实验数据。根据 BaF₂ 探测器信号的特征, 采用了基线补偿、软件阈值设置、时间窗限定、脉冲幅度积分增长率设置和快慢成分比设置等多种数字化波形分析方法, 剔除噪声信号以提高效应本底比。以 ¹⁹⁷Au 样品数据为标准, ^{nat}C 样品数据为样品相关性本底, 空样品数据为样品无关性本底, 采用相对测量法得到了 ⁹³Nb 的中子俘获反应截面实验数据。通过与 ENDF 评价库数据的比较, 验证了测量装置和技术方法的可行性。

关键词: γ 全吸收型探测装置; 中子俘获反应截面; 中子源; 波形分析

中图分类号: O571.5

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202133.200220

Cross section measurement of neutron capture reaction based on HI-13 tandem accelerator

Zhang Qiwei¹, He Guozhu¹, Luan Guangyuan¹, Chen Pinjing^{1,2}, Ruan Xichao¹, Zhu Xinghua³

(1. Science and Technology on Nuclear Data Laboratory, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

2. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China;

3. Hua'neng Shandong Shidao Bay Nuclear Power Co.Ltd, Rongcheng 264312, China)

Abstract: The first gamma-ray total absorption facility composed of 40 BaF₂ detector units has been constructed in China. Utilizing the property of high detection efficiency and good time resolution for gamma rays of BaF₂ crystal, the facility will be used to measure on-line the cross section of neutron capture reaction. Neutron source of 250 keV~850 keV was set up on the HI-13 tandem accelerator, its source intensity at 0° was about 5.09×10^6 n/(Sr·s). The experimental data of ⁹³Nb, ¹⁹⁷Au, ^{nat}C and empty samples were measured by the prompt gamma ray method with gamma-ray total absorption facility. According to the characteristics of BaF₂ detector signal, a variety of digital waveform analysis methods were adopted to eliminate noise signal as much as possible to improve the effect background ratio, such as baseline compensation, software threshold setting, time window limitation, pulse amplitude integral growth rate setting and fast slow component ratio setting. The experimental data of ⁹³Nb neutron capture reaction cross section was obtained by relative measurement method. The data of ¹⁹⁷Au sample was the standard, the data of ^{nat}C sample was the sample correlation background, and the data of empty sample was the sample independence background. The feasibility of the measurement facility and technical method was verified by comparing with the data of ENDF evaluation library.

Key words: gamma-ray total absorption facility; cross section of neutron capture reaction; neutron source; waveform analysis

* 收稿日期: 2020-07-28; 修订日期: 2021-01-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(11605294, 11675268, 11790321, 11975317)

作者简介: 张奇玮(1982—), 男, 博士, 副研究员, 从事核数据测量研究; zqwvictor@126.com。

在核天体物理中,慢中子俘获过程(s-过程)的理论计算需要用到高精度的中子俘获反应截面数据。在先进核能研究中,快中子反应堆、加速器驱动次临界洁净核能系统、钚-铀混合燃料反应堆的设计对中子俘获反应截面数据也有重要需求。这些需求主要集中在 keV 能区包括共振能区的可裂变核、串级反应核、裂变产物核的中子俘获反应截面数据,测量核素从稳定核变成了不稳定核,从而提高了精确测量的难度。

国际上,德国 F.Z.K. Karlsruhe 在 20 世纪 90 年代首先建成了 $4\pi\text{BaF}_2$ 探测器^[1],探测器球壳的内半径 10 cm,厚度 15 cm,由 40 块 BaF_2 晶体组成。单个探测器的能量分辨率为 12.5%~16%(662 keV),时间分辨率小于 1 ns,中子通过 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反应产生,质子束的脉冲频率为 250 kHz,脉冲宽度为 0.7 ns,中子能量为 5~200 keV,中子飞行距离约 1 m。2003 年欧洲核子中心(CERN)在 n_TOF 的 EAR1 终端建造了 TAC^[2],采用了与 Karlsruhe 相同的设计,也是由 40 块 BaF_2 晶体组成 4π 全吸收型探测器,单个探测器性能也非常接近,脉冲频率 4 Hz,中子能量为 1 eV~250 MeV,飞行距离为 185 m。随后美国 LANSCE 建成了由 160 块 BaF_2 晶体组成的内半径为 17 cm、厚度为 15 cm 的 DANCE^[3],脉冲频率为 20 Hz,中子能量为 10^{-3} eV~500 keV,飞行距离为 20 m。这三套探测装置都是利用瞬发 γ 射线法测量中子俘获反应截面数据,取得了一些高水平的成果^[4-6]。我国目前在这方面的测量技术还处于起步阶段,特别缺少 keV 能区不稳定核素的中子俘获反应截面的实验测量技术和数据分析方法。为了能够填补这方面的空白,中国原子能科学研究院核数据重点实验室研制了一套 γ 全吸收型探测装置(GTAF)^[7],在 HI-13 串列加速器上建立了白光中子源,利用瞬发 γ 射线法,相对测量得到了 ${}^{93}\text{Nb}$ 的中子俘获反应截面,并与 ENDF 评价库的数据进行了对比。

1 γ 全吸收型 BaF_2 探测装置 (GTAF)

GTAF 的主体探测器与 Karlsruhe 和 CERN 的装置相似,是由 12 个五棱锥台和 28 个六棱锥台形状的 BaF_2 晶体(见图 1)组成的一个内半径为 10 cm、厚度为 15 cm 的探测器球壳^[8]。每个探测器单元对于球壳的中心点具有几乎相同的立体角,共覆盖了 95.2% 的立体角。

