

DOI: 10.20189/j.cnki.CN/61-1527/E.202603009

特殊核材料液闪快中子多重性与角关联 实验研究

李凯乐¹, 许 鹏^{1*}, 何汉涛², 黎素芬¹, 彭乐燚¹

(1. 火箭军工程大学, 西安 710025;

2. 中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413)

摘 要: 为精确、全面表征特殊核材料的物理属性, 鉴于有机闪烁体探测器可完整保留中子的时间、能量与角度信息的特点, 研制了一套基于液闪探测器的快中子多重性与中子-中子角关联联合测量系统。通过对比 EJ-301 与 BC-501 液闪探测器的 n/γ 甄别性能, 确定选用 n/γ 甄别性能更优的 BC-501 探测器 (品质因数 FOM 为 1.213) 搭建六探头环绕式测量装置, 并利用 ^{252}Cf 标准源完成探测效率与符合门因子的刻度。实验结果表明: Geant4 模拟测得系统平均中子探测效率为 8.37%, 符合辐射测量常见不确定度范围, 验证了装置的可靠性; 该系统测得的 ^{252}Cf 裂变中子各向异性平均值为 1.223 2, 验证了中子发射存在明显各向异性。对标准氧化钚与 MOX 芯块进行快中子多重性测量, 一、二、三重计数率与样品质量拟合度 R^2 均大于 0.99; MOX 芯块修正前偏差达 -71.21%~-68.18%, 经混合核素修正后降至 5.56%~15.15%, 表明系统能够有效建立多重性计数率与样品质量间的函数关系, 证明了联合测量方法在核材料属性认证中的应用潜力。

关键词: 核保障; 快中子多重性; 中子角关联; 液闪探测器; n/γ 甄别

中图分类号: O571.51

文献标志码: A

开放科学标识码 (OSID):

文章编号: 2097-2741(2026)03-0109-11



听
语
音
聊
科
研
与
作
者
互
动

在国家战略安全的宏观框架下^[1], 随着核能的深度利用, 核保障监督技术对于防止核材料扩散、确保其被和平利用变得至关重要^[2-3]。国际原子能机构 (International Atomic Energy Agency, IAEA) 的核心任务之一, 即是发展先进的无损检测技术, 对核材料的关键属性, 如质量、丰度、增殖系数等进行准确测定^[4-5]。快中子多重性计数技术通过分析裂变事件产生的瞬发中子多重性分布, 能够反演核材料的自发裂变率、中子增殖系数、有效质量等核心参数, 已成为核保障领域中测定钚材料质量的标准方法之一^[6-7]。然而, 传统基于“点模型”的快中子多重性方法在处理高增殖性或复

杂形状的样品时, 会引入显著的偏差^[8-9]。因此, 国内外研究者提出了多种修正策略, 例如, 黎素芬、李凯乐等^[10-11]发展了基于空间增值系数修正的加权点模型, 通过引入空间增值系数准确反映中子的非均匀增殖, 对高增殖样品计算精度高且运算量适中, 但系数需依赖模拟或实验刻度, 对复杂形状修正有限; Liu 等^[12]提出了双参数迭代修正法, 该方法无需先验增殖系数, 通过迭代同步反演, 对形状变化鲁棒性好, 但迭代结果对初始值选取较为敏感, 初始值选取不当可能导致不收敛或陷入局部极值; Geist 等^[13]也提出了改进的加权点模型方程以减小分析偏差, 该方法保持点模型

收稿日期: 2026-01-07

修回日期: 2026-03-26

录用日期: 2026-04-06

基金项目: 国家自然科学基金 (12475307)

第一作者: 李凯乐 (1996—), 男, 博士研究生, 主要从事国际核保障监督研究。

***通信作者:** 许鹏 (1976—), 男, 教授, 主要从事核技术与核安全研究。

引用格式: 李凯乐, 许鹏, 何汉涛, 等. 特殊核材料液闪快中子多重性与角关联实验研究[J]. 火箭军工程大学学报, 2026, 40 (3): 109-119. LI Kaile, XU Peng, HE Hantao, et al. Fast neutron multiplicity and neutron angular correlation of special nuclear materials based on liquid scintillation detectors [J]. Journal of Rocket Force University of Engineering, 2026, 40 (3): 109-119.

简洁形式,用加权因子校正效率空间变化,计算效率高,但加权因子需要精细标定,且该方法对强散射样品会引入二阶近似偏差。此外,利用人工智能算法进行数据拟合与反演等方法也得到研究人员的广泛探索与实践^[14-15],反映了核保障领域技术发展的一个共性趋势,即通过引入先进的信息处理与优化算法,从复杂信号中更有效地提取关键特征^[16-17]。

同时,探测技术的进步为获取更丰富的核材料指纹信息提供了新的可能。有机闪烁体探测器因其快速的时间响应和有效的脉冲形状甄别能力,被广泛应用于快中子探测^[18]。与需要慢化体的热中子探测器不同,有机闪烁体直接探测快中子,完整保留了中子的能量、时间及其原始的飞行方向信息^[19]。这一特性使得利用同一探测器阵列开展裂变中子角度关联性研究成为可能^[20]。中子-中子角关联反映了同一裂变事件中相继发射的中子之间的方向相关性,其分布与裂变碎片的角动量、发射中子能谱等微观物理过程密切相关,被认为是理解裂变机制和区分不同裂变核的重要观测量^[21-22]。近年来,该领域研究进展显著,在模拟方面,基于FREYA等程序的逐事件裂变模拟为角关联研究提供了强大工具^[23-24];在实验方面,多个国际研究团队利用球形阵列或井型装置,对²⁵²Cf自发裂变及钚金属组件的中子角关联和各向异性进行了详细测量,证实了裂变中子发射存在显著的非各向同性,并探讨了其与材料增殖特性等的关联^[25-27]。

综观国内外现有研究,快中子多重性测量与中子角关联测量虽同源于裂变中子场,且均与核材料的物理属性存在内在联系^[28-29],但当前研究工作大多独立开展。这种分离的研究模式,未能充分利用有机闪烁体探测器可同步获取时间关联与角度关联信息的先天优势。现有研究尚未系统探索如何将这两种互补的测量技术深度集成于同一实验平台,并通过对多重性、时间、角度等多维信息的联合分析与反演,形成对复杂核材料属性更鲁棒、更全面的认证能力。基于此,本研究旨在研制一套基于液体闪烁探测器的联合测量实验系统。首先,对比两种液闪探测器的性能,择优搭建测量装置,并完成对系统参数的刻度。进而利用该系统分别开展²⁵²Cf标准源的中子角关联测量,以及氧化钚、MOX芯块等特殊核材料的快中子多重性测量,验证装置的性能与联合测量的可行性。

