



·研究堆应用技术专题·

# 瞬发伽马活化成像的数学模型建立与模拟重建\*

马玉华, 李航, 杨鑫, 李润东, 黄洪文

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川绵阳 621900)

**摘要:** 瞬发伽马活化成像中, 样品内部的中子自屏蔽和伽马自吸收效应会使测量结果产生不均匀分布。针对成像单元响应不一致的问题, 研究了样品内部中子场不均匀分布和伽马自吸收效应的影响, 并进行了理论推导, 建立了用于修正成像单元响应和图像重建的数学模型, 利用数学模型对 Fe、H 元素瞬发伽马活化成像的蒙特卡罗模拟进行了元素图像重建。结果显示, 样品内中子场和  $\gamma$  自吸收对成像的影响得到明显改善, Fe 和 H 元素的含量分布使用此模型可以被精确重建, 验证了数学模型的有效性。

**关键词:** 瞬发伽马活化成像; 非线性方程组; 元素含量分布; 蒙特卡罗模拟; PGAI 重建

中图分类号: TL99

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202234.210551

## Mathematical model establishment, simulation and reconstruction of PGAI

Ma Yuhua, Li Hang, Yang Xin, Li Rundong, Huang Hongwen

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry CAEP, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** In the prompt gamma activation imaging, the neutron self-shielding and gamma self-absorption effect inside the sample will cause uneven distribution of the measurement results. To solve the problem of the biased distribution in the prompt gamma activation imaging, the influence of the neutron field inside the sample and the self-absorption effect of gamma were studied, and the transport process of neutrons and gamma rays was theoretically deduced. A mathematical model for correcting the biased distribution and image reconstruction was established. The Monte Carlo method was used to simulate the prompt gamma activation imaging of Fe and H elements, and the mathematical model was used to reconstruct the element images. The results show that the influence of neutron self-shielding and  $\gamma$  self-absorption effect in prompt gamma activation imaging has been significantly corrected, and the content distribution of Fe and H elements can be accurately reconstructed using this mathematical model, which verify the validity of the mathematical model.

**Key words:** prompt gamma activation imaging, nonlinear equations, distribution of element content, Monte Carlo simulation, PGAI reconstruction

瞬发伽马活化成像 (PGAI) 是一种非破坏性的元素分析方法, 可以实现元素含量分布的分析。目前已经成功在文物与陨石上进行了分析试验<sup>[1-3]</sup>, PGAI 突出的技术能力与独特的表征功能将在工业技术领域产生巨大的应用价值: 可以观测微量元素分布和含量, 研究氢脆效应与合金性能, 在芯片、晶体管等器件生产工艺方面有重要指导意义。

目前许多研究机构都开展了对 PGAI 的研究。在 EU FP6 ANCIENT CHARM 项目的支持下, 匈牙利 BNC<sup>[4-6]</sup> 和德国 FRM II<sup>[7-8]</sup> 在反应堆中子束流上实现了瞬发伽马活化分析技术与中子断层成像 (NT) 结合的 PGAI-NT 研究, 成功地测量了古代文物的元素含量分布, 但是需要开展中子断层成像实验修正中子场的分布, 无法单独开展 PGAI 实验。国内的中国绵阳堆 (CMRR) 正在建设国内首个 PGAI-NT 测量装置<sup>[9]</sup>, 耿书群等人开展了独立 PGAI 研究, 验证了其技术可行性, 但是在图像重建上无法保证各个位置元素相应的一致性, 认为需要建立相应的修正模型<sup>[9]</sup>。PGAI 仍然存在未解决的困难。由于存在中子自屏蔽和  $\gamma$  自吸收的影响, 不同位置处的  $\gamma$  射线强度会随中子和  $\gamma$  穿

\* 收稿日期: 2021-12-08; 修订日期: 2022-01-27

基金项目: 国家自然科学基金联合基金重点项目 (U20B2011); 国家自然科学基金项目 (51978218); 四川省科技计划项目 (2019ZZDZX0010); 国家自然科学基金项目 (12075217)

