

基于GeTHU测量确定 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 和 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 的反应截面

刘奇泽¹ 欧宇福¹ 景明坤¹ 代文翰¹ 曾志¹ 薛涛¹ 田阳¹ 曾鸣¹
马豪¹ Titarenko Yu E² Pavlov K V² Titarenko A Yu² Zhivun V M²
Kovalishin A A² Kulevoy T V² Khalikov R S²

¹(清华大学 工程物理系 北京 100084)

²(NRC "Kurchatov Institute" 俄罗斯 莫斯科 123182)

摘要 加速器驱动次临界系统(Accelerator Driven Sub-critical System, ADS)是最具潜力的下一代核能系统选型之一,准确评估ADS散裂靶内产生的长寿命放射性核素含量是应用研究中的重要课题,利用质子活化法可以有效评价质子与散裂靶材料发生相互作用产生长寿命核素的反应截面。4个质子辐照天然铅样品分别被能量为40 MeV、70 MeV、100 MeV和400 MeV的质子照射90 min、75 min、40 min和25 min,在冷却约20 a后,利用中国锦屏地下实验室(China Jinping Underground Laboratory, CJPL)的超低本底 γ 谱仪GeTHU进行测量,使用SAGE(Simulation and Analysis for Germanium Experiments)模拟框架计算了GeTHU的探测效率,测定了能量为40 MeV、70 MeV、100 MeV和400 MeV质子与天然铅发生 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 和 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 反应的总产生截面,并与其他理论及实验工作的结果进行了比较,基于相同样品的实验测量结果在误差范围内保持一致, $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 的反应截面与TENDL的评价截面更为接近, $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 的截面结果与INCL++/ABLA的理论预期保持一致,这些截面结果为ADS设施的放射性废物评估提供了实验依据。

关键词 GeTHU, 激发函数, 铅靶, 剩余核素, CJPL

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.090501

Determination of cross-sections of $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ and $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ by GeTHU

LIU Qize¹ Ofoq Normahmedov¹ JING Mingkun¹ DAI Wenhan¹ ZENG Zhi¹ XUE Tao¹
TIAN Yang¹ ZENG Ming¹ MA Hao¹ Titarenko Yu E² Pavlov K V² Titarenko A Yu²
Zhivun V M² Kovalishin A A² Kulevoy T V² Khalikov R S²

¹(Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

²(NRC "Kurchatov Institute", Moscow, 123182, Kurchatov sq. 1, Russia)

Abstract [Background] Accelerator-driven subcritical systems (ADS) are among the most promising options for next-generation nuclear power systems. Various radionuclides are produced during the process of protons bombarding the target in the ADS, and the cross-sections of various long-lived radionuclides have not been accurately

国家自然科学基金(No.12011530057, No.U1865205)、俄罗斯基础研究基金(No.20-52-53021)资助

第一作者: 刘奇泽, 男, 1998年出生, 2020年毕业于南京航空航天大学, 现为博士研究生, 研究领域为地下核物理实验

通信作者: 曾志, E-mail: zengzhi@tsinghua.edu.cn

收稿日期: 2023-03-17, 修回日期: 2023-05-16

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.12011530057, No.U1865205) and Russian Foundation for Basic Research (No.20-52-53021)

First author: LIU Qize, male, born in 1998, graduated from Nanjing University of Aeronautics and Astronautics in 2020, doctoral student, focusing on neutrinoless double beta decay

Corresponding author: ZENG Zhi, E-mail: zengzhi@tsinghua.edu.cn

Received date: 2023-03-17, revised date: 2023-05-16

measured. These long-lived nuclides are related to ADS radioactive waste treatment, therefore, accurate evaluation of long-lived radionuclides generated in ADS spallation targets is a key topic in applied research. **[Purpose]** This study aims to determinate production cross-sections of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{207}\text{Bi}$ and ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{194}\text{Hg}$ reactions according to measurement data, and compare them with existing experimental and theoretical results. **[Methods]** The proton activation method was employed to effectively estimate the cross section of long-lived nuclides produced by the interaction between protons and spallation target materials. Four proton-irradiated natural lead samples were irradiated with protons at energies of 40 MeV, 70 MeV, 100 MeV, and 400 MeV for 90 min, 75 min, 40 min, and 25 min, respectively. After cooling for approximately 20 a, the samples were measured using an ultralow background gamma spectrometer GeTHU in the China Jinping Underground Laboratory (CJPL), and the GeTHU detection efficiency was calculated using the Simulation and Analysis for Germanium Experiments (SAGE) simulation framework. Combined with the irradiation parameters of the samples, the total production cross-sections of the two nuclides were calculated using a cross-section calculation formula. Experimental results are evaluated and compared with those of existing studies. **[Results]** The production cross-sections of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{207}\text{Bi}$ reaction in the natural lead samples irradiated by protons with four different energies (40 MeV, 70 MeV, 100 MeV and 400 MeV) are calculated as (40.70 ± 3.59) mb, (19.31 ± 1.43) mb, (13.15 ± 0.96) mb, and (2.90 ± 0.22) mb, respectively. The calculated production cross-section of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{194}\text{Hg}$ reaction in the natural lead sample irradiated by protons with an energy of 400 MeV is (57.07 ± 7.83) mb. Based on the same samples, the measurement results of cross-section remain consistent within the error range. The cross-sections of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{207}\text{Bi}$ are closer to TENDL's evaluated cross-sections. The cross-section of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{194}\text{Hg}$ is consistent with the theoretical expectation of INCL++/ABLA. In addition, different sources that contribute to the total uncertainty of both reactions are explained in detail. **[Conclusions]** The production cross-sections of ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{207}\text{Bi}$ and ${}^{nat}\text{Pb}(p, x){}^{194}\text{Hg}$ reactions measured herein were calculated independently and showed good agreement with existing results. These results demonstrate that GeTHU is capable of measuring low-activity and long-lived radionuclides in the CJPL. Finally, the results of this study also provide the latest experimental evidence for the evaluation of radioactive waste in ADS.