1 测量系统设计与搭建

1.1 探测器选型与n/γ甄别性能分析

在特殊核材料构成的混合辐射场中,高效区分中子与γ射线是液闪探测器获得准确中子信息的前提,而n/γ信号甄别能力也是衡量探测器性能的一项重要参数指标。因此,本研究首先对比了两种常用液闪探测器EJ-301与BC-501的脉冲波形甄别(pulse shape discrimination, PSD)性能。PSD是一种基于脉冲信号形状特征来区分不同粒子类型的关键技术。其核心原因在于中子和γ射线在探测器中相互作用时产生的脉冲形状存在显著差异。在液闪探测器中,通常采用指数衰减来表示荧光脉冲的形状,可分为快、慢两种成分,表达式为

$$N(t) \approx \frac{N_f(\rho)}{\tau_f} e^{-t/\tau_f} + \frac{N_s(\rho)}{\tau_s} e^{-t/\tau_s} \quad (1)$$

式中: $N(t)$ 为光脉冲随时间的变化; ρ 为平均电离密度; $N_f(\rho)$ 、 $N_s(\rho)$ 分别为快、慢成分所包含的光子数; τ_f 、 τ_s 分别为快、慢成分的衰减时间,量级分别为ns和μs。不同入射粒子的快、慢成分的比值不同,γ信号的快成分大、慢成分小,而中子信号的快成分小、慢成分大。因此,中子与γ射线产生的光脉冲形状就存在差异。图1展示了通过BC-501液闪探测器测量得到的中子和γ射线脉冲波形。可以看出,γ射线脉冲波形通常具有较快的上升速度和较窄的脉冲宽度,而中子脉冲波形则表现出较慢的上升速度和较宽的脉冲宽度。

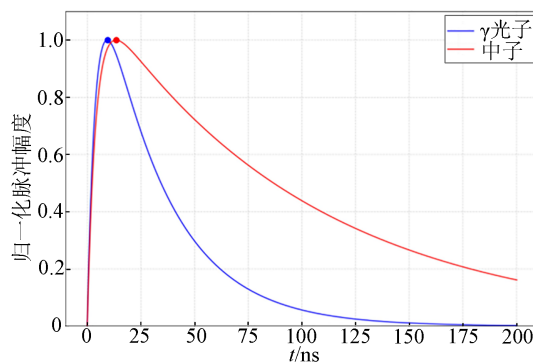


图1 BC-501液闪探测器探测信号脉冲波形

Fig. 1 Signals pulse waveform of liquid scintillation detector BC-501

这种波形差异主要是由于中子和γ射线与闪烁体材料相互作用的物理机制不同导致的。γ射线在有机介质中主要通过康普顿散射效应与物质相互作用,产生的次级电子在闪烁体中迅速传播并

激发荧光物质。中子则与闪烁体材料中的氢原子核发生散射效应, 产生的反冲质子在闪烁体中传播与激发速度较慢。由于中子与 γ 射线在液体闪烁体中产生的荧光快慢成分比例不同, 导致中子产生的脉冲信号有一个较长的“拖尾”。通过分析这些特征差异, PSD技术能够有效区分中子和 γ 射线, 从而实现高精度的粒子甄别。电荷比较法是一种较为成熟的脉冲波形甄别方法, 其利用 n/γ 信号下降沿区域的特征差异, 通过计算尾部区域积分电荷与脉冲总积分电荷的比值来实现脉冲甄别。图2为BC-501和EJ-301探测器所有脉冲信号的电荷积分比值统计直方图。

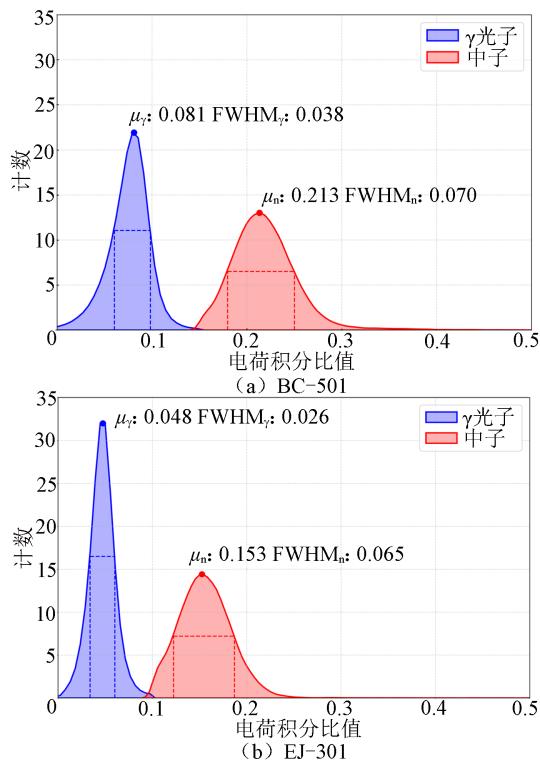


图2 电荷积分比值统计直方图

Fig. 2 Histogram of charge integration ratio statistics

从图2可以看出, 中子和 γ 射线能够被明显区分, 但在两峰之间还存在部分难以被甄别。通过该图可以找到最佳的比值来甄别 n/γ 信号, EJ-301为0.096 3, BC-501为0.146。为定量评估甄别能力, 引入品质因数 (figure of merit, FOM) 作为评价指标, 其值越大, 表明两峰分离度越好, 甄别能力越强。表达式为

$$F = \frac{\mu_n - \mu_\gamma}{H_n + H_\gamma} \quad (2)$$

式中: μ_n 和 μ_γ 分别代表中子和 γ 信号的电荷积分比值的均值; H_n 和 H_γ 分别代表中子和 γ 信号的电荷积分比值分布的半高宽。根据图2数据计算,

BC-501探测器的 F 值为1.222, 略高于EJ-301的1.154, 表明在本实验条件下, BC-501具有更优的 n/γ 甄别性能。图3展示了不同电荷积分比值与脉冲幅度的关系。可以看出, 对于幅度较低的脉冲, PSD性能较弱, 而对于高能输出部分, PSD性能较好。随着能量阈值的降低, 无论是EJ-301还是BC-501, 其 n/γ 甄别效果均会越来越差, 当低于0.5 MeV时, 两峰之间将有大量信号难以甄别。