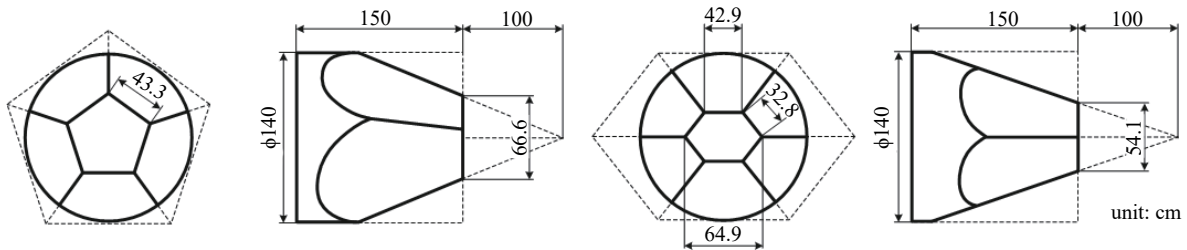


Fig. 1 Shape of the pentagonal and hexagonal BaF_2 crystal for GTAF

图 1 GTAF 的五棱与六棱 BaF_2 晶体形状

GTAF 的实验原理如图 2 所示,中子源产生的脉冲化中子束经过屏蔽准直体后^[9],进入探测器球壳中心,与待测样品发生中子俘获反应即 (n, γ) 反应,生成处于激发态的复合核。复合核通过出射瞬发级联 γ 射线的方式退激至基态,级联 γ 射线的能量加和等于激发能^[10]。如果周围的 BaF_2 探测器单元捕捉到级联 γ 射线,则记录为中子俘获反应事件,再通过飞行时间法确定发生俘获反应中子的能量。锂玻璃探测器放置在 GTAF 主体探测器后端,也采用飞行时间法监测中子注量和能谱^[11]。通过上述物理量的测量,可得出待测样品的 (n, γ) 反应截面数据。中子捕集器用于捕获未发生反应的中子,以降低散射中子产生的本底,提高实验的效应本底比。

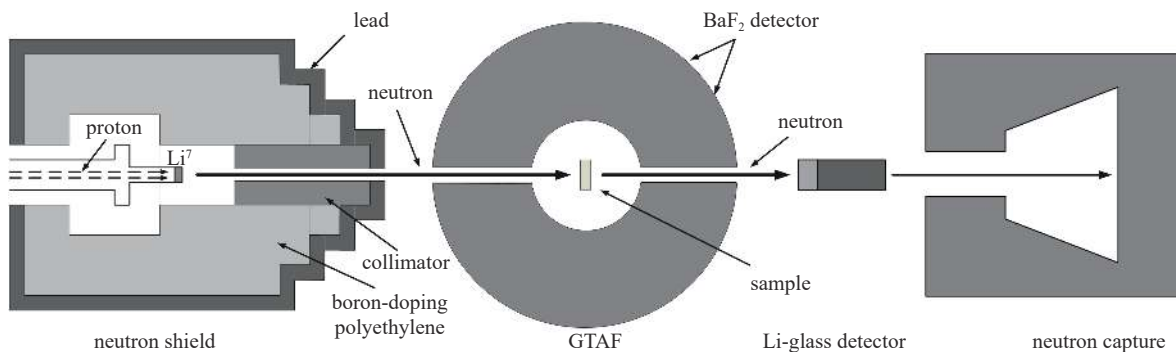


Fig. 2 Experimental diagram of measurement of neutron capture cross section based on GTAF

图 2 GTAF 测量中子俘获反应截面实验原理图

2 中子源

2.1 中子源的建立

国内在 keV 能区没有合适的白光中子源,本研究利用中国原子能科学研究院的 HI-13 串列加速器,使用脉冲化的质子束,通过 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反应,建立能量范围在 250~850 keV 的中子源。HI-13 串列加速器的主频为 6 MHz,在线实验采用二分频(3 MHz),脉冲宽度 2 ns,平均束流强度约为 $1\ \mu\text{A}$,稳定运行的最低端电压是 3 MV,而 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反应的阈值为 1.881 MeV,在阈值附近中子产额最大。根据 STRIM 程序的计算结果,3 MeV 的质子束穿过 300 μm 的降能片(Al 片)后能量会降低至 2 MeV 以下,因此本研究设计了 300 μm 的 Al 降能片,紧贴在 ${}^7\text{Li}$ 靶(靶厚:1 mm)前端,用于提高中子产额。

2.2 中子源强和能谱的测量

建立中子源后,使用同一个锂玻璃探测器分别在两个位置测量中子源强和能谱:一是屏蔽准直体的出口处,距离中子源 0.55 m;二是在线测量实验时用于监测中子束流的位置,位于 GTAF 主体探测器后端,距离中子源 1.59 m。图 3 是锂玻璃探测器在 0.55 m 处测量得到的飞行时间和脉冲幅度积分值的二维谱,可明显区分出中子和 γ 射线,图中红线圈出的部分是 γ 射线本底。去除 γ 本底后,飞行时间谱结合锂玻璃探测器的探测效率^[12]就得到中子源的能谱,如图 4 所示。

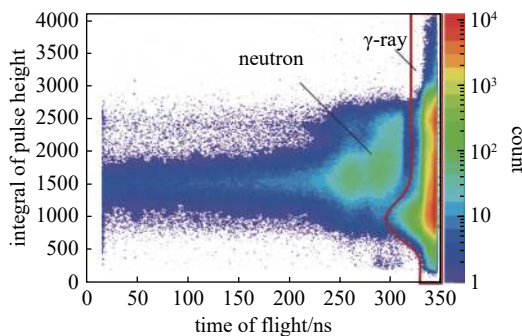


Fig. 3 Time of flight versus integral of pulse height spectrum from neutron source