联系方式: 马玉华, mayuhuw2016@foxmail.com。

通信作者: 杨鑫, yangx05@126.com。

透深度增加而减小,导致图像重建中各个位置的元素响应不一致,以及无法定量计算元素含量。目前均采用与中子断层成像结合的 PGAI-NT 测量进行中子场修正,尚未给出 PGAI 的修正模型与重建方法。本文研究了中子自屏蔽和伽马自衰减效应对图像单元响应一致性的影响,建立了 PGAI 成像及重建的数学模型,并利用蒙特卡模拟验证了模型的有效性。

### 1 瞬发伽马活化成像机制

PGAI 的实验原理:实验装置如图 1 所示,经过准直后的中子束入射到样品中,在入射路径上会发生  $(n, \gamma)$  核反应,根据核素的核结构放出特定能量的瞬发  $\gamma$  射线,在与中子束垂直的方向上准直并探测  $\gamma$  射线,分析  $\gamma$  能谱中的能量和强度,实现元素种类的鉴别和含量计算<sup>[10-11]</sup>。中子与  $\gamma$  两准直系统的交汇区域即为探测的样品区域,不断地改变中子束流与探测系统的位置进行测量,并对测量数据进行重建,可得到样品中元素含量分布的信息。

影响元素定量分析的因素主要为:(1)中子自屏蔽效应。中子束流在进入样品内部时会不断地与原子核发生各种相互作用而衰减,中子场也在穿透路径上呈现不均匀分布;(2)伽马自吸收。经核反应产生的伽马射线也会与样品发生相互作用而衰减,直接影响到元素的定量计算<sup>[12-14]</sup>。

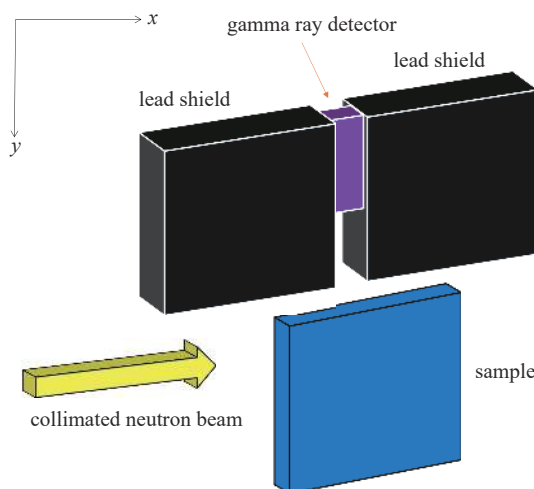


Fig. 1 Diagram of experimental principle  
图 1 实验原理示意图

### 2 建立数学模型

为解决 PGAI 存在的困难,根据成像的物理机制,考虑中子和伽马的运输过程,建立数学模型进行修正与重建。实验上通过逐层测量元素的二维分布实现样品的三维测量,本质上是解决二维分布的测量问题。把各层的二维网格分成  $n$  个体积为  $dV=dx dy dz$  的单元作为成像像素,网格单元的空间位置以图 2 的顺序标号,推导公式中参数使用 CGS 单位制。

#### 2.1 中子自屏蔽的修正

中子在物质中的注量率衰减可表示为

$$\phi(x) = \phi_0 e^{-\int_0^x N(x,y)\sigma_n dx} \tag{1}$$

式中:  $\phi(x)$  为样品深度  $x$  处中子通量,  $\phi_0$  为入射中子通量,  $N(x,y)$  为样品对应位置处的核密度,  $\sigma_n$  为中子吸收截面。

因此在  $n$  个单元的样品中,各单元的中子通量

$$\phi = \phi_0 e_w^{-AN dx \sigma_n} \tag{2}$$

式中:各单元的中子通量  $\phi = (\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_n)^T$ , 各单元的核密度  $N = (N_1, N_2, \dots, N_n)^T$ ,  $e_w$  代表逐个元素相乘;在研究样品中的主要物质和杂质分布问题中,中子吸收截面  $\sigma_n$  的大小取决于样品主要物质的元素组成,因此  $\sigma_n$  取主要物质的中子吸收截面近似为常量处理; $A$  为中子路径矩阵,对于  $n$  个网格单元的样品,经推导后表达为