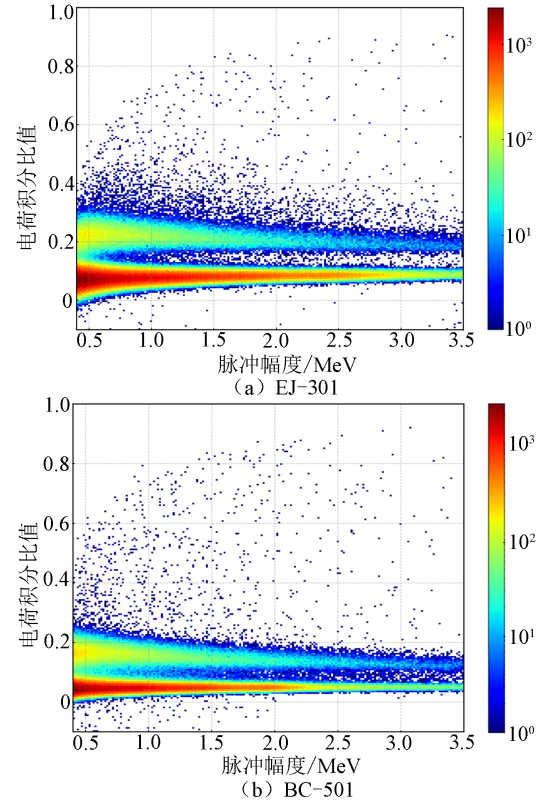


图3 不同电荷积分比值与脉冲幅度的关系

Fig. 3 Relationships between different charge integration ratios and pulse amplitudes

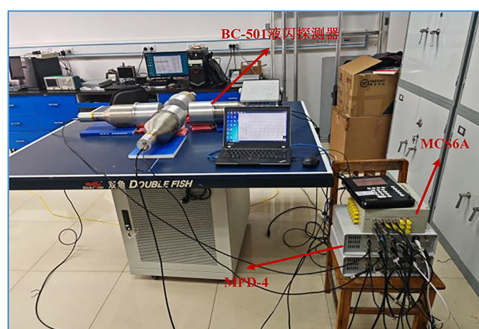
结合图2和图3可以发现, BC-501的 n/γ 甄别能力略优于EJ-301。鉴于核保障测量环境中常伴随强 γ 辐射, 优异的 n/γ 甄别能力至关重要, 因此, 选用BC-501探测器构建测量阵列。

1.2 系统几何构型优化与集成

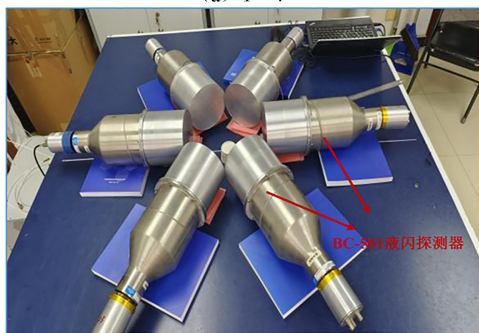
探测效率是决定测量系统灵敏度和统计精度的重要因素。为最大化提升探测效率, 基于现有的6个尺寸为 $\Phi 12.7 \text{ cm} \times 12.7 \text{ cm}$ 的BC-501探测器, 对几何布局进行了优化研究。首先, 分别测试 1×4 和 1×6 水平面阵的两种基础构型, 如图4所示。

将 ^{252}Cf 点源置于构型中心附近, 测得两种基础构型下的中子探测效率分别为4.59%和6.58%。探测效率很大程度上依赖于探测器所覆盖的空间立体角, 通过增加探测器的个数可以显著提高中

子的探测效率。为进一步提升效率并实现三维空间覆盖,利用 Geant4 蒙特卡罗模拟设计了六探头三维环绕构型,如图 5 (a) 所示。该构型在水平面布置 4 个探测器,同时在样品垂直方向的上、下各布置一个。将 ^{252}Cf 点源设置于模型测量腔结构的中心位置,并以 4π 角方向发射中子。模拟结果表明,该构型对中心点源的探测效率可达 9.02%,显著优于前述二维平面布局。因此,本研究基于此优化构型,集成了完整的测量系统。系统前端由探测器阵列、铅屏蔽体及精密样品台组成;基于两台四通道数字脉冲形状甄别器 (MPD-4) 实现 6 路信号的实时 n/γ 甄别、时间标记与幅度记录;数据经由多道定标器 (MCS6A) 汇集至上位机进行存储与离线分析。系统工作原理如图 5 (b) 所示,该设计确保了系统能以列表模式记录每个中子事件的完整信息,包括时间戳、探测器编号和脉冲幅度,用于后续的关联分析。



(a) 1×4



(b) 1×6

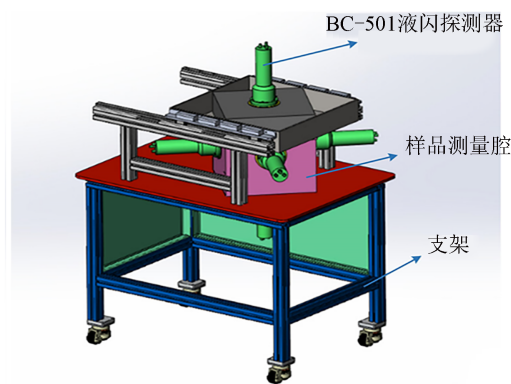
图 4 液闪简易测量装置

Fig. 4 Simple liquid scintillation measurement device

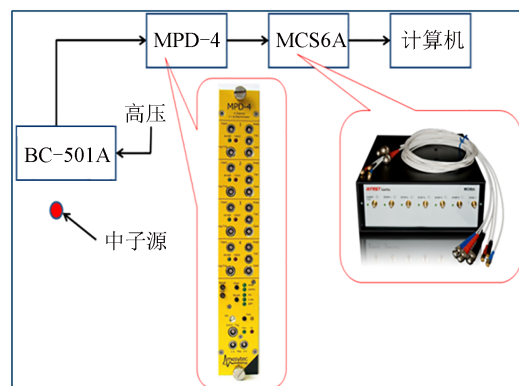
2 系统参数刻度

在开展正式的实验测量之前,必须提前对装置的系统参数进行刻度。由于核军控与核保障场景下的快中子多重性与角关联分析仅依赖于中子事件的符合计数与时间戳信息,而不需获取精确的粒子能量,因此,无需进行能量刻度。系统参