图 3 中子源的飞行时间与脉冲幅度积分值的二维谱

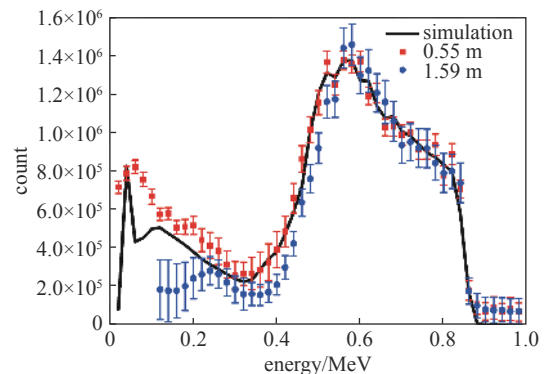


Fig. 4 Comparison of energy spectrum of neutron source

图 4 中子源能谱比较

图 4 中的模拟结果是由 TARGET 蒙特卡罗程序计算得到的,以距离中子源 0.55 m 处测量结果的峰值计数作为归一化标准,而距离中子源 1.59 m 处的测量结果以束流积分和立体角做归一化。从图中可以看到,在 250~850 keV 的范围内,三者吻合较好。中子源在 0° 角处的源强大约为 $5.09 \times 10^6\ \text{n}/(\text{Sr}\cdot\text{s})$,0.55 m 处的中子注量率为 $1.68 \times 10^3\ \text{n}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$,1.59 m 处的中子注量率为 $0.20 \times 10^3\ \text{n}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$ 。

3 数字化信号的波形分析方法

GTAf 的触发判选电路包括三个判选条件:(1)单通道过阈触发(阈值为 -20 mV);(2) γ 射线多重性判选。 γ 射线多重性 M_γ 是指在同一中子俘获事件中,探测到 γ 射线的 BaF_2 探测器单元的个数。具体的判选原理是:如果有两个或以上的信号在符合时间(40 ns)内,被不同的 BaF_2 探测器单元探测到,就满足 $M_\gamma \geq 2$ 的判选条件。当测量单个探测器单元能谱时,设置 $M_\gamma \geq 1$,此时多重性判选不发挥作用,所有单通道过阈触发都能满足多重性判选;测量加和能谱以及在线测量实验时,设置 $M_\gamma \geq 2$,可以降低级联 γ 射线与本底信号偶然符合的概率,提高效率本底比;(3)40 路信号能量加和阈触发(阈值为 1 MeV)^[13]。数据获取系统利用高速数据采集卡(FlashADC)对满足上述三个触发条件的信号波形实现全数字化采集^[14],单个波形的采样长度为 2 μs 。为了分析信号特征,在 GTAf 主体探测器的球壳中心放置 ${}^{137}\text{Cs}$ 和 ${}^{60}\text{Co}$ 源,通过数据获取系统采集单个 BaF_2 探测器单元输出的信号波形^[15]。

如图 5 所示,GTAF 的信号主要有三种类型:(1) γ 射线,

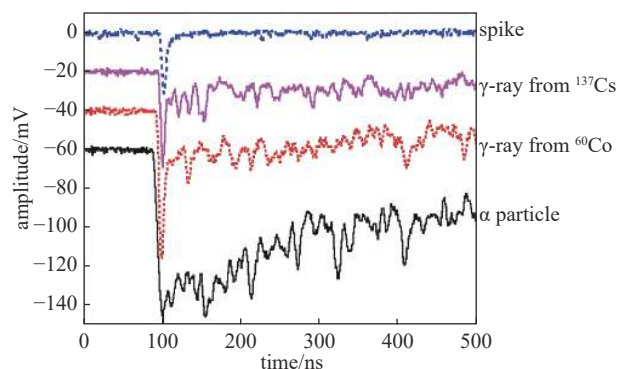


Fig. 5 Digital waveforms of signals from DAQ

图 5 数据获取系统采集到的数字化信号波形

是需要测量的有效信号；(2) α 粒子，由于 Ba 和 Ra 等元素在自然界共生存在，造成 BaF₂ 晶体包含有 Ra 的同位素，能够产生 α 粒子的天然放射性本底，需要剔除；(3) 噪声信号，来源于光电倍增管的暗电流和其它电子学噪声，需要剔除。这三种类型的信号波形有显著的差别。 γ 射线有明显的快成分，之后信号幅度迅速下降，与慢成分重叠在一起； α 粒子几乎没有快成分，只有慢成分，随着时间的推移，信号幅度缓慢下降；噪声信号正好相反，几乎没有慢成分，信号幅度快速升高之后又急剧下降，回落到基线位置，与文献 [16] 中提到的信号特征一致。可见，获取系统采集到的脉冲波形真实反映了信号的特点，为波形分析和数据处理打下基础。针对不同信号脉冲波形的特点，本研究采用以下方法进行波形分析。

3.1 基线补偿

基线漂移是数字化获取系统的常见问题，会对脉冲幅度的计算产生影响。因此把采样的起始时间设定在触发位置(信号过阈时间^[17])前 100 ns，计算开始采样 50 ns 时间内幅度的平均值，作为基线补偿量。信号的实际波形等于所有采样点的幅度减去基线补偿量。这种波形分析的方法可以压低噪声信号，但对能量高于 500 keV 的 γ 射线几乎没有影响^[18]。

3.2 软件阈值设置

在数据获取系统中，通过设置 BaF₂ 探测器单元的单通道触发阈值，可以有效压低噪声信号，同时为了尽可能地保留低能 γ 射线，减少对真实俘获事件的影响，触发阈值又不能设置过高。为了兼顾上述两个因素，触发判选电路设置的触发阈为 -20 mV。在波形分析的过程中，由于原始的波形数据已经保存下来，可以根据信号的实际脉冲波形，再设定一个软件阈值，以期得到更好的数据处理结果。波形分析的结果表明：软件阈值设置为 -25 mV 以上时，¹³⁷Cs 全能峰(0.662 MeV)的计数会受到影响，⁶⁰Co 的康普顿平台也下降很多，因此软件阈值选择为 -25 mV，此时噪声信号明显降低。