1	2	...	$\sqrt{n}$
$\sqrt{n}+1$	$\sqrt{n}+2$	...	...
...	...	...	...
...	...	$n-1$	$n$

Fig. 2 Labeling method of the sample grid cell  
图 2 样品网格单元的位置标号方式

$$A = \begin{pmatrix} 1 & & & & & \\ 1 & 1 & & & & \\ \vdots & \vdots & \ddots & & & \\ 1 & 1 & \dots & 1 & \sqrt{n} & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & 1 \\ & & & & & 1 & 1 \\ & & & & & \vdots & \vdots & \ddots \\ & & & & & 1 & 1 & \dots & 1 & \sqrt{n} \end{pmatrix}_{n \times n} \quad -0.5 \times \text{diag}(A) \tag{3}$$

## 2.2 瞬发伽马射线的产生

瞬发伽马射线来源于入射中子与网格单元中原子核发生的核反应, 通过计算网格单元内的核反应率, 可知各个单元内伽马射线产生率

$$I_i = N\sigma_{n,\gamma} \odot \phi dxdydz \quad (4)$$

式中: 伽马射线产生率  $I_i = (I_{i1}, I_{i2}, \dots, I_{in})^T$ ;  $\sigma_{n,\gamma}$  为  $(n, \gamma)$  反应截面;  $\odot$  表示哈达玛积。

## 2.3 $\gamma$ 自吸收的修正

核反应产生的  $\gamma$  射线会在样品中因自吸收而衰减, 样品中不同位置的强度  $I(x,y)$  可表示为

$$I_0(x,y) = I_i e^{-\int N(x,y)\sigma_\gamma dy} \varepsilon \quad (5)$$

式中:  $\varepsilon$  为伽马射线绝对探测效率;  $\sigma_\gamma$  为伽马射线的反应截面。

因此在  $n$  个单元的样品中, 各单元产生的伽马射线经衰减后可被探测到的强度  $I$  为

$$I_0 = \varepsilon I_i \odot e_w^{-BNd\sigma_\gamma} \quad (6)$$

式中: 各单元可探测到的伽马强度  $I_0 = (I_{01}, I_{02}, \dots, I_{0n})^T$ ;  $\sigma_\gamma$  与式(2)中的  $\sigma_n$  同理, 取决于主要物质的反应截面大小, 取常量近似处理; 式中  $B$  为伽马路径矩阵, 对于  $n$  个网格单元的样品, 经推导后表达为

$$B = \begin{pmatrix} 1 & & & & & & & & & \\ & \ddots & & & & & & & & \\ & & 1/\sqrt{n} & & & & & & & \\ & \vdots & & \ddots & & & & & & \\ 1 & & & & 1 & & & & & \\ & \ddots & & & & \ddots & & & & \\ & & & & & & 1 & & & \\ & & & & & & & \ddots & & \\ & & & & & & & & 1/\sqrt{n} & \\ & & & & & & & & & 1/\sqrt{n} \end{pmatrix}_{n \times n} - 0.5 \times \text{diag}(B) \quad (7)$$

## 2.4 模型方程组

由理论推导及其物理过程分析可知, 中子场的不均匀分布和  $\gamma$  射线的自吸收是相互关联的, 需要同时对两者处理。因此, 可以联立方程(2)~(7)得到一个非线性方程组, 也是 PGAI 的数学模型

$$\varepsilon N \sigma_{n,\gamma} \phi_0 \odot e_w^{-ANd\sigma_\gamma} dxdydz \odot e_w^{-BNd\sigma_\gamma} = I_0 \quad (8)$$