Key words GeTHU, Excitation function, Pb-target, Residual nuclides, CJPL

加速器驱动次临界系统 (Accelerator Driven Sub-critical System, ADS) 具备提升反应堆安全性和实现放射性废物嬗变的固有能力^[1-2], 因此成为下一代核能系统最具潜力的选型之一。ADS有三个主要部件用于在次临界状态下驱动系统运行, 包括高能质子加速器、散裂靶和次临界堆芯, 其中, 散裂靶通常由铅(Pb)和铋(Bi)构成。当高能质子轰击散裂靶时, 在散裂靶中会不断产生和积累长寿命放射性核素, 一些由 $\text{Pb}(p, x)/\text{Bi}(p, x)$ 反应所形成的放射性核素产物的寿命可达数百年。在储存和管理放射性废物时, 必须考虑这些长寿命放射性核素的产生。在2000~2002年期间, 俄罗斯理论和实验物理研究所(NRC "Kurchatov Institute") 对此开展了一系列相关的实验研究, 获得了一系列较短寿命核素(如 ${}^{24}\text{Na}$ 、 ${}^{59}\text{Fe}$ 、 ${}^{101m}\text{Rh}$ 等)的截面结果^[3], 并总结为IAEA(International Atomic Energy Agency)的INDC(International Nuclear Data Committee)报告^[4]。但由于受照后的铅靶内存在较多来自短寿命放射性核素的底, 一部分截面较小、活度较低的长寿命产物

(如 ${}^{207}\text{Bi}$ ($T_{1/2}=31.55$ a)和 ${}^{194}\text{Hg}$ ($T_{1/2}=447$ a)等)难以准确计算反应截面, 而这些长寿命核素的产生截面^[5-9]在EXFOR等核数据库中又较为匮乏, 亟待实验测定。这些受照铅靶在经过约20 a的冷却后, 来自短寿命核素的底已大幅降低, 为测量这部分长寿命产物的截面提供了可能, 但是对这类低活度长寿命产物的测量易受地面谱仪较高的底水平和较复杂的底环境干扰, 为此中俄双方作者展开合作, 分别在地上实验室(Institute for Theoretical and Experimental Physics, ITEP)和中国锦屏地下实验室(China Jinping Underground Laboratory, CJPL)对相同的质子轰击铅靶进行测量: 由俄方Titarenko等在ITEP利用高纯锗 γ 谱仪对样品进行测量, 分别给出了产物为 ${}^{207}\text{Bi}$ ^[10]和 ${}^{194}\text{Hg}$ ^[11]对应的反应截面; 本工作则依托CJPL中的超低底 γ 谱仪对Titarenko等工作中测量的4个标记为 ${}^{nat}\text{Pb}400$ 、 ${}^{nat}\text{Pb}100$ 、 ${}^{nat}\text{Pb}70$ 和 ${}^{nat}\text{Pb}40$ 的铅靶样品进行平行测量, 在更低的底水平^[11]下分析了 ${}^{207}\text{Bi}$ 和 ${}^{194}\text{Hg}$ 的产生截面, 并同ITEP的发表结果进行了比较。

1 测量与分析方法

1.1 反应截面计算

为了计算 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 和 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 的反应截面,使用以下公式:

$$\sigma = \frac{R}{\Phi} \quad (1)$$

式中: σ 表示特定产物核素的反应截面; R 为产物核素的产生率; Φ 为质子的通量密度。

质子的 Φ 已在实验中测定,产物核素的 R 可通过式(2)计算。

对于活度可由其自身 γ 线确定的反应产物(如 ^{207}Bi),根据衰变规律使用以下公式计算反应速率 R :

$$R = \frac{A \cdot e^{\lambda \cdot t}}{\lambda \cdot t_{\text{irr}} \cdot n_{\text{Pb}}} \quad (2)$$

式中: A 为特定产物核素的活度; t 为质子辐照实验与样品测量实验之间的时间间隔(冷却时间); λ 为产物核素的衰变常数; t_{irr} 为样品的质子辐照时间; n_{Pb} 为样品中的铅原子数。

对于活度不直接由其 γ 线确定的产物(如 ^{194}Hg),根据与测量相关的衰变过程计算反应速率 R 。对于 ^{194}Hg ,其产生速率可以根据递次衰变规则通过以下公式计算:

$$R = A_{\text{Au}} \cdot \left(\frac{1}{\lambda_{\text{Hg}}} - \frac{1}{\lambda_{\text{Au}}} \right) \cdot \frac{1}{e^{-\lambda_{\text{Hg}} \cdot t} - e^{-\lambda_{\text{Au}} \cdot t}} \cdot \frac{1}{t_{\text{irr}}} \cdot \frac{1}{n_{\text{Pb}}} \quad (3)$$

式中: A_{Au} 为 ^{194}Hg 的子核 ^{194}Au 的活度; λ_{Hg} 为 ^{194}Hg 的衰变常数; λ_{Au} 为 ^{194}Au 的衰变常数。

考虑到 $\lambda_{\text{Hg}} \ll \lambda_{\text{Au}}$,式(3)以式(2)的形式近似表达,此时, A 为 ^{194}Au 的活度值, λ 为 ^{194}Hg 的衰变常数。因此,在近似之后,对于 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 和 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 两类反应,均可用式(2)描述核素的产生速率。

通过 γ 谱分析可以获得计算反应速率 R 所需的核素活度 A ,其公式如下:

$$A = \frac{N_{\text{net}}}{\epsilon \cdot t} \quad (4)$$

式中: A 为感兴趣核素的活度; N_{net} 为实测谱中某一特定全能峰下的净计数; ϵ 为对应全能峰的模拟探测效率; t 为样品测量过程的活时间。

1.2 样品

测量所使用的样品由 NRC "Kurchatov Institute" 所提供,4个质子辐照天然铅样品分别命名为 $^{nat}\text{Pb}40$ (使用 40 MeV 质子辐照)、 $^{nat}\text{Pb}70$ (使用 70 MeV 质子辐照)、 $^{nat}\text{Pb}100$ (使用 100 MeV 质子辐照)和 $^{nat}\text{Pb}400$ (使用 400 MeV 质子辐照)。所有的待测样品均单独密封在塑料样品袋中,样品袋的整体厚度较小(约 0.1 mm),经模拟对两种感兴趣核素能区的影响小于 3%,可以忽略样品袋造成的衰减。