3.3 时间窗限定

理论上中子俘获反应产生的各条级联 γ 射线，应该同时被不同的 BaF₂ 探测器单元通过数据获取系统采集到，所有信号过阈时间为采样开始后 100 ns。实际上探测器单元和数据获取系统对级联 γ 射线的响应，存在一定的时间范围(时间窗)。数据处理过程会记录在限定时间窗内到达探测器单元的信号，而时间窗外到达的信号会被剔除，这样就降低了级联 γ 射线与噪声信号、 α 粒子偶然符合的概率。但如果时间窗限定得太窄，不同探测器单元时间性能的差异又会造成级联 γ 射线的丢失。因此根据波形分析的结果，时间窗的选定范围是 80~120 ns。

3.4 脉冲幅度积分增长率

前文提到噪声信号没有慢成分，信号幅度在快速升高几 ns 后，急剧下降，回落到基线位置。针对这个特点，定义每个信号波形的脉冲幅度积分增长率

$$R_1 = \frac{I_s}{I_f} \quad (1)$$

式中： I_s 是 10~40 ns 的脉冲幅度积分值， I_f 是 0~10 ns 的脉冲幅度积分值。测量¹³⁷Cs 和⁶⁰Co 源的单个探测器单元能谱，得到二维谱(图 6)，其中可明显看到¹³⁷Cs 源的特征 γ 射线(0.662 MeV)的全能峰以及⁶⁰Co 源的两条级联 γ 射线(1.17/1.33 MeV)的全能峰。同时设定能量在 0~0.1 MeV 之间， R_1 在 0.12~0.18 的区域内的所有信号为噪声信号，可在数据处理过程中去除。

3.5 快慢成分比

γ 射线的快成分比例较大，而 α 粒子的慢成分比较明显。根据这一特点，定义每个信号波形的快成分与总成分比值 $K_{f/t}$

$$K_{f/t} = \frac{I_f}{I_t} \quad (2)$$

式中： I_t 是 0~70 ns 的脉冲幅度积分值。

图 7 所示的单个探测器单元能谱的二维谱中， α 粒子和 γ 射线可以明显的区分出来，设定能量在 1.4~3.4 MeV 之间， K_t 在 0.06~0.14 的区域内的信号为 α 粒子，可在数据处理中剔除。

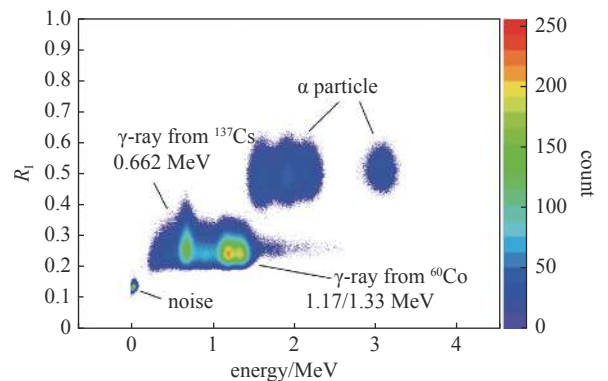


Fig. 6 Energy versus rate of increase of pulse height integral spectrum

图 6 能量与脉冲幅度积分增长率的二维谱

4 离线测量的数据处理结果

4.1 BaF₂ 探测器单元能谱的数据处理结果

图 8 是依次运用上述的各种波形分析方法, 处理得到的单个 BaF₂ 探测器单元测量¹³⁷Cs 和⁶⁰Co 的能谱。与原始数据相比,¹³⁷Cs 全能峰的能量分辨率从 18.2% 提高到了 17.9%; 合并在一起的⁶⁰Co 全能峰的能量分辨率从 17.6% 提高到了 17.0%; α 粒子和噪声信号的计数明显降低。

4.2 γ 多重性的数据处理结果

γ 多重性是指中子俘获反应发生后, 探测到级联 γ 射线的探测器单元的个数, 它是非常重要的参数, 可用于本底的剔除以及实验结果的修正。在测量⁶⁰Co 的加和能谱时, 由于存在两条级联 γ 射线, γ 多重性的理论值应该为 2。在实际测量中, 由于 γ 射线与 α 粒子、噪声信号的偶然符合, 会使 γ 多重性大大增加。基于上述讨论, 应用波形分析的方法对⁶⁰Co 源的 γ 多重性进行修正。如图 9 所示, 修正后的 γ 多重性 > 2 的事件明显减少, 分布谱中最可几值为 2, 与理论值吻合。

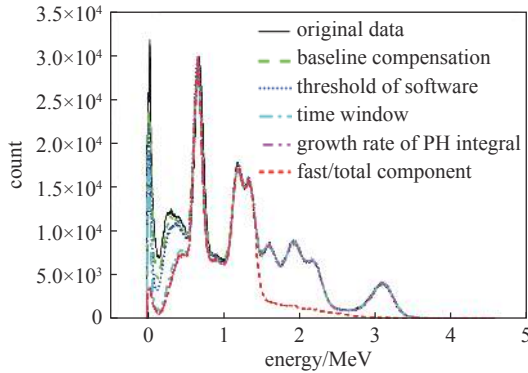


Fig. 8 Comparison with original energy spectrum and analytic results of BaF₂ detector module