方程(8)可以修正中子场不均匀分布和  $\gamma$  自吸收的影响, 以及完成 PGAI 元素含量空间分布的图像重建。将测量结果  $N\sigma_n = 1.25538 \text{ cm}^{-1}$  和式中相关实验参数代入方程(8), 使用牛顿法迭代求解原子密度  $N$  向量<sup>[15]</sup>,  $N$  向量即为网格单元中的元素含量, 由此重建出修正后的元素含量空间分布。

## 3 模拟分析与 PGAI 重建

### 3.1 蒙特卡罗模拟及其分析

以金属中氢含量的测量为背景, 展开元素含量分布的研究, 使用蒙特卡罗软件进行模拟, 利用超级计算机神威·太湖之光进行计算, 最终目的是为了验证 PGAI 的技术可行性和模型的有效性。

样品使用元素含量不均匀分布的 H 和均匀分布的 Fe 混合而成。样品的设置如图 3 所示, 样品大小为  $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm} \times 0.2 \text{ cm}$ , 将样品等分为 25 个小单元测量, 铁元素在样品内均匀分布, 氢元素在 1 号、2 号、3 号和 4 号区域分别设置相对于铁原子数含量的 10%, 6%, 8%, 0%。

中子源、探测系统和样品的设置以图 1 为原型, 设置单向飞行的 0.0253 eV 热中子入射样品, 准直口尺寸为  $0.2 \text{ cm} \times$

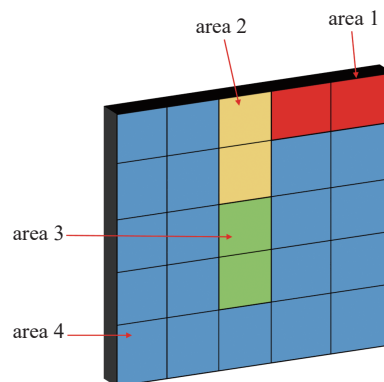


Fig. 3 Geometric settings of each area in the sample  
图 3 样品各个区域的几何设置

0.2 cm×10 cm, 记录进入探测器内 H 放出的 2.223 MeV 瞬发伽马射线, 以及 Fe 放出的 7.631 MeV 和 7.645 MeV 瞬发伽马射线。

模拟结果显示了 Fe 元素瞬发伽马射线计数的分布, 计数结果随不同位置的分布如图 4 所示, 各个单元中的伽马射线统计误差最小值为 4.2%, 最大值为 7.2%, 平均值为 5.4%。

瞬发伽马射线的测量结果符合 PGAI 在不同空间位置处响应不一致的问题。伽马计数分布随着中子穿透深度的增加而减少, 随伽马自吸收厚度的增加而减少, 在远离中子束流和伽马探测器的区域, 伽马射线计数整体偏小, 误差也整体偏大。

PGAI 在空间位置上的响应变化可以用于计算中子和伽马的衰减系数。重建计算中的衰减系数可以通过查表获得, 也可以利用实验值计算获得: 对样品网格各行各列的数据进行拟合, 得到样品中子(行)和伽马(列)的衰减系数, 根据拟合可靠价值加权平均后得  $N\sigma_n = 1.25538 \text{ cm}^{-1}$ ,  $N\sigma_\gamma = 0.28488 \text{ cm}^{-1}$ 。

模拟结果也显示了 H 元素瞬发伽马射线计数的分布, 成像探测的结果如图 5 所示。

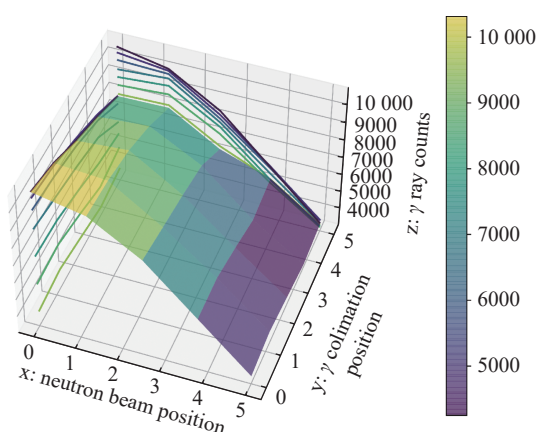


Fig. 4 Prompt gamma ray counting distribution of Fe in different positions of the sample