用于辐照的铅样品使用高富集度的天然铅靶丸压制而成,直径均为 10.5 mm,其纯度使用质谱仪检定,其杂质水平列于表 1,未列出的其他杂质在样品中的占比更低。表 2 列出了样品在质子辐照实验中的具体辐照参数,这些参数均由文献[4]给出。

表 1 样品杂质水平
Table 1 Chemical impurity of irradiated samples

化学杂质 Chemical impurity	占比 Proportion / %	化学杂质 Chemical impurity	占比 Proportion / %
Na	<0.000 006	Ni	0.000 009
Mg	0.000 005	Cu	<0.000 02
Al	0.000 02	Zn	<0.000 006
Si	0.000 01	Ag	<0.000 01
Ca	0.000 1	Sn	<0.000 02
Cr	0.000 02	Sb	<0.000 02
Mn	<0.000 003	Bi	<0.000 10
Fe	0.000 2		

表 2 样品辐照参数
Table 2 Parameters of irradiated samples

名称 Name	质子能量 Energy of proton / MeV	质量 Mass / mg	辐照时间 Time of radiation / min	平均质子通量 Average flux of proton / $10^{10} \text{ p} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$
$^{nat}\text{Pb}40$	38.0±1.0	207.6	90	1.39±0.12
$^{nat}\text{Pb}70$	68.9±0.8	194.1	75	0.84±0.06
$^{nat}\text{Pb}100$	99.3±0.8	201.0	40	1.43±0.10
$^{nat}\text{Pb}400$	400±2	243.5	25	6.78±0.50

1.3 GeTHU-I 超低本底 γ 谱仪

CJPL 是世界上最深的地下实验室^[12-14],位于中国四川省,岩石埋深最高可达 2 400 m(等效水厚 6 720 m),得益于良好的低本底环境,CJPL 成为诸

多重要物理前沿实验的研究平台^[15-17]。在 2020 年 10 月至 2021 年 3 月期间,所有样品均在 CJPL 使用 GeTHU-I 探测器进行测量。GeTHU-I 探测器是由法国 CANBERRA 公司制造的 n 型同轴 HPGe 探测器,

相对探测效率为40%。锗晶体的高度和直径分别为59.8 mm和59.9 mm。为了降低探测器样品腔内的 γ 和中子本底,从内到外分别使用5 cm高纯无氧铜、15 cm铅和10 cm硼化聚乙烯板对探测器四周进行屏蔽。关于GeTHU-I系统的更多细节见文献[18]。下文中提及的GeTHU均指GeTHU-I超低本底 γ 谱仪。

各样品分别放置在距离GeTHU探头低温腔0 mm处和40 mm处进行测量,此外GeTHU样品腔内的本底也在样品测量前进行了预先测量。 ^{210}Pb 400样品在探头低温腔表面0 mm高度处测量7 d和在探头低温腔表面40 mm高度处测量14 d的全能谱以及使用GeTHU测量15 d的本底能谱如图1所示。测量7 d时间的 ^{210}Pb 100、 ^{210}Pb 70和 ^{210}Pb 40样品的全能谱以及本底谱如图2所示。测量到的感兴趣核素及其半衰期与全能峰峰位列于表3^[19]。感兴趣核素及其他核素在能谱中的特征峰已在图3中标记。

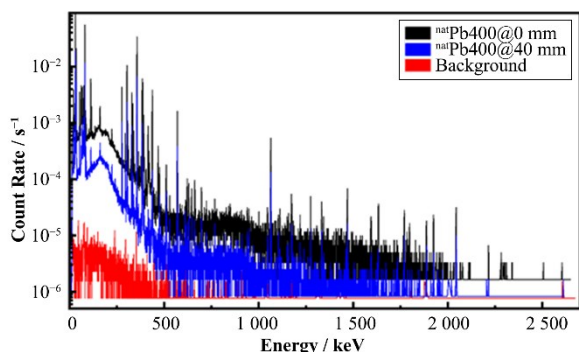


图1 GeTHU在7 d和14 d内测量 ^{210}Pb 400样品在0 mm和40 mm高度处的全能谱与GeTHU本底谱的对比(彩图见网络版)

Fig.1 Full gamma-spectra of ^{210}Pb 400 sample at a height of 0 mm and 40 mm measured by GeTHU for 7 d and 14 d vs. background spectrum of GeTHU (color online)

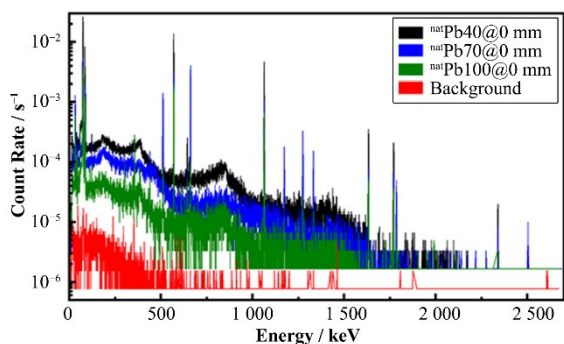


图2 GeTHU测量 ^{210}Pb 100、 ^{210}Pb 70、 ^{210}Pb 40样品的全能谱与GeTHU本底谱的对比(彩图见网络版)

Fig.2 Full gamma-spectra of ^{210}Pb 100, ^{210}Pb 70 and ^{210}Pb 40 samples measured by GeTHU vs. background spectrum of GeTHU (color online)

表3 样品中感兴趣核素及全能峰能量
Table 3 Peak energy of nuclides of interest in samples

核 Nuclide	半衰期 Half life / a	能量 Energy / keV	强度 Intensity / %
^{207}Bi	31.55	569.7	97.74
		1 063.66	74.5
		1 770.24	6.87
$^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$	447	293.54	10.4
		328.45	61
		1 468.91	6.4
		2 043.67	3.6