图 8 BaF₂ 探测器单元能谱的原始数据与处理结果的比较

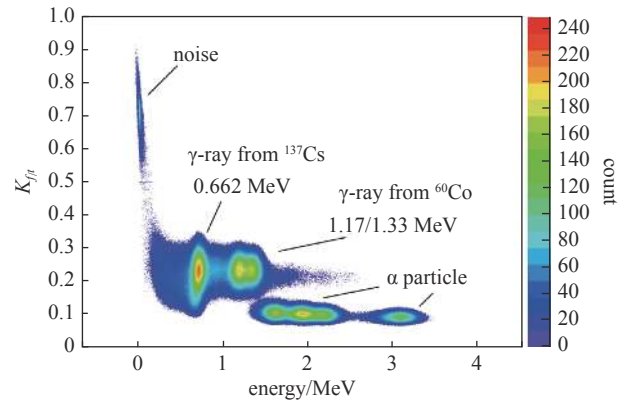


Fig. 7 Energy versus ratio of fast to total component spectrum

图 7 能量与快成分/总成分的二维谱

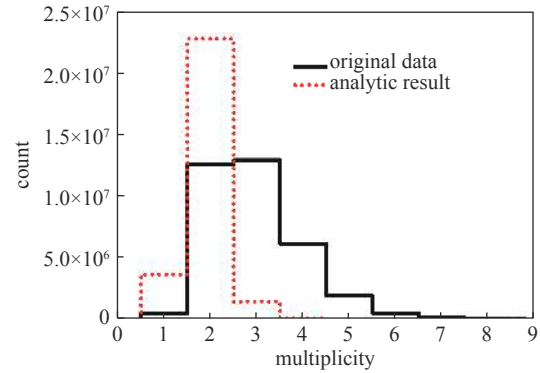


Fig. 9 Comparison with original data and analytic results of γ multiplicity

图 9 γ 多重性的原始数据与处理结果的比较

5 中子俘获反应截面在线实验测量

绝对法测量中子俘获反应截面的计算公式如下^[19]

$$\sigma_{n,\gamma} = [S - B] / [\varepsilon N \Phi_n] \quad (3)$$

式中: $\sigma_{n,\gamma}$ 表示俘获反应截面; S 和 B 分别表示待测样品的总计数率和本底计数率; ε 表示探测效率; N 表示样品核子数; Φ_n 表示样品上的中子注量率。由于中子源源强较低, 锂玻璃探测器监测的中子注量率 Φ_n 存在较大的不确定度, 同时探测器没有完全覆盖 4π 立体角, 探测效率 ε 很难通过直接测量的方法获得。因为实验测量了 GTAF 对⁶⁰Co 的探测效率, 与 Geant4(版本 10.4) 的模拟结果吻合较好, 所以待测样品的探测效率 ε 使用 Geant4 的模拟结果, 这样会带入较大的不确定度。

相对法(n, γ) 反应截面的计算公式如下

$$\sigma_m = [\sigma_s E_m \varepsilon_s N_s \Phi] / [E_s \varepsilon_m N_m] \quad (4)$$

式中: σ_m 表示待测样品的中子俘获反应截面; σ_s 表示标准截面; E_m 、 E_s 分别表示扣除本底后待测样品和标准样品的效应计数率; ε_m 、 ε_s 是探测效率; N_m 、 N_s 是样品核子数; Φ 表示标准样品与待测样品的中子注量率归一化因子, 可以通过测量精度较高的加速器束流积分值计算得到。采用相对法测量能够减小模拟得到的探测效率和绝对测量得到的中子注量率引起的系统误差, 提高截面数据的精度。因此本研究在建立了上述实验条件后, 利用 GTAF 开展相对法测量⁹³Nb 中子俘获反应截面的实验, 以¹⁹⁷Au 作为标准样品, 同时测量空样品和天然 C 样品的数据作为本底。样品处于 GTAF 球壳中心, 距离中子源 1.05 m, 具体参数如表 1 所示。

表 1 在线实验样品参数
Table 1 Sample parameter of on-line experiment

sample	density/(g·cm ⁻³)	diameter/mm	thickness/mm	purity/%	measure time/min
⁹³ Nb	8.57	20	1	99.99	573
¹⁹⁷ Au	19.32	20	1	99.99	664
^{nat} C	2.3	20	1.5	99.99	626
blank					288

5.1 瞬发 γ 射线的加和能谱与飞行时间谱

在线测量中子俘获反应截面时, GTAF 测量到的原始波形数据通过数据获取系统存储下来, 经过波形分析和数据处理得到样品的加和能谱和中子飞行时间谱。根据 Geant4(版本 10.4)的模拟结果(设置单个 BaF₂ 探测器单元的能量分辨率为 25%), 样品发生中子俘获反应的加和能量应该大于 2.5 MeV。

图 10 展示了待测样品加和能谱的原始数据和数据处理后的结果, 能量小于 2.5 MeV 的计数应该是本底, 同时在数据处理方法中增加了 γ 多重性的处理条件, 具体的方法是分析每一次事件的数据, 如果探测到信号的探测器单元的个数满足 γ 多重性条件, 就作为真实的中子俘获事件保留下来, 不满足条件的事件去除掉。可见随着 γ 多重性的增加, 偶然符合产生的本底明显降低, 同时中子俘获事件的计数也会减少。本研究选择 γ 多重性 ≥ 2 的处理条件, 尽可能保留中子俘获事件的计数。

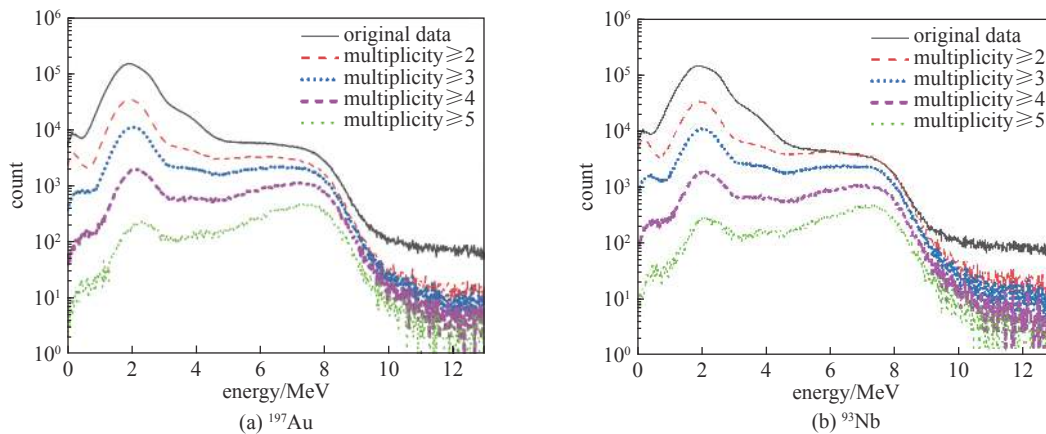


Fig. 10 Comparison with original data and analytic results of sum energy spectrum