图 4 Fe 元素瞬发伽马射线计数在样品不同位置的分布图

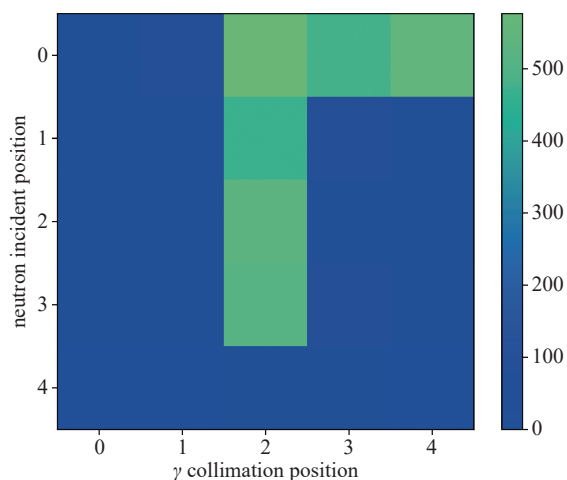


Fig. 5 Prompt gamma ray counting distribution of H in different positions of the sample

图 5 H 元素瞬发伽马射线计数在样品不同位置的分布图

同 Fe 元素的 PGAI 成像结果一样, H 元素的真实含量分布也不能直接用图 5 的结果代替, 也需要利用已经建立的 PGAI 模型方程组计算出元素的真实分布。

### 3.2 重建结果与讨论

根据建立的数学模型, 经过迭代计算后, 实现了对样品中中子场和  $\gamma$  自吸收的修正, 重建出了 Fe 和 H 元素的含量分布。在 2.2 GHz 单核的计算条件下, 使用牛顿法迭代 1000 次计算, 所需时间约为 0.17 s, 重建计算的效率较高。

Fe 元素的 PGAI 重建得到了各单元的核密度, 得到了元素含量分布的精确结果, 结果如图 6 所示。

Fe 的核密度真实值为  $8.4676 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ , 对比各个单元的重建值与真实值, 其最小相对误差为 0.038%, 最大相对误差为 3.31%, 平均相对误差为 1.54%, 重建结果非常准确。

H 元素的 PGAI 重建可以使用上述的通用方法, 如同铁元素重建一样求解非线性方程组获得元素含量分布, 但更好的方法是利用铁元素的重建结果快速计算。当一种元素 (Fe) 得到重建后, 可计算铁元素的重建值和探测值的商, 这便是每个单元的重建修正系数, 将这个系数乘以 H 元素的探测值进行中子场和伽马场修正后, 便得到了 H 元素的分布。H 元素含量位置分布的重建结果如图 7 所示。

根据重建结果可知, H 元素的含量分布在 1, 2, 3, 4 号区域含量比值为 5.39:3.13:4:0.13, 与样品真实含量比值 5:3:4:0 一致, 符合 H 元素的含量分布, 且重建准确度高。

利用建立的非线性模型方程组, 精确地计算了 PGAI 成像中 Fe 和 H 的元素含量分布, 所得重建值与真实值具有高度的一致性, 实现了样品中主要元素和微量元素的成像, 获得了不同元素含量的位置分布, 也充分验证了 PGAI 非线性模型方程组的有效性 with 精确性。