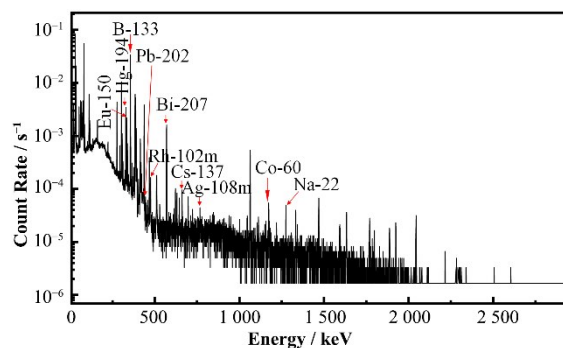


图3 在 ^{210}Pb 400样品谱中已识别出的核素

Fig.3 Full gamma-spectrum of ^{210}Pb 400 sample with identified nuclides marked

在 ^{210}Pb 400样品的 γ 测量谱中, ^{207}Bi 可以由其自身衰变释放的 γ 射线确定, ^{194}Hg 也可通过其衰变子代 ^{194}Au 的 γ 射线识别。与之相比,在受到100 MeV、70 MeV和40 MeV质子照射的 ^{210}Pb 100、 ^{210}Pb 70和 ^{210}Pb 40样品的 γ 测量谱中,由于没有对应 γ 射线存在,无法识别出其中是否存在 ^{194}Hg 。但对于这些样品而言, ^{207}Bi 衰变释放的 γ 射线依然显著存在于样品谱中。

1.4 探测效率模拟

GeTHU的几何模型通过SAGE^[20]和Geant4 11.0.1^[21-23]建立,SAGE是用于HPGe探测器实验的蒙特卡罗模拟框架,在CJPL内使用的多种探测器模型已在SAGE框架内预置,Geant4则是欧洲核子研究中心(Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire,CERN)开发的通用蒙特卡罗模拟工具包,用于模拟粒子在物质中的相互作用和粒子输运过程。GeTHU中的样品位置和GeTHU的HPGe探测器结构分别如图4和图5所示。图4展示了在模拟中探测器的结构和与样品之间的位置关系,在图4的左图中,样品直接置于探测器的低温腔表面上,在图4的右图中,样品置于空心支架上距离探测器低温腔表面40 mm高度处。所有的待测样品均在这两个不同的位置进行了模拟,模拟还考虑了探测器的

周围材料及 $^{nat}\text{Pb}400$ 、 $^{nat}\text{Pb}100$ 、 $^{nat}\text{Pb}70$ 、 $^{nat}\text{Pb}40$ 样品的形状参数^[4]。

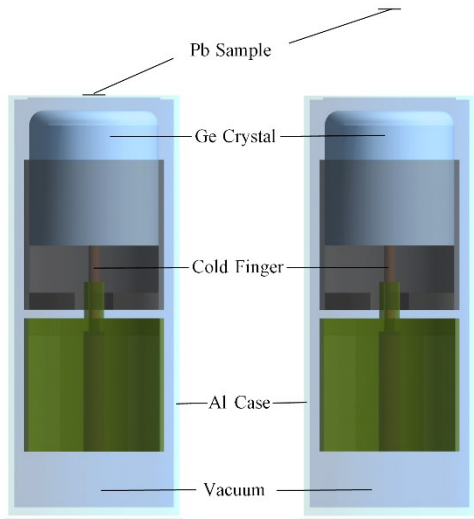


图4 探测器结构及与样品的相对位置

Fig.4 Detector structure and relative position to the sample

SAGE 模拟框架为模拟中的几何和源项配置提供了灵活的接口。在 SAGEJson 文件(SAGE 模拟框架的输入文件)中设置好探测器和样品的几何参数以及源项的放射性核素类型与数量后,使用 SAGE 模拟了各样品中感兴趣核素的特征 γ 射线的探测效率。为获得较好的统计性,每次模拟的粒子数量为 5×10^6 ,模拟特征峰的统计涨落小于 2%。

使用下式计算蒙特卡罗模拟得到的探测效率:

$$\varepsilon = \frac{A_{\text{net}}}{N} \quad (5)$$

表4 0 mm 高度处的模拟探测效率
Table 4 Detection efficiency at 0 mm height

核 Nuclide	样品 Sample	γ 射线能量 Energy of gamma-ray / keV	探测效率(单位衰变计数) Detection efficiency (counts per decay)	绝对不确定度 Absolute uncertainty	相对不确定度 Relative uncertainty / %
^{207}Bi	$^{nat}\text{Pb}40$	569.66	6.30×10^{-2}	2.8×10^{-3}	4.4
		1 063.6	2.78×10^{-2}	1.2×10^{-3}	4.3
	$^{nat}\text{Pb}70$	569.66	6.32×10^{-2}	2.8×10^{-3}	4.4
		1 063.6	2.78×10^{-2}	1.2×10^{-3}	4.3
	$^{nat}\text{Pb}100$	569.66	6.32×10^{-2}	2.8×10^{-3}	4.4
		1 063.6	2.78×10^{-2}	1.2×10^{-3}	4.3
$^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$	$^{nat}\text{Pb}400$	569.66	6.28×10^{-2}	2.8×10^{-3}	4.5
		1 063.6	2.76×10^{-2}	1.2×10^{-3}	4.3
	$^{nat}\text{Pb}400$	293.61	7.63×10^{-3}	1.8×10^{-4}	2.3
		328.52	5.58×10^{-2}	2.5×10^{-3}	4.5

1.5 不确定度评估

实验测量的根本目的是确定待测物理量的值(此处为感兴趣产物核素的反应截面),但测量结果仅是待测物理量的近似值或估计值。因此,只有在

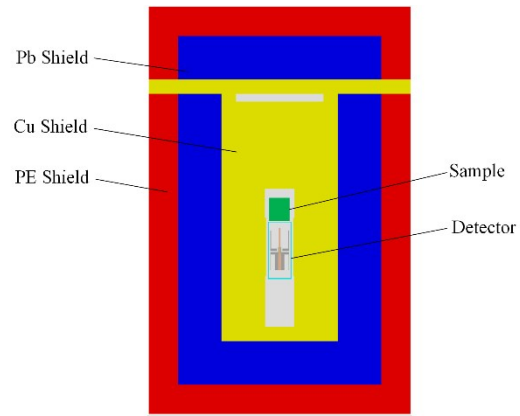


图5 GeTHU 几何的模拟截面图

Fig.5 Cross-section view of GeTHU in Geant4

式中: ε 表示某一特征峰的探测效率; A_{net} 表示模拟谱中对应全能峰的净计数; N 表示模拟的粒子数。

使用 SAGE 中的衰变模拟模式分别对 ^{207}Bi 和 ^{194}Hg 两种核素进行了模拟,模拟假设核素均匀分布在铅样品内。衰变模式的模拟从衰变母核开始,因此在蒙特卡罗模拟中已经考虑了 γ 射线级联符合的影响。与特定 γ 射线的直接模拟相比,在该模式下获得的结果已经包含了分支比和级联符合的校正。此外,样品位置不确定度所产生的影响也在模拟中进行了评估,并将这一影响包含在了效率的不确定度中。