图 10 加和能谱的原始数据与数据处理结果的比较

为了扣除本底的需要, 除了待测样品的数据外, 还需要测量空样品和天然 C 样品的数据。其中, 通过分析处理空样品的数据可以得到样品无关性本底, 而天然 C 样品几乎不发生中子俘获反应, 分析处理它的数据可得到由样品散射中子产生的样品相关性本底。

如图 11 所示, 样品的加和能谱减去空样品和天然 C 样品结合的本底谱, 就得到样品的效应谱, 以测量 ¹⁹⁷Au 样品时的束流积分值作为归一化标准。¹⁹⁷Au 样品的中子结合能为 6.5 MeV, 模拟得到的加和能谱范围是 2.5~8.1 MeV, ⁹³Nb 样品的中子结合能为 7.2 MeV, 模拟的能谱范围是 2.8~9 MeV。从图 11 中可以看到, 实验测量的效应谱能量大于 2.5 MeV, 与 Geant4 的模拟结果相吻合, 加和能量高于模拟结果的事件可能是由本底信号与真实俘获事件偶然符合产生的。

根据上文的讨论, 对实验数据重新设置了 γ 多重性 ≥ 2 , 加和能谱 > 2.5 MeV 的处理条件, 反演得到样品与本底的飞行时间谱(见图 12), 以测量 ¹⁹⁷Au 样品时的束流积分值作为归一化标准。图中左边的第一个峰是由质子与 ⁷Li 靶发生反应产生的 γ -flash 引起的, 因此发生俘获反应的中子飞行时间 T_n 由下式得到

$$T_n = (T_{\gamma n} - T_{\gamma f}) + L_0/c \quad (5)$$

式中: $T_{\gamma n}$ 是俘获反应发出的级联 γ 射线到达探测器的时间; $T_{\gamma f}$ 是 γ -flash 到达探测器的时间, 取值为高斯拟合的峰值(mean); L_0 是 γ -flash 从中子源到 BaF₂ 探测器单元的距离, 近似等于样品处的中子飞行距离 1.05 m; c 代表光速。发生俘获反应的入射中子能量 E_n 存在如下关系

$$E_n = (72.2977 \times L/T_n)^2 \quad (6)$$

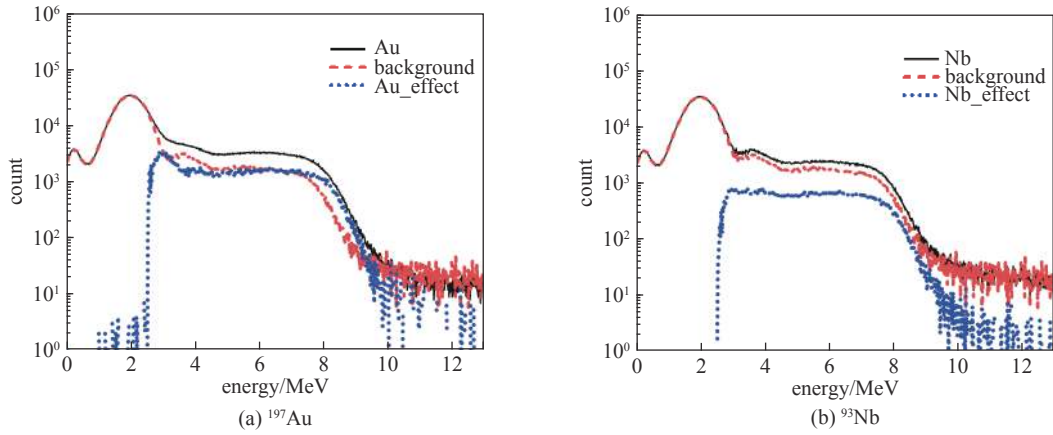


Fig. 11 Sum energy spectrum of neutron capture reaction

图 11 中子俘获反应的加和能谱

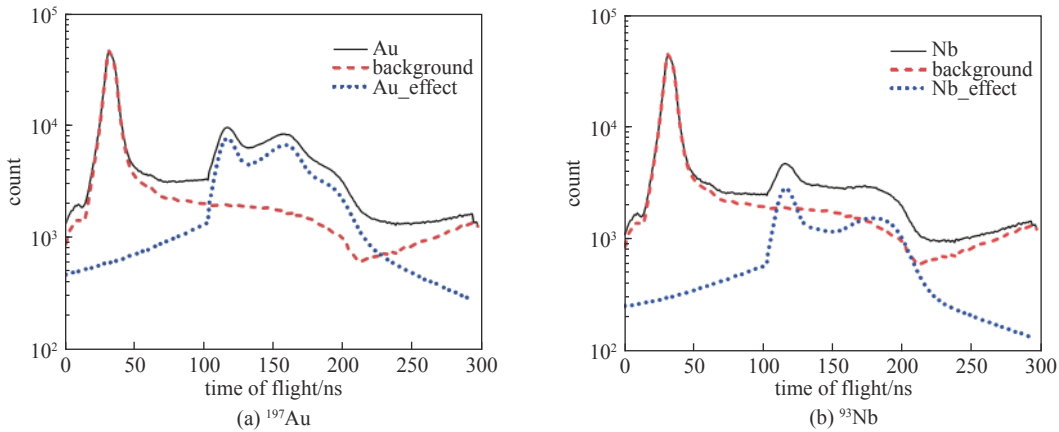


Fig. 12 Effect time of flight (TOF) spectrum of neutron capture reaction

图 12 中子俘获反应飞行时间效应谱

式中: L 是样品处中子飞行距离 1.05 m。

5.2 ^{93}Nb 中子俘获反应截面的初步结果

本文利用样品的飞行时间效应谱,通过公式(5)把飞行时间转换为入射中子能量,再结合实验数据和 ^{197}Au 的标准截面数据(ENDF/B-VIII.0数据库),使用相对测量法公式(4),得到250~800 keV能区内 ^{93}Nb 中子俘获反应截面的实验数据(如图13所示),为了降低统计不确定度,数据处理选取了较大的能量间隔(见表2)。