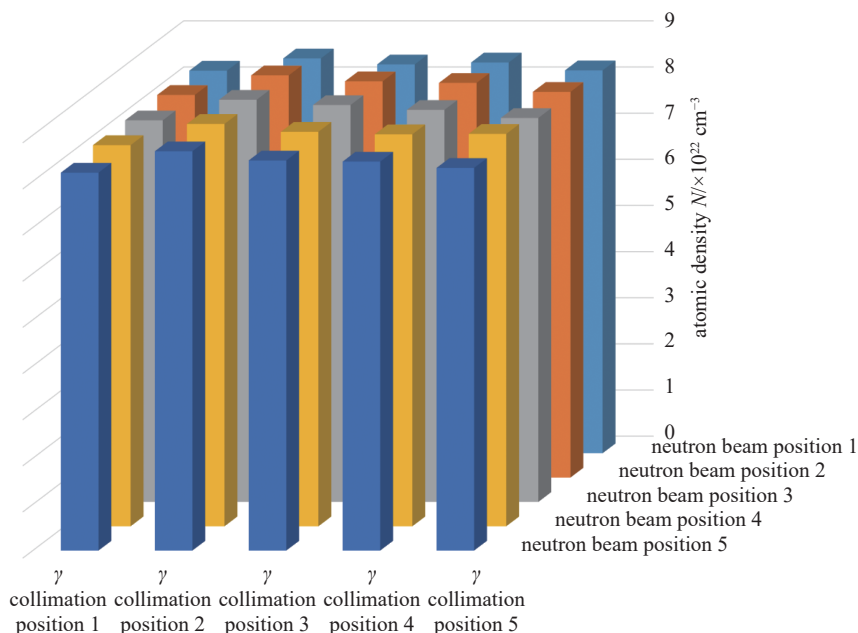


Fig. 6 PGAI reconstruction result for Fe  
图 6 PGAI 重建 Fe 元素的结果

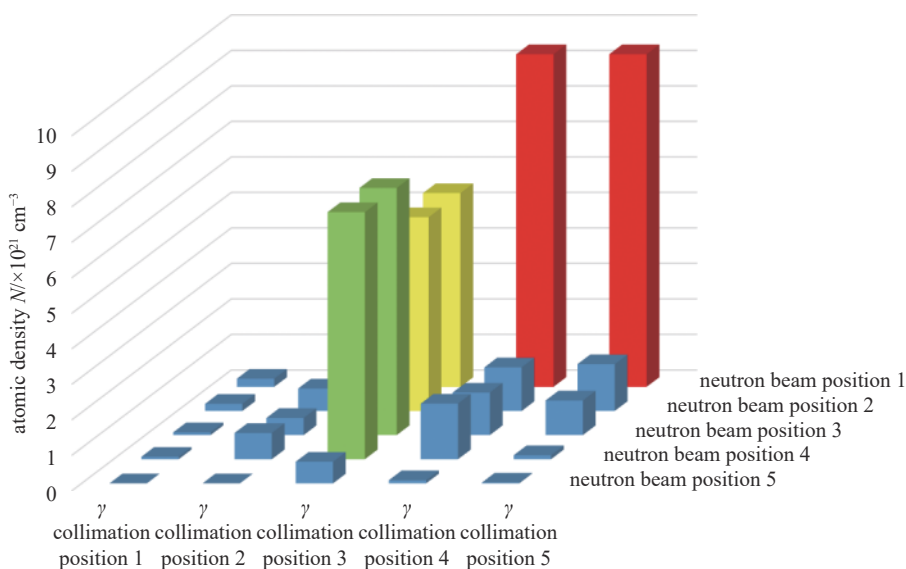


Fig. 7 PGAI reconstruction result for H  
图 7 PGAI 重建 H 元素的结果

#### 4 结论与展望

从 PGAI 成像的物理机制出发,建立了成像的模型方程组,并提出了相关参数的计算方法和重建方法,通过蒙特卡罗模拟了 PGAI 实验,精确地重建了成像结果,并得到以下结论:(1)非线性模型方程组为 PGAI 成像提供了精确地重建方法和分析模型,能对中子自屏蔽和伽马自吸收实现准确有效的修正,可以应用在实际的成像中分析元素含量的位置分布;(2)模型的重建方法,可以针对未知能谱的中子束流计算出样品中各个元素的中子衰减系数和伽马衰减系数,同时也可以计算样品中任意混合元素的衰减系数。可以减少实验中参数的测量,有利于实验的开展;(3)能够实现样品中主要元素和微量元素含量的位置分布,可以研究合金中微量元素的含量与分布、氢脆效应、半导体元件的掺杂等,元素含量分布的研究在许多行业都有重要的实用价值与意义。

