

基于优化算法的中子自屏蔽修正方法研究

肖宸珉¹, 张镇华¹, 杨晓艳², 邢立腾³, 程 璨⁴, 贾文宝¹

(1. 南京航空航天大学, 南京 211106;

2. 内蒙古自治区计量测试研究院, 呼和浩特 010040;

3. 江苏省计量科学研究院(江苏省能源计量数据中心), 南京 210023;

4. 南京工业大学, 南京 210023)

摘要: 瞬发伽马中子活化分析(PGNAA)技术可以对大体积样品进行元素无损检测, 然而测量过程中的中子自屏蔽效应会导致实验测量值与实际值偏差较大, 本研究提出一种基于优化算法的修正方法, 实现对PGNAA技术测量过程中的中子自屏蔽修正。采用AmBe中子源与高纯锗探测器组成的PGNAA装置对水溶液中的硼元素进行分析, 对标准样品进行测量并结合MCNP模拟计算中子自屏蔽修正因子, 建立硼元素浓度与特征伽马射线计数的校准曲线。之后利用MCNP模拟计算硼溶液的中子自屏蔽修正曲线, 并与差分进化算法结合建立的校准曲线对未知样品的浓度进行分析。留一法验证结果显示, 平均误差仅为1.5%, 验证了该方法对未知浓度含硼水溶液测量的可行性。

关键词: PGNAA; 中子自屏蔽; 优化算法; 经验曲线

中图分类号: TL814

文献标志码: A

文章编号: 1000-7512(2025)06-0568-07

doi: 10.7538/tws.2025.youxian.050

A Method for Correcting the Neutron Self-Shielding Based on Optimization Algorithms

XIAO Chenmin¹, ZHANG Zhenhua¹, YANG Xiaoyan², XING Liteng³,
CHENG Can⁴, JIA Wenbao¹

(1. *Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 211106, China;*

2. *Institute of Metrology and Testing of Inner Mongolia Autonomous Region, Hohhot 010040, China;*

3. *Jiangsu Institute of Metrology (Jiangsu Energy Measurement Data Center), Nanjing 210023, China;*

4. *Nanjing University of Technology, Nanjing 210023, China)*

Abstract: Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) is a nondestructive technique for elemental analysis of large-volume samples. However, the presence of neutron self-shielding effects during measurements can cause significant discrepancies between measured and true values. To address this issue, this study proposes a correction method based on an optimization algorithm to compensate for neutron self-shielding in PGNAA measurements. An experimental setup consisting of an AmBe neutron source and a high-purity germanium detector was employed to analyze boron in

收稿日期: 2025-06-16; 修回日期: 2025-07-25

基金项目: 国家重点研发计划(2023YFF0717003), 江苏省市场监督管理局科技计划项目(KJ2024009), 放射医疗协同创新中心(YF202301)

通信作者: 程 璨, 贾文宝

aqueous solutions. Standard samples were measured, and neutron self-shielding correction factors derived from MCNP simulations were used to establish a calibration curve relating boron concentration to characteristic gamma-ray counts. A neutron self-shielding correction curve for boron solutions was then computed via MCNP simulations and incorporated into a calibration model developed using the differential evolution algorithm to estimate the concentrations of unknown samples. Validation using leave-one-out cross-validation demonstrated an average relative error of 1.5%, confirming the feasibility of the proposed method for accurately determining boron concentrations in aqueous solutions of unknown composition.

Key words: PGNAA; neutron self-shielding; optimization algorithm; empirical curve

瞬发伽马中子活化分析(prompt gamma neutron activation analysis, PGNAA)技术是一种非破坏性的物质成分分析技术^[1]。主要是通过中子源发射出的中子与样品发生各种反应发射出瞬发特征伽马射线,通过对发射出的伽马射线的能量和强度进行测量与分析,可以确定样品中所含有的元素种类及其含量。PGNAA技术可以测量元素周期表上的绝大部分元素,尤其在分析(n,γ)反应截面较大的元素(B、Cd、Gd、H等)。与红外光谱分析技术(IR)^[2]、原子吸收光谱法(AAS)^[3]、电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)^[4]和X射线荧光分析技术(XRF)^[5]等元素分析技术不同,PGNAA技术具备分析时间短、检测精度高、大体积、实时在线全元素同时分析等优点,且不受样品形貌影响,可以满足绝大部分样品成份的在线分析^[6-7]。这项技术常用于煤炭行业、环境监测、冶金工业和核能领域等^[8-12]多个领域。