图13中 ^{93}Nb 中子俘获反应截面的实验测量值明显低于ENDF/B-VIII.0数据库的结果,但趋势保持一致,数据不确定度较大,分析原因如下:(1)基于串联加速器建立的中子源强较弱,同时为满足飞行时间方法的要求,加速器的脉冲频率又设置为二频(3 MHz),进一步减少了质子流强,影响了中子注量率,从而降低了中子俘获事件的计数,增加了待测样品的统计不确定度;(2)触发判选电路的处理能力不足,本底造成的误触发过大。现有实验条件下,理论估算中子俘获事件发生的概率为几个/s,而在线实验时触发数达到了 $10^3/\text{s}$ 。过多的误触发造成数据获取系统的死时间过大,丢失了接近60%的数据,极大增加了样品的统计不确定度;(3)只测量天然C样品和空样品进行本底的扣除,并没有细致考虑其它本底来源,例如,中子束流内包含的 γ 射线,被样品散射的中子在周围探测器和支架材料上形成的本底,实验室的环境本底等,这部分本底带入了5%的不确定度;(4)探测器的时间分辨以及飞行距离的偏差,使得中子能量在不同能量间隔内的不确定度为

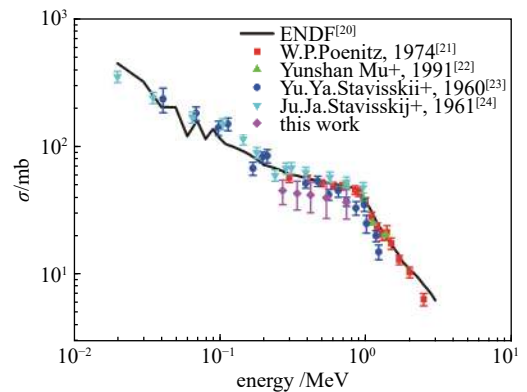


Fig. 13 Measurement results of ^{93}Nb neutron capture reaction cross section

图 13 ^{93}Nb 中子俘获反应截面测量结果

表 2 在线实验测量结果

Table 2 Measurement results of on line experiment

energy bin/MeV	cross section/mb	energy resolution/%	uncertainty/%
0.249-0.302	45.14	6.37	22.3
0.303-0.374	42.93	7.06	25.8
0.375-0.475	41.68	7.91	27.3
0.476-0.624	39.64	8.99	30.6
0.625-0.857	36.55	10.43	33.6

12.8%~20.8%。

其它来源的不确定度见表 3。

表 3 不确定度分析

Table 3 Analysis of uncertainties

source of uncertainties	statistical uncertainty of ^{93}Nb	statistical uncertainty of ^{197}Au	statistical uncertainty of ^{12}C	statistical uncertainty of blank	normalization of beam integral
uncertainty/%	10~15	7~10	10~15	7~10	3
source of uncertainties	detection efficiency	other backgrounds	neutron energy	standard cross section of ^{197}Au	total
uncertainty/%	1	5	12.8~20.8	1~4	22.3~33.6

6 结 论

中国原子能科学研究院核数据重点实验室采用 40 块 BaF_2 探测器单元, 建造了国内首台 γ 全吸收型探测装置 GTAF, 应用瞬发 γ 射线法测量中子俘获反应截面。同时在 HI-13 串行加速器上, 利用 $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ 反应建立了 250~850 keV 的中子源, 其 0° 角的中子源强约为 $5.09 \times 10^6 \text{ n}/(\text{Sr}\cdot\text{s})$ 。利用此中子源, GTAF 装置使用相对法在线测量了 ^{93}Nb 的中子俘获反应截面(以 ^{197}Au 为标准), 数据不确定度为 22.3%~33.6%。通过实验数据与 ENDF 评价库的比较可以看到, 本研究建立的中子俘获反应截面在线测量实验方法是可行的, 但由于统计不确定度过大, 影响了截面数据的精度。下一步的工作主要从几方面展开: (1) 升级触发判选电路, 在线测量时直接应用上述的波形分析方法, 尽量减少本底引起的误触发; (2) 优化数据获取系统, 提高数据传输存储的能力, 降低死时间; (3) 仔细分析不同本底的来源, 通过测量与蒙特卡罗模拟相结合的办法, 扣除本底的影响。

中国散裂中子源(CSNS)的反角白光中子源已于 2017 年建成出束, 可提供高强度宽能域的脉冲中子束, 实验终端 2 的中子飞行距离达到了 70 m 以上, 结合探测器的时间分辨, 估算出对于 1 MeV 以下能量的中子, 其中子能量不确定度小于 1%; 实验终端 2 的中子注量率达到了 $7.03 \times 10^6 \text{ n}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$ ^[25], 有效增加中子俘获事件率, 待测样品的统计不确定度可以降低到 1% 以内。因此, 未来 GTAF 装置会搬迁到 CSNS 的反角白光中子源上, 利用本研究建立的测量方法, 开展中子俘获反应截面的在线实验测量, 期望获得高精度的截面数据。

参 考 文 献:

- [1] Plag R, Heil M, Kappeler F, et al. An independent measurement of the $^{12}\text{C}(\alpha, \gamma)^{16}\text{O}$ cross section with the Karlsruhe $4\pi \text{ BaF}_2$ detector[J]. *Nuclear Physics A*, 2005, 758: 415-418.
- [2] Guerrero C, Abbondanno U, Aerts G, et al. The n_TOF Total Absorption Calorimeter for neutron capture measurements at CERN[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2009, 608: 424-433.
- [3] Reifarth R, Esch E I, Alpizar-Vicente A, et al. (n, γ) measurements on radioactive isotopes with DANCE[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2005, 241: 176-179.
- [4] Colonna N, Abbondanno U, Aerts G, et al. Neutron cross-sections for next generation reactors: New data from n_TOF[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2010, 68: 643-646.
- [5] Belloni F, Calviani M, Colonna N, et al. Measurement of the neutron-induced fission crosssection of ^{241}Am at the time-of-flight facility n_TOF[J]. *European Physical Journal A*, 2013, 49: 49-54.
- [6] Jandel M, Bredeweg TA, Bond EM, et al. New precision measurements of the $^{235}\text{U}(n, \gamma)$ cross section[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109: 202506.
- [7] Zhong Qiping, Zhou Zuying, Tang Hongqing, et al. New detector system to measure (n, γ) reaction cross section precisely in China[J]. *Chinese Physics C*, 2008, 32(S2): 102-105.
- [8] 马霄云, 仲启平, 周祖英, 等. 大体积氟化钡的性能测试[J]. *原子能科学技术*, 2009, 43(2): 180-184. (Ma Xiaoyun, Zhong Qiping, Zhou Zuying, et al.

- Performance test of large BaF₂ detector[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2009, 43(2): 180-184
- [9] 黄兴, 贺国珠, 程晶晶, 等. (n, γ)反应实验研究中的中子屏蔽设计[J]. *原子核物理评论*, 2015, 32(2): 208-211. (Huang Xing, He Guozhu, Chen Pingjing, et al. Neutron shielding design for experiment research of (n, γ) reaction[J]. *Nuclear Physics Review*, 2015, 32(2): 208-211)
- [10] 贺国珠. (n, γ)反应截面测量用4 π BaF₂闪烁体探测器研制[D]. 兰州: 兰州大学, 2006: 17-19. (He Guozhu. The Development of a 4 π BaF₂ Scintillator detector used for the measurement of (n, γ) reaction cross-sections[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2006: 17-19)
- [11] 苏明, 仲启平, 郑玉来, 等. γ 全吸收型探测装置中子束流监视器的Geant4模拟[J]. *原子能科学技术*, 2009, 43(10): 949-950. (Su Ming, Zhong Qiping, Zheng Yulai, et al. Geant4 simulation of neutron beam monitor in gamma-ray total absorption facility[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2009, 43(10): 949-950)
- [12] 张奇玮, 贺国珠, 阮锡超, 等. 锂玻璃探测器中子探测效率的刻度[J]. *原子核物理评论*, 2013, 30(2): 99-103. (Zhang Qiwei, He Guozhu, Ruan Xichao, et al. Calibration of neutron detection efficiency of Li-glass detector[J]. *Nuclear Physics Review*, 2013, 30(2): 99-103)
- [13] 彭猛, 贺国珠, 骆宏, 等. 4 π BaF₂装置的触发系统研究[J]. *原子能科学技术*, 2016, 50(10): 1866-1870. (Peng Meng, He Guozhu, Luo Hong, et al. Study of trigger system for γ -ray total absorption BaF₂ facility[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2016, 50(10): 1866-1870)
- [14] 赵健, 贺国珠, 颜拥军, 等. BaF₂闪烁体探测器信号数字化方法研究[J]. *原子能科学技术*, 2013, 47(4): 669-673. (Zhao Jian, He Guozhu, Yan Yongjun, et al. Digital method on signals of BaF₂ scintillator detector[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2013, 47(4): 669-673)
- [15] 张奇玮, 贺国珠, 黄兴, 等. 基于Gamma全吸收型BaF₂探测装置的数据获取系统[J]. *原子能科学技术*, 2016, 50(3): 536-540. (Zhang Qiwei, He Guozhu, Huang Xing, et al. Data acquisition system based on gamma-ray total absorption facility[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2016, 50(3): 536-540)
- [16] Amorini F, Filippo E D, Guazzoni P, et al. Digital pulse shape acquisition from BaF₂: Preliminary results[J]. 2006 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2006: 440-443.
- [17] Nelson M A, Rooney B D, Dinwiddie D R, et al. Analysis of digital timing methods with BaF₂ scintillators[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2003, 505: 324-327.
- [18] 张奇玮, 贺国珠, 黄兴, 等. 基于Gamma全吸收型BaF₂探测装置的波形分析和定时方法研究[J]. *原子能科学技术*, 2014, 48(S1): 70-75. (Zhang Qiwei, He Guozhu, Huang Xing, et al. Study of waveform analysis and timing method for gamma-ray total absorption facility[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2014, 48(S1): 70-75)
- [19] 石斌, 彭猛, 张奇玮, 等. 中子俘获反应截面在线测量技术研究[J]. *原子能科学技术*, 2018, 52(9): 1537-1544. (Shi Bing, Peng Meng, Zhang Qiwei, et al. Online method for neutron capture reaction cross-section measurement[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2018, 52(9): 1537-1544)
- [20] <https://www-nds.iaea.org/exfor/ndf.htm>.
- [21] Poenitz W P. Fast neutron capture and activation cross sections of niobium isotopes[R]. Argonne National Laboratory Reports, 1974, 8.
- [22] Mu Yunshan, Xu Haishan, Xiang Zhengyu, et al. Fast neutron radiative capture cross sections of natural niobium and molybdenum[J]. *Nuclear Science and Engineering*, 1991, 108(3): 302-311.
- [23] Staviskii Y Y, Tolstikov V A. Fast neutron radiative capture cross sections of V-51 Nb-93 W-186 and Tl-205[J]. *Atomnaya Energiya*, 1960, 9(5): 401-409.
- [24] Staviskij J J, Shapar A V. Fast neutron capture cross section for Niobium Nickel and Iron[J]. *Atomnaya Energiya*, 1961, 10(3): 264-271.
- [25] Chen Yonghao, Luan Guangyuan, BaoJie, et al. Neutron energy spectrum measurement of the Back-n white neutron source at CSNS[J]. *European Physical Journal A*, 2019, 55: 115-124.