表4和表5分别列出了使用衰变模拟模式在 0 mm 和 40 mm 高度下的模拟探测效率。

声明了待测量的不确定度后测量结果的报告才最终完成。

根据 §1.1 中所提到的计算过程,结果的不确定度可以通过各已知量的不确定度传递来计算:

表5 40 mm高度处的模拟探测效率
Table 5 Detection efficiency at 40 mm height

核 Nuclide	样品 Sample	γ 射线能量 Energy of gamma-ray / keV	探测效率(单位衰变计数) Detection efficiency (counts per decay)	绝对不确定度 Absolute uncertainty	相对不确定度 Relative uncertainty / %
^{207}Bi	$^{\text{nat}}\text{Pb40}$	569.66	1.58×10^{-2}	5.1×10^{-4}	3.2
		1 063.6	7.40×10^{-3}	2.3×10^{-4}	3.1
	$^{\text{nat}}\text{Pb70}$	569.66	1.58×10^{-2}	4.7×10^{-4}	3.0
		1 063.6	7.38×10^{-3}	2.4×10^{-4}	3.3
	$^{\text{nat}}\text{Pb100}$	569.66	1.59×10^{-2}	5.2×10^{-4}	3.3
		1 063.6	7.38×10^{-3}	2.1×10^{-4}	2.8
$^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$	$^{\text{nat}}\text{Pb400}$	569.66	1.59×10^{-2}	5.0×10^{-4}	3.1
		1 063.6	7.36×10^{-3}	1.7×10^{-4}	2.3
	$^{\text{nat}}\text{Pb400}$	293.61	2.76×10^{-3}	1.0×10^{-4}	3.6
		328.52	1.51×10^{-2}	4.7×10^{-4}	3.1

$$\Delta_A = A \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2} \quad (6)$$

$$\Delta_R = \sqrt{\left(\frac{R}{A}\right)^2 \cdot \Delta_A^2 + \left[\left(\frac{R}{T_{1/2}}\right) \cdot \left(1 - \ln 2 \cdot \frac{t}{T_{1/2}}\right)\right]^2 \cdot \Delta_T^2} \quad (7)$$

$$\Delta_\sigma = \sigma \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta_R}{R}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_\phi}{\Phi}\right)^2} \quad (8)$$

式中: Δ_A 为核素活度的不确定度; Δ_N 为全能峰净计数数的不确定度; Δ_ε 为模拟探测效率的不确定度; Δ_R 为反应产率的不确定度; Δ_T 为核素半衰期的不确定度; Δ_σ 为反应截面的不确定度; Δ_ϕ 为质子通量密度的不确定度。

2 结果与讨论

2.1 $^{\text{nat}}\text{Pb}(\text{p},\text{x})^{207}\text{Bi}$ 的反应截面

使用能量为 569.7 keV (97.75%) 和 1 063.7 keV (74.5%) 的 γ 射线, 对 $^{\text{nat}}\text{Pb400}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Pb100}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Pb70}$ 和 $^{\text{nat}}\text{Pb40}$ 样品测量谱中的 ^{207}Bi 进行了测定。表 6 中

表6 ^{207}Bi 核素的活度
Table 6 Activity of ^{207}Bi nuclide

样品 Sample	活度 Activity / Bq		
	0 mm 高度 0 mm height	40 mm 高度 40 mm height	均值 Average value
$^{\text{nat}}\text{Pb40}$	0.889 ± 0.028	0.864 ± 0.020	0.872 ± 0.016
$^{\text{nat}}\text{Pb70}$	0.196 ± 0.006	0.193 ± 0.005	0.194 ± 0.004
$^{\text{nat}}\text{Pb100}$	0.125 ± 0.004	0.123 ± 0.003	0.124 ± 0.003
$^{\text{nat}}\text{Pb400}$	0.100 ± 0.003	0.096 ± 0.003	0.098 ± 0.002

类似的, 其他作者的实验结果^[11]、Geant4 (INCL++/ABLA) 的计算结果以及质子能量低于 200 MeV 的 TENDL-2019 库和 TENDL-2021 库的截

列出了根据式(2)计算的 ^{207}Bi 核素活度。

基于 ^{207}Bi 的活度值和对应样品的模拟结果, 根据式(1)计算了不同质子能量下 $^{\text{nat}}\text{Pb}(\text{p},\text{x})^{207}\text{Bi}$ 的反应截面。计算结果见表 7。

其他作者的实验结果^[10]、Geant4 (INCL++/ABLA) 的计算结果以及质子能量低于 200 MeV 的 TENDL-2019 库和 TENDL-2021 库的截面评价结果^[24] 与本工作获得的结果进行了比较, 如图 6 所示。

2.2 $^{\text{nat}}\text{Pb}(\text{p},\text{x})^{194}\text{Hg}$ 的反应截面

使用能量为 328.5 keV (62.8%) 和 293.5 keV (10.9%) 的 γ 射线, 对 $^{\text{nat}}\text{Pb400}$ 的测量谱中的 $^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$ 进行了测定。如 §1.3 所述, 在 $^{\text{nat}}\text{Pb100}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Pb70}$ 和 $^{\text{nat}}\text{Pb40}$ 样品的测量谱中, 未发现 $^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$ 核素的存在。表 8 中列出了根据式(2)近似计算的 ^{194}Hg 核素活度。