中子自屏蔽效应在厚样品或对中子吸收截面大的材料(如镉、硼)中影响显著,可能引起非线性响应,导致核素浓度的实验测量值和实际值偏差较大^[13-14]。因此需要对中子自屏蔽效应进行修正。目前,中子自屏蔽修正主要有三种方法,分别是理论计算法,外部监测法和内部标定法。理论计算法根据中子输运理论,获取中子场分布进而实现中子自屏蔽修正^[15-17]。还可使用MCNP计算中子自屏蔽修正因子^[18],但都需要已知样品的中子吸收截面、样品信息等等各种条件。外部监测法主要引入外部探测系统来进行中子自屏蔽修正^[19],该方法需要引入额外的中子探测系统,增加了实验的复杂性和成本。内部标定法通过引入内标核素,对中子

自屏蔽进行修正^[20-22]。内标核素在实验过程中需要保持含量基本不变并且特征峰明显易于观察分析。

本研究提出一种基于优化算法的中子自屏蔽修正方法,该方法无需引入新的核素或额外的探测系统。通过测量已知浓度的含硼溶液获取本装置下的硼元素校正曲线,同时使用MCNP模拟得到不同浓度的含硼溶液与中子自屏蔽修正因子的经验曲线。最后,利用校正曲线与优化算法相结合的方式来计算未知样品的硼元素浓度,验证该方法的可行性。

1 实验装置及原理

1.1 实验装置

PGNAA测量装置示意图示于图1。采用AmBe中子源,其核心结构为一枚活度300 mCi的AmBe同位素中子源,封装于石蜡屏蔽层内部,石蜡屏蔽层的尺寸为85 cm×85 cm×85 cm,并整体置于铅包裹的直径10 cm准直器内,中子源与准直器出口的距离约为18 cm。通过聚乙烯滑杆可对其位置进行前后调节,从而控制准直器出口处的中子通量。实验中用于探测瞬发伽马射线的探测器为Ortec公司生产的同轴型N型高纯锗(HPGe)探测器,具体型号为TRANSPEC-N,其相对效率约50%,在1.33 MeV能量处的能量分辨率为2.12 keV。在探测器和样品桌下方有含硼聚乙烯起到保护作用。

采用5 L的H₃BO₃溶液为样品,将H₃BO₃粉末溶解在一个直径为18 cm,高度为22 cm的圆柱形烧杯中,总共设置了六组,分别为纯水,1、2、3、4、5 g/L H₃BO₃溶液。AmBe中子源的出射口距离烧杯中心为18 cm,烧杯中心距离探测器表面距离为14 cm,为了降低统计性带来的误