数刻度主要包括探测效率、符合门因子,均通过 ^{252}Cf 标准放射源进行。实验中所采用的标准源为中国原子能研究院放化所的 ^{252}Cf 源,该源强于 2021 年 10 月 27 日标定为 166 000/s。由于 ^{252}Cf 处于不断衰变中,需重新对其源强进行标定。 ^{252}Cf 单次自发裂变平均会释放出 3.73 个中子,所以该时刻 ^{252}Cf 标准源平均每秒会发生 44 504 次自发裂变。 ^{252}Cf 的半衰期为 2.638 a,根据放射性衰变规律,计算可得当前 ^{252}Cf 的源强为 98 198/s。



(a) 模型结构



(b) 工作原理

图 5 液闪测量系统

Fig. 5 Liquid scintillation measurement system

2.1 探测效率刻度

^{252}Cf 因其高自发裂变率和稳定的中子发射特性,被广泛用作中子探测效率刻度的标准源。该放射源的中子发射率通过其活度和已知的裂变参数精确计算得出,从而为探测器的效率校准提供了可靠的参考。将液闪探测器置于 ^{252}Cf 源的均匀照射场中,对采集到的信号进行分析,得到探测器的中子计数率,并结合已知的 ^{252}Cf 源中子发射率,计算探测效率为

$$\eta = \frac{C}{N_0} \quad (3)$$

式中: C 为液闪测量系统记录到的中子计数率; N_0 为 ^{252}Cf 源的中子发射率。将 ^{252}Cf 标准源放置于测

量腔的几何中心, 计算探测系统的中子探测效率, 测量时长为 100 s, 结果如表 1 所示。

根据式 (3) 计算得到的平均中子探测效率为 8.37%。模拟与实测效率偏差主要源于实际探测器的非理想响应 (如光输出非线性、低能甄别损失)、几何装配误差、材料参数差异及电子学器件的死时间影响。该偏差在辐射测量常见不确定度范围内, 不影响系统核心功能与结论有效性。由

于本测量装置的测量腔是一个正方体空腔, 测量样品的位置可能会影响整体的探测效率。因此, 该装置探测效率的空间依赖性还需要进一步讨论。为评估样品位置的影响, 将源沿坐标轴方向偏移, 测得效率在 8.78%~9.12% 之间波动。由于本测量装置是高度对称的, 其探测效率的空间依赖性较大, 实验时应尽可能确保将样品放置于测量腔的中心位置。

表 1 各探头效率刻度结果
Table 1 Efficiency calibration results of each probe

测量次数	1 号探头	2 号探头	3 号探头	4 号探头	5 号探头	6 号探头	平均计数	探测效率/%
1	111 157	144 173	142 491	148 677	114 852	154 992	8 163.42	8.31
2	110 993	146 495	142 908	148 462	114 458	155 112	8 184.28	8.33
3	110 748	148 763	142 821	148 493	113 455	154 137	8 184.17	8.33
4	112 115	148 052	145 318	151 527	115 952	156 665	8 296.29	8.45
5	112 068	146 856	144 705	150 782	116 412	157 570	8 283.93	8.44

2.2 符合门因子刻度

符合门因子是中子多重性方程中的一个未知参数, 该参数与测量装置和放射源特性相关, 因此, 在进行实验测量前, 需采用标准源对装置进行刻度以获取符合门因子。计算符合门因子必须先获得符合门宽以及系统衰减时间。假设实验装置的衰减时间满足指数衰减形式, 则该装置在符合门宽内探测到中子的概率与符合门因子成正比。因此, 本研究采用 ²⁵²Cf 标准源进行刻度, 将其置于样品测量腔的中心位置, 分别记录 G_1 和 G_2 两种门宽下的符合计数率, 每个门宽下的测量总时长为 200 s, 两者的比值关系为

$$\frac{D_{G_2}}{D_{G_1}} = \frac{e^{-T_{PD}\tau}(1-e^{G_2/\tau})}{e^{-T_{PD}\tau}(1-e^{G_1/\tau})} \quad (4)$$

式中: D_{G_2} 和 D_{G_1} 分别为 G_2 和 G_1 两种门宽下的符合计数率; T_{PD} 为预延迟时间; τ 为系统衰减时间。由式 (4) 可得, 系统衰减时间 τ 为

$$\tau = -G_1 / \ln(D_{G_2}/D_{G_1} - 1) \quad (5)$$

取 G_2 、 G_1 分别为 20 ns 和 10 ns, D_{G_2} 、 D_{G_1} 分别为 1 237.52、670.41。代入式 (5) 计算得到系统衰减时间 τ 约为 59.91 ns。根据系统衰减时间可以选择最佳符合门宽, 两者之间近似满足 $G \approx 1.27 \tau$ 。因此, 本装置的符合门宽设置为 76 ns。为验证该符合门宽的准确性, 采用 ²⁵²Cf 标准源进行验证, 将测量样品放置于测量腔的几何中心, 通过调整符合门宽, 记录符合计数率的变化, 来寻找最佳时长, 结果如表 2 所示。

表 2 ²⁵²Cf 标准源
Table 2 ²⁵²Cf standard source

符合门宽/ns	符合计数率/cps
10	670
20	1 237
30	1 457
40	1 516
50	1 540
60	1 546
70	1 549
80	1 551
90	1 554
100	1 556

从表 2 可以看出, 随着符合门宽增大, 符合计数率会逐渐增多。当增大到 70 ns 时, 符合计数率随门宽增加的趋势趋于饱和。因此, 选择 76 ns 作为本装置的符合门宽基本符合要求。在得到系统衰减时间和符合门宽后, 可通过对 ²⁵²Cf 标准源进行多重性测量, 从而标定二重符合门因子 f_d 及三重符合门因子 f_t , 计算表达式为

$$f_d = \frac{2v_{s1}D}{\epsilon v_{s2}S} \quad (6)$$

$$f_t = \frac{6v_{s1}T}{\epsilon^2 v_{s3}S} \quad (7)$$

式中: S 、 D 、 T 分别为一重、二重、三重计数率; ϵ 为系统探测效率; v_{s1} 、 v_{s2} 、 v_{s3} 分别为 ²⁵²Cf 源自裂变一、二、三阶乘矩。查阅核数据可知, $v_{s1} =$

3.757, $v_{s2} = 11.948$, $v_{s3} = 31.636^{[30]}$ 。在样品测量腔的中心位置放置 ^{252}Cf 标准源, 共进行了 5 次测量, 每次测量时间设定为 200 s, 结果如表 3 所示。