基于 $^{194}\text{Hg} (^{194}\text{Au})$ 的活度和对应样品的模拟结果, 根据式(1)计算了不同质子能量下 $^{\text{nat}}\text{Pb}(\text{p},\text{x})^{194}\text{Hg}$ 的反应截面。计算结果见表 9。

面评价结果与本工作获得的结果进行了比较, 如图 7 所示。

表 7 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 的反应截面
Table 7 Cross-sections of $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$

质子能量 Energy of proton / MeV	$(\Phi \pm \Delta\Phi)$ / $10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$	$(R \pm \Delta R)$ / 10^{-16} s^{-1}	$(\sigma \pm \Delta\sigma)$ / mb
38.0 ± 1.0	1.39 ± 0.12	5.66 ± 0.11	40.70 ± 3.59
68.9 ± 0.8	0.84 ± 0.06	1.62 ± 0.03	19.31 ± 1.43
99.3 ± 0.8	1.43 ± 0.10	1.88 ± 0.04	13.15 ± 0.96
400 ± 2	6.78 ± 0.50	1.97 ± 0.04	2.90 ± 0.22

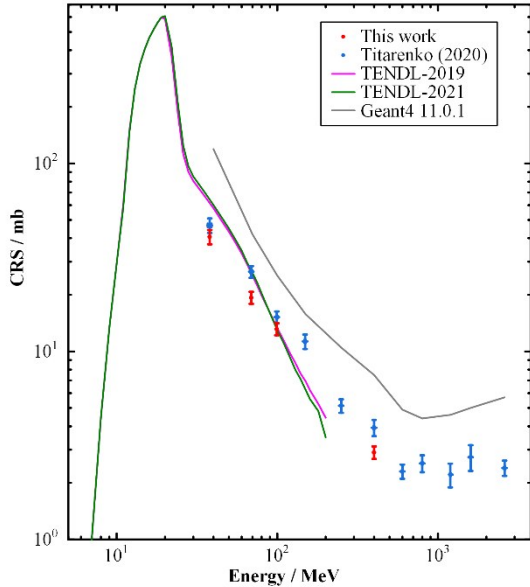


图 6 本工作 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 截面计算结果(红色)同其他作者的实验结果(蓝色)、TENDL-2019 的评价结果(品红色)、TENDL-2021 的评价结果(绿色)以及 Geant4 的模拟计算结果(灰色)的比较(彩图见网络版)

Fig.6 Calculated cross-sections of $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ reaction in this research (red) vs. the results of other authors (blue), the evaluated cross sections from TENDL-2019 (magenta) and TENDL-2021 (green), and simulated data by Geant4 (gray) (color online)

表 8 ^{194}Hg 核素的活度
Table 8 ^{194}Hg nuclide activity

样品 Sample	活度 Activity / Bq 0 mm 高度 0 mm height	40 mm 高度 40 mm height	均值 Average value
$^{nat}\text{Pb}400$	0.200 ± 0.008	0.194 ± 0.006	0.196 ± 0.005

2.3 不同来源的不确定度贡献

在 §1.5 中描述了结果不确定度的评估方法, 在本工作中, 截面的不确定度主要包括活度的不确定度 $\Delta\sigma_A$ 、半衰期的不确定度 $\Delta\sigma_T$ 和质子通量密度的不确定度 $\Delta\sigma_\phi$ 。为了更容易与其他实验结果进行比

表 9 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 的反应截面
Table 9 Cross-sections of $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$

质子能量 Energy of proton / MeV	$(\Phi \pm \Delta\Phi) / 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$	$(R \pm \Delta R) / 10^{-16} \text{ s}^{-1}$	$(\sigma \pm \Delta\sigma) / \text{mb}$
400 ± 2	6.78 ± 0.50	38.70 ± 4.47	57.07 ± 7.83

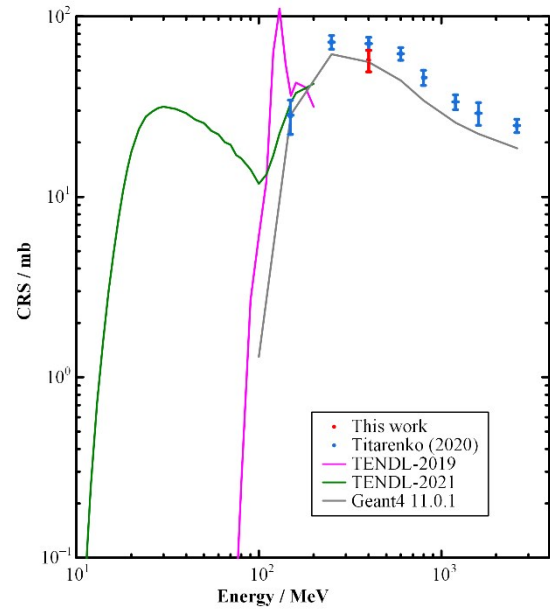


图 7 本工作 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 截面计算结果(红色)同其他作者的实验结果(蓝色)、TENDL-2019 的评价结果(品红色)、TENDL-2021 的评价结果(绿色)以及 Geant4 的模拟计算结果(灰色)的比较(彩图见网络版)

Fig.7 Calculated cross-sections of $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ reaction in this research (red) vs. the results of other authors (blue), the evaluated cross sections from TENDL-2019 (magenta) and TENDL-2021 (green), and simulated data by Geant4 (gray) (color online)

较, 将结果的不确定度划分为不同的不确定度来源, 如表 10 和表 11 所示。总不确定度 $\Delta\sigma_{\text{sum}}$ 由各不确定度分量的平方和表示。

对于 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 的截面, 质子通量密度的不确定度是总不确定度的主要来源。此外, 活度的不确定度也占据了总不确定度的一部分。由于 ^{207}Bi 的半衰期数据较为准确, 半衰期带来的不确定度几乎可以忽略不计。 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 的截面不确定度与 ^{207}Bi 的情况有所不同。 ^{194}Hg 的半衰期具有较大的相对不确定度, 这使其成为总不确定度的主要来源。质子通量密度和活度的不确定度也占据总不确定度的一部分。