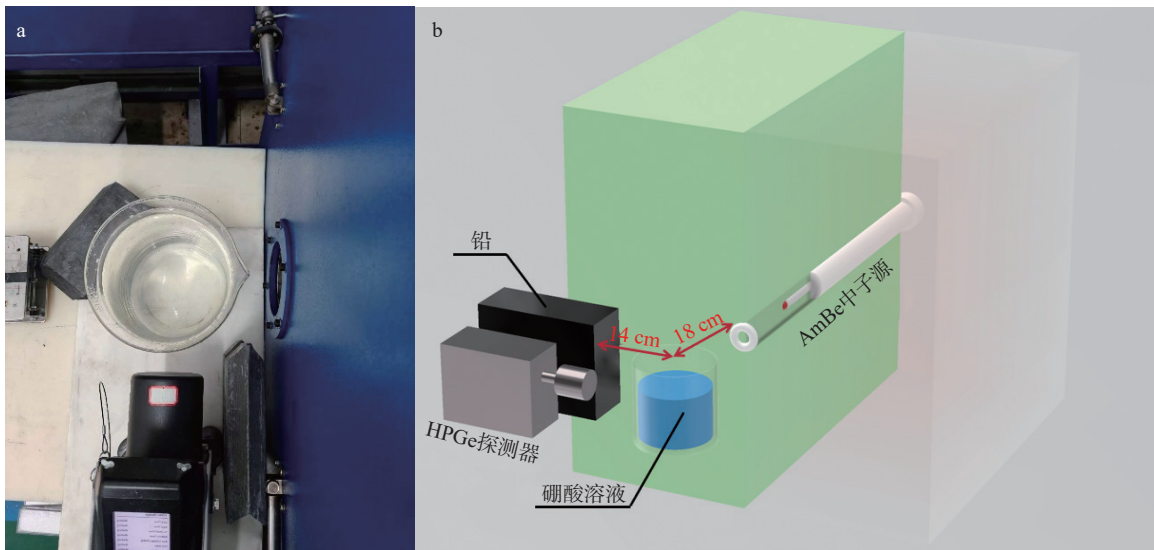


图1 PGNAA测量装置图(a)及示意图(b)

Fig.1 Diagram of the PGNAA measurement device (a) and schematic diagram (b)

差, 单次样品的测量时间为 8 h。

1.2 实验原理

利用 PGNAA 技术对硼元素的含量进行测量。硼元素主要由 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ 反应, 发射 0.478 MeV 的特征伽马射线, 同时产生 α 粒子和 ^7Li 核。 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ 反应具有较大的热中子吸收截面 ($\sigma(n,\alpha)=3848.58\text{ b}$)^[23], 该反应产生的 ^7Li 以 94% 的概率被激发。被激发的 ^7Li 在几皮秒内发射 0.478 MeV 的伽马射线返回到基态。本实验主要分析 0.478 MeV 的硼元素特征峰。

实验测量得到的伽马射线净面积大小 A 可以通过式(1)计算:

$$A = \phi \frac{m}{M} N_A \sigma \epsilon t \quad (1)$$

式中, A 为核素的伽马特征峰净面积; ϕ 为样品内部平均中子通量, $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-2}$; m 为待测核素的质量, g ; M 为待测核素的原子量, $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$; N_A 为阿伏伽德罗常数, mol^{-1} ; σ 为中子和核素反应产生该特征峰的截面, b ; ϵ 为探测器的探测效率; t 为测量时间, s 。

由于样品会与 AmBe 中子源发射出来的中子发生相互作用, 通常为散射反应、俘获反应等, 导致样品内部的中子通量 ϕ 也会随着样品中 B 元素浓度变化而变化, 也就是中子自屏蔽效应。进而使得不同浓度样品下中子与样品中 B 元素的反应率, 从而使得 A 的变化呈现非线性, 因此需要进行中子自屏蔽修正。

2 结果与分析

2.1 伽马能谱分析

通过高纯锗探测器测量样品发射的瞬发伽马能谱示于图 2。由瞬发伽马能谱的局部放大图可见, 随着 B 元素含量的增加, B 元素的特征峰强度也随之增加。本底中的 B 元素特征峰主要来自于屏蔽体中的含硼聚乙烯材料。

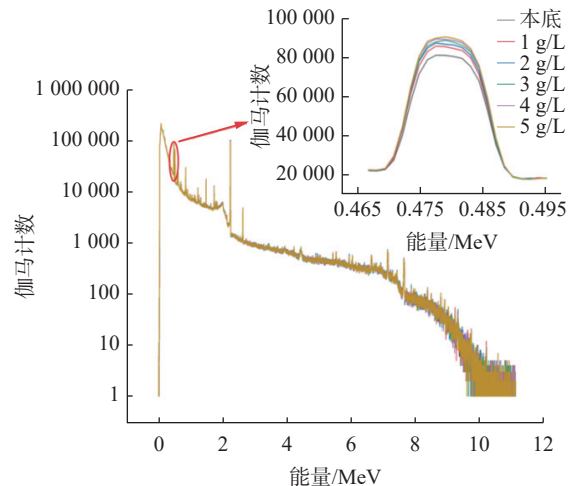


图2 中子瞬发伽马能谱

Fig.2 Neutron prompt gamma-ray spectrum

由图 2 可以看出, B 元素的 0.478 MeV 特征伽马峰的波形有明显的展宽, 并不是常见的高斯波形。这主要是由于 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ 反应过程中, α 粒子作为反冲核会以不同的能量朝不同的方向发射, 导致能谱上的 0.478 MeV 能量附