表 3 ^{252}Cf 标准源多重性测量结果

测量序号	一重计数率	二重计数率	三重计数率
1	15 637.30	1 549.82	85.02
2	15 589.01	1 552.45	86.30
3	15 590.02	1 547.90	85.51
4	15 568.45	1 553.10	84.94
5	15 579.41	1 553.14	86.56
平均值	15 592.84	1 551.28	85.67

将平均值代入式 (6)、(7), 可求得该测量系统的符合门因子 $f_d = 0.757$ 、 $f_i = 0.472$ 。

3 实验测量

3.1 中子角关联测量

液闪测量系统共有 6 个 BC-501 液闪探测器, 等距离分布于待测样品的 6 个方位。根据排列组合, 这 6 个探测器通过两两组合可以形成 15 个探测器对, 分为 90° (12 对) 和 180° (3 对) 两组角度, 提取每对探测器的中子符合计数。为消除探测器效率差异, 将符合计数除以该对探测器的总计数, 得到相对符合计数, 再求取每个角度的平均相对符合计数, 计算中子各向异性值 A , 其表达式为

$$A = \bar{D}_{180}^* / \bar{D}_{90}^* \quad (8)$$

式中: $\bar{D}_{180}^*$ 和 $\bar{D}_{90}^*$ 分别为 180° 和 90° 夹角下的平均相对符合计数。由于放射源种类有限, 采用 ^{252}Cf 标准源作为测量对象, 源强标定为 98 198 n/s, 将 ^{252}Cf 标准源放置于装置的样品腔中心位置, 进行 5 次测量, 每次测量时间为 100 s, 测量结果如表 4 所示。

表 4 中子角关联测量结果

测量序号	$\bar{D}_{180}^* / \times 10^{-6}$	$\bar{D}_{90}^* / \times 10^{-6}$	各向异性
1	5.551 1	4.459 4	1.244 8
2	5.544 2	4.490 1	1.234 8
3	5.779 4	4.717 2	1.225 2
4	5.197 4	4.371 2	1.198 1
5	5.747 6	4.738 9	1.212 9

由表 4 可以看出, 夹角为 180° 的探测器对的相对符合计数明显高于夹角为 90° 的探测器对, 充分说明处于同一裂变事件的符合中子并不是各向同性发射的, 存在一定的角度关联性。每次的测量结果之间还存在小幅度的差异, 这主要是因为探测器的性能受噪声干扰还存在一定的统计涨落。5 次测量的各向异性平均值约为 1.223 2, 即为该 ^{252}Cf 标准源裂变中子的各向异性大小。

3.2 快中子多重性测量

除中子角关联外, 该液闪测量系统还可用于快中子多重性测量, 本研究依托该装置对氧化铀和 MOX 芯块两种标准样品进行了快中子多重性测量研究。

1) 氧化铀标准样品测量

标准氧化铀的主要成分为 PuO_2 。分别对 11.412 5 g、28.561 0 g、57.007 4 g、114.071 0 g、285.730 0 g 共 5 种不同质量的样品进行测量, 将样品置于测量腔的几何中心, 每个样品均测量 6 次, 单次测量时间为 300 s, 计算中子多重计数率的平均值及相对标准偏差 (relative standard deviation, RSD), 测量结果如表 5 所示。

表 5 标准氧化铀样品测量结果

Table 5 Measurement results of standard plutonium oxide samples

质量/g	一重计数率		二重计数率		三重计数率	
	计数率/ cps	RSD/ %	计数率/ cps	RSD/ %	计数率/ cps	RSD/ %
11.412 5	86.52	0.89	1.06	6.05	0.017	34.64
28.561 0	276.73	0.42	2.81	3.02	0.049	29.50
57.007 4	626.24	0.31	5.96	2.14	0.122	25.31
114.071 0	1 339.44	0.25	12.63	1.82	0.295	12.36
285.730 0	5 592.71	0.18	33.60	1.75	0.783	9.27

测量结果显示, 一重计数率和二重计数率的相对标准偏差较小, 三重计数率的相对标准偏差较大, 并且均会随着样品质量的增加而减小。这主要是因为小质量样品的自发裂变中子产额较低, 泄露的中子数偏少, 导致数据统计涨落较大, 不稳定性升高。该问题可通过延长测量时间来解决, 每次测量时间可根据样品质量大小进行调整。多重性计数率还会随着样品质量的增大而出现递增。对测量数据与样品质量的关系进行多项式拟合, 结果如图 6 所示, 拟合精度 R^2 均超过 0.99。

将表 5 的多重性测量数据, 以及系统参数刻度得到的探测效率与符合门因子, 代入快中子多重性测量方程求解氧化铀样品的等效 ^{240}Pu 质量, 结

果如表6所示。可以看出, 计算值与理论值存在一定的偏差, 主要是多重性方程的点模型假设造成的。但该结果基本能反映样品中²⁴⁰Pu的有效质量, 说明该测量系统可用于快中子多重性测量。

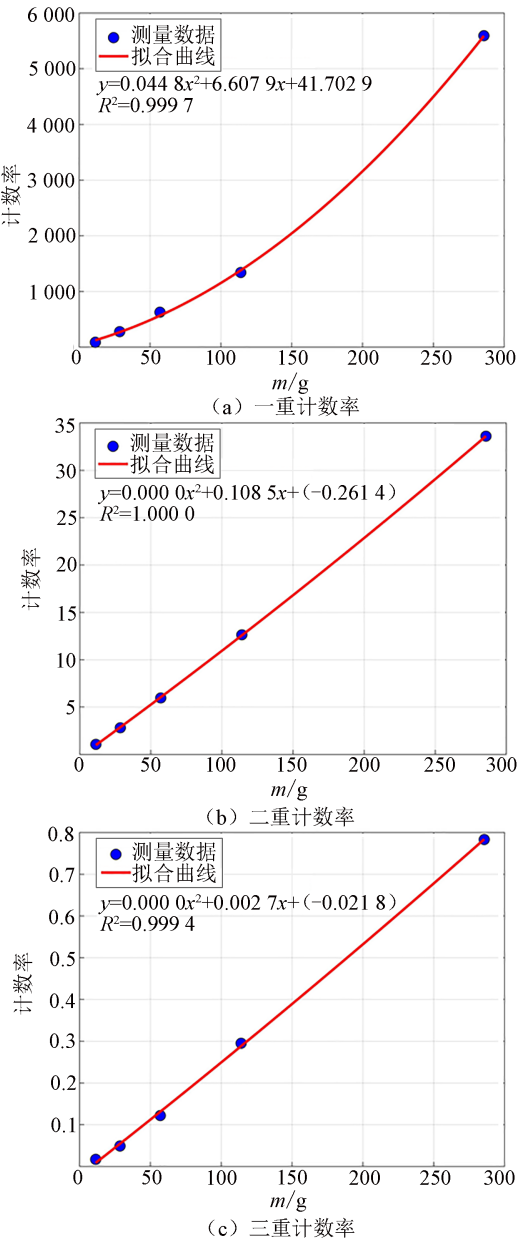


图6 氧化钚标准样品的多重计数率与质量拟合曲线
Fig. 6 Multiplicity counting rate and mass fitting curves of standard plutonium oxide samples