活度的不确定度在本工作中是来自于实验和分析的关键不确定度来源, 有必要根据式(4)进一步分析来自于全能峰净计数和探测效率的不确定度来源(分别表示为 δN 和 $\delta\epsilon$), 其中探测效率的不确定度分为统计不确定度(statistical uncertainty, stat.)和系统不确定度(systematic uncertainty, syst.)两部分, 表 12 和表 13 分别列出了在两种核素的分析中活度不确定度的各组成部分。

表 11 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 截面不确定度的组成
Table 11 Uncertainty composition of results for $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$

质子能量 Energy of proton / MeV	$\Delta\sigma_A$ / mb	$\Delta\sigma_T$ / mb	$\Delta\sigma_\phi$ / mb	$\Delta\sigma_{\text{sum}}$ / mb
400 ± 2	1.39	6.45	4.21	7.83

表 10 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 截面不确定度的组成
Table 10 Uncertainty composition of results for $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$

质子能量 Energy of proton / MeV	$\Delta\sigma_A$ / mb	$\Delta\sigma_T$ / mb	$\Delta\sigma_\phi$ / mb	$\Delta\sigma_{\text{sum}}$ / mb
38.0 ± 1.0	0.76	0.03	3.51	3.59
68.9 ± 0.8	0.40	0.01	1.38	1.43
99.3 ± 0.8	0.29	0.01	0.92	0.96
400 ± 2	0.06	0.002	0.21	0.22

3 结语

使用 GeTHU 超低本底 γ 谱仪在 CJPL 测量了 $^{nat}\text{Pb}400$ 、 $^{nat}\text{Pb}100$ 、 $^{nat}\text{Pb}70$ 和 $^{nat}\text{Pb}40$ 4 个质子轰击天

然铅样品的能谱,所有样品的能谱测量分别在两个位置进行:在探测器低温腔 0 mm 高度处和探测器低温腔上方 40 mm 高度处。使用蒙特卡罗模拟框架 SAGE 中的衰变模拟模式计算对应放射性核素的探测效率,通过 γ 谱分析计算 $^{nat}\text{Pb}400$ 、 $^{nat}\text{Pb}100$ 、 $^{nat}\text{Pb}70$ 和 $^{nat}\text{Pb}40$ 样品中感兴趣核素的活度。在 4 种不同能量质子(40 MeV、70 MeV、100 MeV 和 400 MeV)轰击下,天然铅靶中 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 反应的总产生截面分别为 (40.70 ± 3.59) mb、 (19.31 ± 1.43) mb、 (13.15 ± 0.96) mb 和 (2.90 ± 0.22) mb。在 400 MeV 能量的质子轰击下,天然铅靶中 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 反应的总产生截面为 (57.07 ± 7.83) mb,在 100 MeV 能量以下的质子轰击天然铅靶中没有显著的 ^{194}Hg 产物信号发现。

本文所进行的实验和分析表明,使用 CJPL 的超低本底 γ 谱仪 GeTHU,可以探测和识别样品中活度较低的长寿命核素,并计算相应核素的反应截面。通过本实验的实验结果,可以推测 ^{nat}Pb 与高能质子反应最终生成 ^{194}Hg 的各类反应在 100 MeV 的质子入射能以下的反应截面小于当前探测器的灵敏度,部分反应的阈值能量可能超过 100 MeV。

表 12 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$ 活度不确定度的组成
Table 12 Uncertainty composition of activity for $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{194}\text{Hg}$

样品 Sample	测量距离 Distance of detection / mm	特征 γ 射线 Characteristic γ -ray					
		293.55 keV			328.47 keV		
		$\delta N / \%$	$\delta\epsilon$ (stat.) / %	$\delta\epsilon$ (syst.) / %	$\delta N / \%$	$\delta\epsilon$ (stat.) / %	$\delta\epsilon$ (syst.) / %
$^{nat}\text{Pb}400$	0	6.0	1.5	1.8	1.3	1.3	4.3
	40	6.1	1.6	3.0	1.8	1.3	2.8

表 13 $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$ 活度不确定度的组成
Table 13 Uncertainty composition of activity for $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{207}\text{Bi}$

样品 Sample	测量距离 Distance of detection / mm	特征射线 Characteristic γ -ray					
		569.70 keV			1 063.66 keV		
		$\delta N / \%$	$\delta\epsilon$ (stat.) / %	$\delta\epsilon$ (syst.) / %	$\delta N / \%$	$\delta\epsilon$ (stat.) / %	$\delta\epsilon$ (syst.) / %
$^{nat}\text{Pb}40$	0	0.5	0.2	4.4	0.8	0.5	4.3
	40	0.8	0.4	3.2	1.2	0.7	3.0
$^{nat}\text{Pb}70$	0	1.2	0.2	4.4	1.8	0.5	4.3
	40	1.7	0.4	2.9	2.5	0.7	3.2
$^{nat}\text{Pb}100$	0	1.5	0.2	4.4	2.2	0.5	4.3
	40	2.0	0.4	3.3	3.1	0.7	2.7
$^{nat}\text{Pb}400$	0	1.7	0.2	4.5	2.6	0.5	4.3
	40	2.4	0.4	3.1	3.6	0.7	2.2

致谢 感谢曾炜赫对蒙特卡罗模拟工作的帮助。

作者贡献声明 刘奇泽负责实施研究,分析/解释数据,起草文章;欧宇福负责酝酿和设计实验,实施研究,起草文章;景明坤负责实施研究,采集数据;代文翰负责实施研究,分析/解释数据;曾志负责对文章

的知识性内容作批评性审阅,获取研究经费,行政、技术或材料支持,指导;薛涛负责指导,支持性贡献;田阳负责指导,支持性贡献;曾鸣负责指导,支持性贡献;马豪负责指导,支持性贡献;Titarenko Yu E 负责对文章的知识性内容作批评性审阅,获取研究经费,行政、技术或材料支持,指导;Pavlov K V、

Titarenko A Yu, Zhivun V M, Kovalishin A A, Kulevoy T V 和 Khalikov R S 负责指导, 支持性贡献。