近呈现出明显的多普勒展宽^[24]。因此,不能采用直接计数法来计算B峰的净计数,通常采用单数值积分或双数值积分等峰值拟合方法对B峰进行拟合。本研究利用GAMMAFIT软件^[25]对B峰进行拟合,图3为拟合得到的B峰。从图3中可以看出,实验数据与拟合结果符合较好。

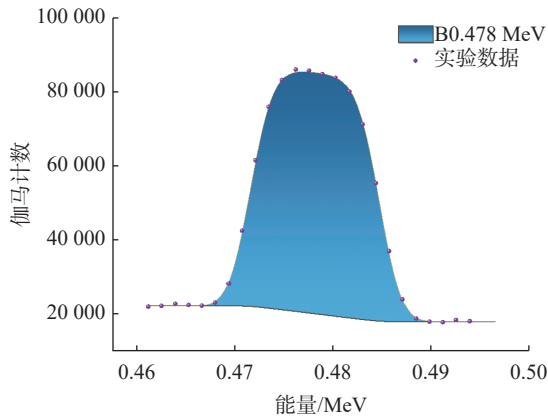


图3 GAMMAFIT 拟合的硼元素特征峰

Fig.3 Boron characteristic peak fitted by GAMMAFIT

将实验测得所有样品的伽马计数进行拟合,再将拟合后得到的所有样品的伽马计数减去本底伽马计数,即可得到各浓度下的伽马特征峰净面积(修正前),将该值记作 A_1 。结果示于图4,由图4可见,修正前硼酸浓度与伽马计数的线性关系较差。

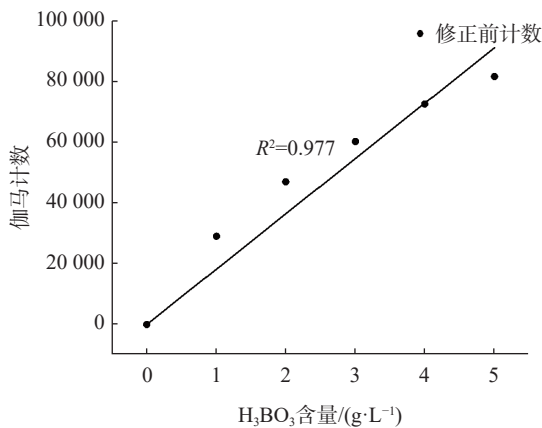


图4 不同含量硼元素的伽马计数

Fig.4 Gamma counts of boron elements with different concentrations

2.2 蒙特卡罗模拟

本研究蒙特卡罗模拟选用的为MCNP5(截

面数据库为EBDF/B-VII.1)。为了降低中子自屏蔽效应带来的影响,使用MCNP5进行模拟计算,模拟的模型按照实验布局来进行设置,通过F4计数卡记录五种浓度样品内的平均中子通量 ϕ_i ($i=1,2,3,4,5$)以及纯水的平均中子通量 ϕ_0 。用测量得到的平均热中子通量根据式(2)计算得到中子自屏修正因子 f_n 。

$$f_n = \frac{\phi_i}{\phi_0} \quad (2)$$

式中, f_n 为中子自屏蔽修正因子; ϕ_0 为MCNP计算得到的无样品(纯水溶液)内的平均中子通量, $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-2}$; ϕ_i 为不同含量的样品内的平均中子通量, $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}$ 。利用MCNP对不同浓度的B溶液中的热中子通量进行计算,得到中子自屏蔽修正因子与硼酸浓度的关系示于图5,采用指数函数的曲线进行拟合,拟合得到的方程示于图5。