2) MOX 芯块组件测量

为进一步测试系统对复杂样品的响应, 对离散MOX芯块组件进行测量。MOX芯块组件共有24个, 每个芯块的大小形状均相同, 质量为1.5 g, 组成成分为UO₂和PuO₂, 且 $m_U/m_{Pu} \approx 2.68$ 。分别进行了无源测量和有源测量。无源测量时, 将MOX样品分成5组, 分别选取8、12、16、20、

24个芯块进行测量, 将样品放置于测量腔的几何中心, 每组样品测量5次, 每次测量时间为300 s。有源测量时, 所采用的质询源为²⁵²Cf标准源, 将质询源放置在测量腔一端的底角上, 每组样品的测量次数和时间不变, 测量结果如表7和表8所示。

表6 标准氧化钚质量求解结果

Table 6 Result of standard plutonium mass calculation			
样品质量/g	理论值/g	计算值/g	偏差/%
11.412 5	0.54	0.47	-12.96
28.561 0	1.35	1.19	-11.85
57.007 4	2.70	2.29	-15.19
114.071 0	5.41	4.61	-14.79
285.730 0	13.55	11.50	-15.13

表7 MOX 芯块无源测量结果

Table 7 Passive measurement results of MOX fuel pellets						
质量/g	一重计数率		二重计数率		三重计数率	
	计数率/cps	RSD/%	计数率/cps	RSD/%	计数率/cps	RSD/%
12	116	0.51	1.53	5.34	0.02	61.08
18	192	0.53	2.21	4.62	0.03	43.66
24	278	0.69	2.98	2.63	0.05	20.52
30	381	0.36	3.91	2.24	0.07	31.99
36	504	0.76	4.68	2.46	0.11	29.32

表8 MOX 芯块有源测量结果

Table 8 Active measurement results of MOX fuel pellets						
质量/g	一重计数率		二重计数率		三重计数率	
	计数率/cps	RSD/%	计数率/cps	RSD/%	计数率/cps	RSD/%
12	258	0.47	1.93	7.90	0.03	38.15
18	401	0.37	2.79	6.48	0.05	33.70
24	538	0.69	3.64	2.79	0.06	26.68
30	742	0.83	4.61	3.47	0.09	27.72
36	912	0.94	5.65	1.55	0.13	23.96

对比表7和表8可以看出, 在加入外部质询源后, 中子多重性计数率明显增大, 说明有大量的诱发裂变核素发生了裂变反应。两种测量条件下的一重计数率RSD较小, 三重计数率的RSD最大, 二重计数率的RSD会随质量的增加而明显减小。出现上述现象的原因是由于样品的质量偏小, 符合计数率的统计涨落较大, 导致相对标准偏差偏大。并且由于该液闪测量系统的探测效率较低, 对于低质量的样品, 三重计数率的RSD较大。同时, 多重性计数率也会随着样品质量的增大而出现递增, 对测量数据与样品质量的关系进行多项

式拟合，结果如图 7 所示，拟合精度 R^2 均超过 0.99。

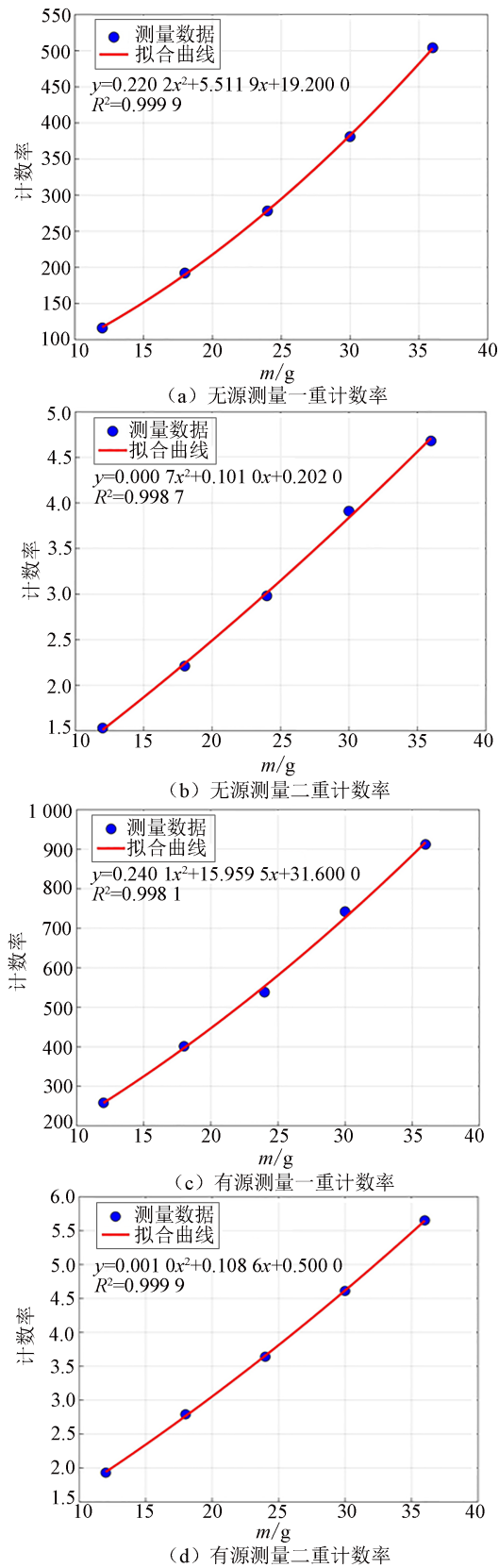


图 7 MOX 芯块质量与多重性计数率函数关系拟合结果
Fig. 7 Fitting results of the relationship between MOX fuel pellet mass and the multiplicity counting rate function