为了进一步提高成像精度,在后续的研究中需要进一步的优化与完善。增加中子束流强度和伽马准直长度以降低原始数据存在的噪声与误差,对中子散射在不同位置做高斯分布处理,测量样品中更多的网格单元,使模型能够实现更高的准确性,以及重建效果实现更高的质量。

## 参考文献:

- [1] Kis Z, Szentmiklósi L, Schulze R, et al. Prompt gamma activation imaging (PGAI)[M]//Kardjilov N, Festa G. Neutron Methods for Archaeology and Cultural Heritage. Cham: Springer International Publishing, 2017.
- [2] Canella L, Kudějová P, Schulze R, et al. PGAA, PGAI and NT with cold neutrons: test measurement on a meteorite sample[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2009, 67(12): 2070-2074.
- [3] 杨鑫, 李润东, 王冠博, 等. 瞬发伽马活化分析与中子层析照相联合测量技术[J]. *同位素*, 2017, 30(3): 153-163. (Yang Xin, Li Rundong, Wang Guanbo, et al. Combination of prompt gamma-ray activation analysis and neutron tomography[J]. *Journal of Isotopes*, 2017, 30(3): 153-163)
- [4] Paul R L, Lindstrom R M. Prompt gamma-ray activation analysis: fundamentals and applications[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2000, 243(1): 181-189.
- [5] Szentmiklósi L, Révay Z, Belgya T, et al. Combining prompt gamma activation analysis and off-line counting[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 278(3): 657-660.
- [6] Belgya T, Kis Z, Szentmiklósi L, et al. A new PGAI-NT setup at the NIPS facility of the Budapest research reactor[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 278(3): 713-718.
- [7] Kudejova P, Meierhofer G, Zeitelhack K, et al. The new PGAA and PGAI facility at the research reactor FRM II in Garching near Munich[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 278(3): 691-695.
- [8] Söllradl S, Mühlbauer M J, Kudejova P, et al. Development and test of a neutron imaging setup at the PGAA instrument at FRM II[J]. *Physics Procedia*, 2015, 69: 130-137.
- [9] 耿书群, 贾文宝, 黑大千, 等. PGAI瞬发伽马射线活化成像技术理想化模型的模拟[J]. *强激光与粒子束*, 2018, 30: 016005. (Geng Shuqun, Jia Wenbao, Hei Daqian, et al. Prompt gamma activation imaging technology under idealized model[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2018, 30: 016005)
- [10] 黄孟, 朱剑钰, 伍钧, 等. 基于JMCT软件的中子活化数值模拟程序的开发和检验[J]. *强激光与粒子束*, 2022, 34: 026016. (Huang Meng, Zhu Jianyu, Wu Jun, et al. Development and test of neutron activation simulation program based on JMCT software[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2022, 34: 026016)
- [11] Degenaar I H, Blaauw M, Bode P, et al. Validation of MCNP for large-sample thermal-beam prompt-gamma neutron activation analysis[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2004, 260(2): 311-315.
- [12] Blaauw M, Mackey E A M. Neutron self-shielding in hydrogenous samples[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1997, 216(1): 65-68.
- [13] Blaauw M, Belgya T. Neutron self-shielding correction for prompt gamma neutron activation analysis of large samples[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2005, 265(2): 257-259.
- [14] 丁大钊, 叶春堂, 赵志祥. 中子物理学: 原理、方法与应用[M]. 北京: 原子能出版社, 2001. (Ding Dazhao, Ye Chuntang, Zhao Zhixiang. Neutron physics[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2001)
- [15] 王德人. 非线性方程组解法与最优化方法[M]. 北京: 人民教育出版社, 1979. (Wang Deren. Solutions and optimization methods of nonlinear equations[M]. Beijing: People's Education Press, 1979)