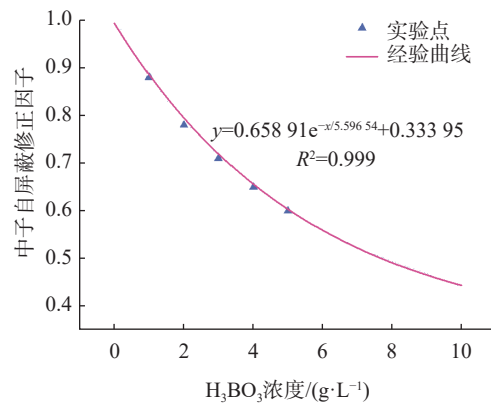


图5 不同含量硼元素与中子自屏蔽修正因子的经验曲线

Fig.5 Empirical curve relating boron concentrations to neutron self-shielding correction factors

将实验得到的伽马特征峰净面积 A_1 ,以及MCNP模拟计算得到的中子自屏修正因子 f_n 通过公式(3)计算得出修正后的伽马特征峰净面积 A_2 。

$$A_2 = \frac{A_1}{f_n} \quad (3)$$

式中, A_1 为修正前伽马特征峰净面积; A_2 为修正后伽马特征峰净面积。将 A_2 与硼酸溶液浓度进行拟合即可得到硼元素的校正曲线,如图6所示。可以看出,经过中子自屏蔽修正后,伽马特征峰面积与B元素浓度呈现线性关系($R^2=0.997$)。

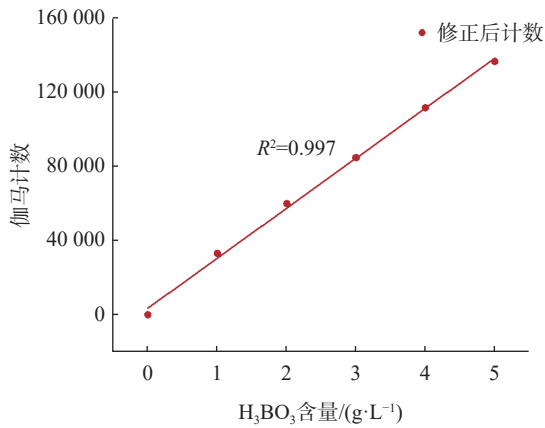


图 6 硼元素的校正曲线

Fig.6 Correction curve for boron element

2.3 差分进化算法

差分进化算法^[26]预测未知浓度样品(针对硼酸溶液)流程图示于图7。通过实验设置好的PGNAA装置对未知浓度样品进行检测,由高纯锗探测器探测样品产生的瞬发伽马射线得到未知样品的伽马信息。根据该伽马信息得到未知样品浓度的大致范围,由优化算法给出一组预测浓度 X_i ,将该值带入经验曲线中得到对应的自屏修正因子 f_i ,再通过公式(3)算出修正后的伽马特征峰净面积,并根据校正曲线,计算出样品浓度 Y_i ,计算相对误差 $\delta = \frac{|A_i - A_j|}{A_i}$ (其中

A_i 为探测器测量得到的伽马特征峰净面积, A_j 为由经验曲线计算得到的伽马特征峰净面积),当相对误差收敛并趋于0时,输出最佳的浓度 X 。

采用留一法对上述优化算法流程进行验证,初始变量为0~10 g/L,设置100代进化轮数,每轮种群大小为5,维度为1。分别选择2、3、4 g/L的硼酸溶液作为未知样品,将实验测得的伽马计数 A_i 输入优化算法中进行迭代,当迭代100次时满足终止条件,迭代时间为2 s。在进行至40轮时,相对误差(RE)基本趋近于0,示于图8。留一法对优化算法进行验证的结果列于表1,平均偏差为1.5%。