该 MOX 芯块包含铀钚混合物，对于混合核材料，其他自发裂变核素的存在会对 ^{240}Pu 等效质量计算产生干扰。为提高测量精度，对测量结果进行修正，表达式为

$$m = \frac{m_{\text{eff}}}{f_{^{240}\text{Pu}} + \frac{N_{^{238}\text{U}}}{N_{^{240}\text{Pu}}} f_{^{238}\text{U}}}$$

(9)

式中： $f_{^{240}\text{Pu}}$ 和 $f_{^{238}\text{U}}$ 分别为 ^{240}Pu 和 ^{238}U 的丰度占比； $N_{^{240}\text{Pu}}$ 和 $N_{^{238}\text{U}}$ 分别为 ^{240}Pu 和 ^{238}U 的额定自发裂变中子产额； m_{eff} 为 ^{240}Pu 等效质量； m 为 ^{240}Pu 最终质量。由于有源测量状态下，质询源会对中子多重性计数率造成干扰，增大测量结果的不确定性，因此，仅将无源测量条件下得到的多重性计数率代入快中子多重性方程求解核材料质量，并通过等效关系进行修正，结果如表 9 所示。

表 9 MOX 芯块质量求解结果

Table 9 Result of MOX fuel pellet mass calculation

样品质量/g	理论值/g	修正前		修正后	
		计算值/g	偏差/%	计算值/g	偏差/%
12	0.66	0.21	-68.18	0.76	15.15
18	0.99	0.30	-69.69	1.12	13.13
24	1.32	0.39	-70.45	1.45	9.85
30	1.65	0.51	-69.09	1.88	13.94
36	1.98	0.57	-71.21	2.09	5.56

由表 9 可以看出，采用快中子多重性方法求解的 MOX 芯块 ^{240}Pu 有效质量存在较大偏差，其原因主要来自两个方面。一是 MOX 芯块的同位素丰度存在较大不确定性，其数据可能存在偏差；二是本研究通过增加芯块数量来增加质量，但所采用的芯块之间是相互离散独立的个体，并不能等同于同等质量的单个样品，中子增殖效应存在差异，会对多重性测量结果造成偏差^[31]。采用式 (9) 进行修正后，偏差大幅减小，验证了该方法的有效性。

4 结论

本研究围绕核保障监督要求，研制了一套基于 BC-501 液闪探测器的快中子多重性与中子角关联联合测量系统，实验验证了 ^{252}Cf 裂变中子发射的各向异性，并通过快中子多重性测量方程实现了对氧化钚样品和 MOX 芯块样品的质量求解。研究发现，传统点模型反演 ^{240}Pu 质量存在 12.96%~15.13% 的系统性偏差，而对离散 MOX 芯块的测

量则揭示了复杂几何以及混合材料对多重性分析的显著影响。该液闪测量系统实现了从中子探测、信号处理到关联分析的全流程功能, 突破了传统单一测量的局限, 可应用于核保障监督领域, 为复杂几何、混合组分特殊核材料的精确表征提供实验平台。当前系统探测效率和角关联测量对象范围仍有提升空间, 未来可通过优化探测阵列布局、拓展至钚材料测量以及发展精细反演模型等研究, 进一步提升该方法在核保障领域的应用精度。

参考文献

- [1] 汪民乐. 国家战略安全态势分析研究综述[J]. 火箭军工程大学学报, 2023, 37(1): 1-9.
Wang Minle. Overview of national strategic security situation analysis[J]. Journal of Rocket Force University of Engineering, 2023, 37(1): 1-9.
- [2] 赵永刚, 靳尚泰, 庄晓, 等. 核保障用探测器的现状与发展[J]. 原子能科学技术, 2024, 58(2): 438-451.
Zhao Yonggang, Jin Shangtai, Zhuang Xiao, et al. Current status and development of detector for nuclear safeguards[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2024, 58(2): 438-451.
- [3] 马宗翔, 许鹏, 秦晋, 等. 某设施核废物清洁解控中的人员辐照水平分析[J]. 火箭军工程大学学报, 2023, 37(3): 24-30.
- [4] Di Fulvio A, Shin T H, Jordan T, et al. Passive assay of plutonium metal plates using a fast-neutron multiplicity counter[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, 855: 92-101.
- [5] Zhang Quanhu, Yang Jianqing, Li Xinshe, et al. High order fast neutron multiplicity measurement equations based on liquid scintillation detector[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2019, 152: 45-51.
- [6] Fraïsse B, Bélier G, Méot V, et al. Complete neutron-multiplicity distributions in fast-neutron-induced fission[J]. Physical Review C, 2023, 108: 014610.
- [7] Cifarelli D M, Hage W. Models for a three-parameter analysis of neutron signal correlation measurements for fissile material assay[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1986, 251 (3): 550-563.
- [8] Li Sufen, Li Kaile, Zhang Quanhu, et al. A fast neutron multiplicity measurement method based on the correction of multiplication coefficient[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2022, 1027: 166314.
- [9] Li Kaile, Li Sufen, Cai Xingfu, et al. Analysis and correction of spatial neutron multiplication in fast neutron multiplicity measurement[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2025, 334(5): 3129-3137.
- [10] 黎素芬, 李凯乐, 张全虎, 等. 铀材料快中子多重性测量方程推导[J]. 物理学报, 2022, 71(9): 60-68.
Li Sufen, Li Kaile, Zhang Quanhu, et al. Derivation of fast neutron multiplicity measurement equation of uranium material[J]. Acta Physica Sinica, 2022, 71(9): 60-68.
- [11] 李凯乐, 黎素芬, 蔡幸福, 等. 基于空间增殖系数修正的钚材料快中子多重性测量[J]. 物理学报, 2025, 74(2): 34-41.
Li Kaile, Li Sufen, Cai Xingfu, et al. Fast neutron multiplicity measurement of plutonium material based on spatial multiplication coefficient correction[J]. Acta Physica Sinica, 2025, 74(2): 34-41.
- [12] Liu Xiaobo, Chen Ligao. A two parameter iterative approach of multiplication correction for assaying plutonium metal parts with neutron multiplicity counting[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2021, 1016: 165779.
- [13] Geist W H, Mayo D R, Krick M S. Achieving accurate neutron-multiplicity analysis of metals and oxides with weighted point model equations[C]// Proc. of the annual meeting of the INMM. 2004.
- [14] Zhang Quanhu, Su Xianghua, Hou Suxia, et al. Analysis and improvement of the influence of sample shape on Pu measurement results[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2020, 57(6): 678-688.
- [15] Li Kaile, Li Sufen, Zhang Quanhu, et al. Studies on fast neutron multiplicity measurement based on neural network[J]. AIP Advances, 2021, 11(5): 055309.
- [16] 冯元威, 郑玉来, 李永, 等. 基于神经网络的中子多重性测量方法可行性研究[J/OL]. 强激光与粒子束, (2026-03-20)[2026-03-25]. <https://link.cnki.net/urlid/51.1311.O4.20260320.1032.006>.
Feng Yuanwei, Zheng Yulai, Li Yong, et al. Feasibility study on neutron multiplicity counting method based on neural network[J/OL]. High Power Laser