参考文献

- 1 Kapoor S. Accelerator-driven sub-critical reactor system (ADS) for nuclear energy generation[J]. *Pramana*, 2002, **59**(6): 941 – 950. DOI: [10.1007/s12043-002-0143-z](https://doi.org/10.1007/s12043-002-0143-z).
- 2 Nifenecker H, Meplan O, David S. Accelerator driven subcritical reactors[M]. Bristol: IOP Publishing Ltd, 2003. DOI: [10.1887/0750307439](https://doi.org/10.1887/0750307439)
- 3 Titarenko Y E, Batyaev V F, Mulambetov R D, *et al.* Excitation functions of product nuclei from 40 to 2 600 MeV proton-irradiated $^{206,207,208, nat}\text{Pb}$ and ^{209}Bi [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2006, **562**(2): 801 – 805. DOI: [10.1016/j.nima.2006.02.059](https://doi.org/10.1016/j.nima.2006.02.059).
- 4 Titarenko Yu E, Batyaev V F, Karpikhin E I, *et al.* Experimental and theoretical studies of the yields of residual product nuclei produced in thin Pb and Bi targets irradiated by 40 ~ 2 600 MeV protons[R]. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2009.
- 5 Aleksandrov Y V, Vasiljev S K, Ivanov R B, *et al.* Cross sections for the production of radionuclides in lead target irradiated with 660 MeV protons[C]. International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Vol.2, 1996.
- 6 Gloris M, Michel R, Herpers U, *et al.* Production of residual nuclei from irradiation of thin Pb-targets with protons up to 1.6 GeV[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 1996, **113**: 429–433.
- 7 Kuhnenn J, Herpers U, Glasser W, *et al.* Thin target cross sections for proton-induced production of radionuclides from lead for $E(P) < 71$ MeV[J]. *Radiochimica Acta*, 2001, **89**: 697.
- 8 Kuhnenn J. Thin target cross sections for proton-induced production of radionuclides from lead and bismuth over the proton energy range from 9 to 71 MeV[D]. Universitaet Koeln, Germany, 2001.
- 9 Gloris M, Michel R, Sudbrok F, *et al.* Proton-induced production of residual radionuclides in lead at intermediate energies[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2001, **463**: 593 – 633.
- 10 Titarenko Y E, Batyaev V F, Pavlov K V, *et al.* $^{208, 207, 206, nat}\text{Pb}(p, x)^{207}\text{Bi}$ and $^{209}\text{Bi}(p, x)^{207}\text{Bi}$ excitation functions in the energy range of 0.04~2.6 GeV[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2020, **984**: 164635. DOI: [10.1016/j.nima.2020.164635](https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164635).
- 11 Titarenko Y E, Batyaev V F, Pavlov K V, *et al.* $^{206,207,208, nat}\text{Pb}(p, x)^{194}\text{Hg}$ and $^{209}\text{Bi}(p, x)^{194}\text{Hg}$ excitation functions in the energy range 0.04~2.6 GeV[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2022, **1026**: 166151. DOI: [10.1016/j.nima.2021.166151](https://doi.org/10.1016/j.nima.2021.166151).
- 12 Cheng J P, Kang K J, Li J M, *et al.* The China Jinping underground laboratory and its early science[J]. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, 2017, **67**: 231 – 251. DOI: [10.1146/annurev-nucl-102115-044842](https://doi.org/10.1146/annurev-nucl-102115-044842).
- 13 Wu Y C, Hao X Q, Yue Q, *et al.* Measurement of cosmic ray flux in the China JinPing underground laboratory[J]. *Chinese Physics C*, 2013, **37**(8): 086001. DOI: [10.1088/1674-1137/37/8/086001](https://doi.org/10.1088/1674-1137/37/8/086001).
- 14 Zeng Z, Su J, Ma H, *et al.* Environmental gamma background measurements in China Jinping Underground Laboratory[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2014, **301**(2): 443 – 450. DOI: [10.1007/s10967-014-3114-1](https://doi.org/10.1007/s10967-014-3114-1).
- 15 Zeng Z, Mi Y H, Zeng M, *et al.* Characterization of a broad-energy germanium detector for its use in CJPL[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2017, **28**(1): 7. DOI: [10.1007/s41365-016-0162-y](https://doi.org/10.1007/s41365-016-0162-y).
- 16 Zeng W H, Ma H, Zeng M, *et al.* Evaluation of cosmogenic activation of copper and germanium during production in Jinping Underground Laboratory[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2020, **31**(5): 50. DOI: [10.1007/s41365-020-00760-3](https://doi.org/10.1007/s41365-020-00760-3).
- 17 Kajino T. Underground laboratory JUNA shedding light on stellar nucleosynthesis[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2023, **34**(3): 42. DOI: [10.1007/s41365-023-01196-1](https://doi.org/10.1007/s41365-023-01196-1).
- 18 Zeng Z, Mi Y H, Ma H, *et al.* The characteristics of a low background germanium gamma ray spectrometer at China JinPing underground laboratory[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2014, **91**: 165 – 170. DOI: [10.1016/j.apradiso.2014.05.022](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.05.022).
- 19 Chu S Y F, Ekström L P, Firestone R B. The Lund/LBNL nuclear data search[DB/OL]. (1999-02)[2022-06]. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.

-
- 20 She Z, Ma H, Zeng W, *et al.* SAGE: a Monte Carlo simulation framework for experiments with germanium detectors[J]. *Journal of Instrumentation*, 2021, **16**(9): T09005. DOI: [10.1088/1748-0221/16/09/t09005](https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/09/t09005).
- 21 Allison J, Amako K, Apostolakis J, *et al.* Recent developments in Geant4[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2016, **835**: 186–225.
- 22 Allison J, Amako K, Apostolakis J, *et al.* Geant4 developments and applications[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2006, **53**(1): 270 – 278. DOI: [10.1109/TNS.2006.869826](https://doi.org/10.1109/TNS.2006.869826).
- 23 Agostinelli S, Allison J, Amako K, *et al.* Geant4—a simulation toolkit[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **506**(3): 250 – 303. DOI: [10.1016/s0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/s0168-9002(03)01368-8).
- 24 Koning A J, Rochman D, Sublet J C, *et al.* TENDL: complete nuclear data library for innovative nuclear science and technology[J]. *Nuclear Data Sheets*, 2019, **155**: 1 – 55. DOI: [10.1016/j.nds.2019.01.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2019.01.002).