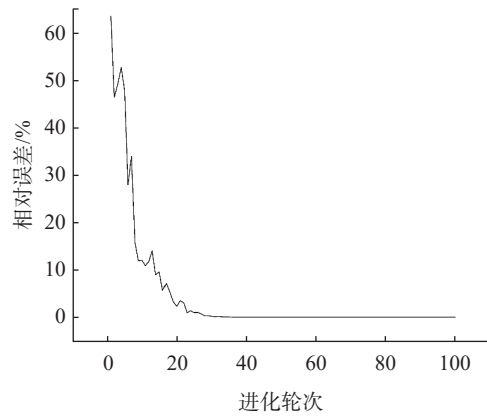


图 8 进化轮次与相对误差的关系图

Fig.8 Correlation diagram of evolution generations versus relative error

表 1 留一法验证结果

Table 1 Leave-one-out validation results

实际浓度/(g·L ⁻¹)	预测浓度/(g·L ⁻¹)	偏差/%
2	2.05	2.50
3	2.96	1.33
4	3.97	1.00

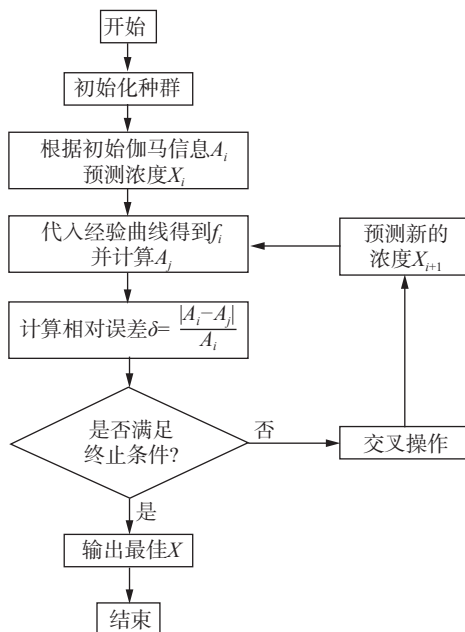


图 7 差分进化算法流程

Fig.7 Flow chart of differential evolution for function optimization

3 结论

本研究针对硼元素在水溶液中因中子自屏蔽效应导致的测量偏差问题,提出了一种基于优化算法和经验曲线相结合的中子自屏蔽修正方法。实验表明,该方法能够有效地修正中子自屏蔽效应,并在该装置下能准确地测量未知样品中硼元素的浓度。

结果表明,经过MCNP计算修正后,得到校正曲线($R^2=0.997$),并建立了中子自屏蔽修正因

子与硼酸浓度的经验曲线。通过留一法对差分进化算法结合经验曲线对未知样品浓度预测方法进行验证,结果显示对 2、3、4 g/L 的预测结果的误差分别为 2.5%、1.33% 和 1.5%,平均误差为 1.5%,验证了该方法的可行性。该方法目前只针对单元素进行修正,后续工作将该方法运用于多元素同时修正,多元素同时修正将显著提升效率,缩短分析时间。

参考文献:

- [1] 王兴华,孙洪超,姚永刚,等. PGNAA 方法学的发展与现状[J]. *同位素*, 2014, 27(4): 251-256.
Wang Xinghua, Sun Hongchao, Yao Yonggang, et al. Development and status of prompt gamma neutron activation analysis technique methodology[J]. *Journal of Isotopes*, 2014, 27(4): 251-256 (in Chinese).
- [2] Ng L M, Simmons R. Infrared spectroscopy[J]. *Anal Chem*, 1999, 71(12): 343R-350R.
- [3] Ferreira S L C, Bezerra M A, Santos A S, et al. Atomic absorption spectrometry—A multi element technique[J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2018, 100: 1-6.
- [4] Ammann A A. Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP MS): a versatile tool[J]. *Journal of Mass Spectrometry*, 2007, 42(4): 419-427.
- [5] Acquafredda P. XRF technique[J]. *Physical Sciences Reviews*, 2019, 4(8): 20180171.
- [6] 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.
- [7] Abdelnour M R, Liu J, Hossny K, et al. Prompt gamma neutron activation analysis: A review of applications, design, analytics, challenges, and prospects[J]. *Radiation Physics and Chemistry*, 2025, 234: 112693.
- [8] 杨丽芳,高翔. 应用 MOCA 程序设计煤料 PGNAA 实验装置[J]. *同位素*, 2018, 31(2): 93-98.
Yang Lifang, Gao Xiang. Design of the coal PGNAA device by MOCA program[J]. *Journal of Isotopes*, 2018, 31(2): 93-98 (in Chinese).
- [9] Naqvi A A, Maslehuddin M, Kalakada Z, et al. Prompt gamma ray evaluation for chlorine analysis in blended cement concrete[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2014, 94: 8-13.
- [10] Idiri Z, Mazrou H, Amokrane A, et al. Characterization of an Am-Be PGNAA set-up developed for *in situ* liquid analysis: application to domestic waste water and industrial liquid effluents analysis[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2010, 268(2): 213-218.
- [11] Khelifi R, Amokrane A, Bode P. Detection limits of pollutants in water for PGNAA using Am Be source[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2007, 262(2): 329-332.
- [12] Zhao L, Xu X, Lu J B, et al. Optimization of PGNAA device and algorithm for testing basicity index of sinter mixture[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2021, 32(1): 6.
- [13] Trkov A, Žerovnik G, Snoj L, et al. On the self-shielding factors in neutron activation analysis[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2009, 610(2): 553-565.
- [14] 吴志强,龚亚林. PGNAA 方法测量元素的非线性规律研究[J]. *同位素*, 2018, 31(6): 343-350.
Wu Zhiqiang, Gong Yalin. Nonlinear study of elemental measurements by PGNAA method[J]. *Journal of Isotopes*, 2018, 31(6): 343-350 (in Chinese).
- [15] Martinho E, Salgado J, Gonçalves I F. Universal curve of the thermal neutron self-shielding factor in foils, wires, spheres and cylinders[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2004, 261(3): 637-643.
- [16] Chilian C, St-Pierre J, Kennedy G. Complete thermal and epithermal neutron self-shielding corrections for NAA using a spreadsheet[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 278(3): 745-749.
- [17] Elmaghraby E K, Mahmoud A W, Salama E, et al. Mathematical formulae for neutron self-shielding properties of media in an isotropic neutron field[J]. *Physica Scripta*, 2024, 99(2): 025237.
- [18] Tzika F, Stamatelatos I E. Thermal neutron self-shielding correction factors for large sample instrumental neutron activation analysis using the MCNP code[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2004, 213: 177-181.
- [19] Xie Y, Cheng C, Zhang W, et al. Feasibility study of on-line monitoring gadolinium based on neutron induced gamma activation[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2023, 197: 110817.
- [20] Sudarshan K, Tripathi R, Nair A G C, et al. A simple method for correcting the neutron self-shielding effect of matrix and improving the analytical response in prompt gamma-ray neutron activation analysis[J]. *Analytica*

- Chimica Acta*, 2005, 549(1-2): 205-211.
- [21] Cheng C, Jia W, Hei D, et al. Efficiency calibration of HPGe detector in a PGNAA system for the measurement of aqueous samples[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2019, 145: 1-6.
- [22] Cai P, Hei D, Chen J, et al. Design of a DT neutron source based PGNAA facility for element determination in aqueous solution[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2022, 188: 110394.
- [23] Jafari M, Jafari H, Choopan Dastjerdi M H, et al. Investigation and comparison of NR and PGNAA for determining boron concentration in solution samples[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2025, 433: 113845.
- [24] 唐婵娟, 姚永刚, 肖才锦, 等. 瞬发 γ 中子活化分析测定微量硼[J]. *中国无机分析化学*, 2024, 14(12): 1705-1714.
- Tang Chanjuan, Yao Yonggang, Xiao Caijin, et al. Determination of boron by prompt gamma-ray neutron activation analysis[J]. *Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry*, 2024, 14(12): 1705-1714 (in Chinese).
- [25] Szentmiklósi L. Fitting special peak shapes of prompt gamma spectra[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2018, 315(3): 663-670.
- [26] Storn R. On the usage of differential evolution for function optimization[C]//Proceedings of North American Fuzzy Information Processing. Berkeley, CA, USA: IEEE, 1996: 519-523.