- and Particle Beams, (2026-03-20) [2026-03-25].
<https://link.cnki.net/urlid/51.1311.O4.20260320.1032.006>.
- [17] Enqvist A, Pázsit I, Avdic S. Sample characterization using both neutron and gamma multiplicities [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, 615(1): 62-69.
- [18] 周志波, 李多宏, 刘月壮, 等. 快中子多重性测量技术研究[J]. 世界核地质科学, 2023, 40(2): 454-461.
Zhou Zhibo, Li Duohong, Liu Yuezhuan, et al. Study on fast neutron multiplicity measurement technology[J]. World Nuclear Geoscience, 2023, 40(2): 454-461.
- [19] Verbeke J M, Randrup J, Vogt R. Fission reaction event yield algorithm, FREYA: for event-by-event simulation of fission[J]. Computer Physics Communications, 2015, 191: 178-202.
- [20] 王鹏, 黎素芬, 王飞, 等. 基于Geant4的裂变核素中子角关联分布数值模拟[J]. 火箭军工程大学学报, 2024, 38(4): 98-107.
Wang Peng, Li Sufen, Wang Fei, et al. Numerical simulation of Geant4-based neutron angular correlation distribution of fission nuclides[J]. Journal of Rocket Force University of Engineering, 2024, 38(4): 98-107.
- [21] Kopatch Y, Chietera A, Stuttgé L, et al. Detailed study of the angular correlations in the prompt neutron emission in spontaneous fission of ^{252}Cf [J]. Physics Procedia, 2015, 64: 171-176.
- [22] Guseva I S, Gagarski A M, Sokolov V E, et al. Detailed investigations of neutron neutron angular correlations in slow-neutron-induced fission of ^{233}U , ^{235}U , and ^{239}Pu [J]. Physics of Atomic Nuclei, 2018, 81(4): 447-454.
- [23] Vogt R, Randrup J. Event-by-event modeling of prompt neutrons and photons from neutron-induced and spontaneous fission with FREYA[J]. Nuclear Data Sheets, 2014, 118: 220-223.
- [24] Zhu Jianyu, Huang Meng. Numerical simulation of fission neutron angular correlation distributions[J]. Chinese Journal of Computational Physics, 2018, 35(4): 429-436.
- [25] Marcath M J, Shin T H, Clarke S D, et al. Neutron angular distribution in plutonium-240 spontaneous fission[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, 830: 163-169.
- [26] Shin T H, Di Fulvio A, Clarke S D, et al. Prompt fission neutron anisotropy in low-multiplying subcritical plutonium metal assemblies[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2019, 915: 110-115.
- [27] Yoon S, Lee C, Kim H D, et al. Monte Carlo simulations of correlation between anisotropic emission characteristics of prompt fission neutrons and sample multiplication[J]. Radiation Physics and Chemistry, 2021, 181: 109328.
- [28] Li Kaile, Li Sufen, Cai Xingfu, et al. The influence of matrix effect on neutron-neutron angular correlation and energy-angle correlation of special nuclear material[J]. Nuclear Engineering and Technology, 2026, 58(4): 104056.
- [29] Li Kaile, Xu Peng, Li Sufen, et al. Using neutron-neutron angular correlation as a complementary observable in the fast neutron multiplicity counting for low-quality nuclear materials[J]. Radiation Measurements, 2025, 189: 107541.
- [30] Brown D A, Chadwick M B, Capote R, et al. ENDF/B-VIII0: the 8th, major release of the nuclear reaction data library with CIELO-project cross sections, new standards and thermal scattering Data [J]. Nuclear Data Sheets, 2018, 148: 1-142.
- [31] 李凯乐, 黎素芬, 张全虎, 等. 基于快中子多重性的计数器的钚样品形状影响分析[J]. 火箭军工程大学学报, 2021, 35(1): 59-64.
Li Kaile, Li Sufen, Zhang Quanhu, et al. Analysis of Pu sample shape influence based on fast neutron multiplicity counter[J]. Journal of Rocket Force University of Engineering, 2021, 35(1): 59-64.

Fast Neutron Multiplicity and Neutron Angular Correlation of Special Nuclear Materials Based on Liquid Scintillation Detector

LI Kaile¹, XU Peng^{1*}, HE Hantao²,
LI Sufen¹, PENG Leyi¹

(1. Rocket Force University of Engineering, Xi'an 710025, China;

2. Institute of Radiochemistry, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

ABSTRACT: To achieve an accurate and comprehensive characterization of special nuclear materials, a combined measurement system was developed in this study for fast neutron multiplicity counting and neutron angular correlation based on liquid scintillation detectors, given that organic scintillation detectors preserve complete neutron information including time, energy, and direction. Through comparative tests of EJ-301 and BC-501 detectors, the BC-501 detector with superior n/γ discrimination performance (figure of merit=1.213) was selected to construct a six-probe, surrounding-geometry measurement device. A ^{252}Cf standard source was used to calibrate detection efficiency and gate factors. The results show that the average neutron detection efficiency of the system measured by Great4 simulation is 8.37%, which meets the common uncertainty range of radiation measurement and verifies the reliability of the device. The average anisotropy of fission neutrons from ^{252}Cf measured by this system is 1.223 2, verifying the existence of significant anisotropy in neutron emission. Fast neutron multiplicity measurements are conducted on standard plutonium oxide and mixed uranium-plutonium oxide (MOX) fuel pellets, and the R^2 values of the first, second, and third count rates and sample mass fitting are all greater than 0.99. The deviation of MOX fuel pellets before correction is -71.21%—-68.18%, but after mixed nuclide correction, it decreases to 5.56%—15.15%. These results demonstrate that the system can effectively establish a functional relationship between the multiplicity counting rate and sample mass, validating the application potential of the joint measurement method in nuclear material property certification.

KEYWORDS: nuclear safeguards; fast neutron multiplicity; neutron angular correlation; liquid scintillation detector; n/γ discrimination

(编辑: 于福兴)