

doi:10.3969/j.issn.2095-1035.2024.06.007

基于可移动中子源的瞬发 γ 活化成像研究进展

程 璨^{1,2} 赵 冬² 梁旭文² 杨晓艳³ 贾文宝^{2*} 夏勋荣¹ 顾加雨¹

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

2. 南京航空航天大学,南京 211106;

3. 内蒙古自治区计量测试研究院,呼和浩特 010040)

摘 要 瞬发 γ 活化成像技术基于瞬发 γ 射线中子活化分析,结合准直测量或者伴随粒子测量手段,以实现样品内部元素位置分布的测量。当前大多数相关研究都是基于大型中子源开展的,这限制了该技术的应用场景,可移动小型化中子源是该技术现场应用的必然要求。基于可移动中子源的瞬发伽马活化成像技术按照准直方式可分为基于单孔准直、编码孔准直及伴随粒子测量三类,对其技术原理、研究进展及仍存在的问题进行介绍与讨论。目前的技术在空间分辨率上还需要进一步提升,未来将进一步结合图像处理算法提高成像质量并降低测量时间。

关键词 可移动中子源;瞬发伽马射线;元素分布成像;位置分辨率

中图分类号:O657.35 TL99 **文献标志码**:A **文章编号**:2095-1035(2024)06-0749-09

Advances in Prompt Gamma Activation Imaging Based on a Removable Neutron Source

CHENG Can^{1,2}, ZHAO Dong², LIANG Xuwen², YANG Xiaoyan³,
JIA Wenbao^{2*}, XIA Xunrong¹, GU Jiayu¹

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

2. Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing, Jiangsu 211106, China;

3. Inner Mongolia Institute of Metrology and Testing Research, Hohhot, Inner Mongolia 010040, China)

Abstract The prompt gamma activation imaging technique is based on prompt gamma-ray neutron activation analysis, combined with collimation or associated particle measurements to measure the position distribution of the elements in the sample. Currently, most of the related researches are carried out based on large neutron sources, which limits the application scenarios of this technique, and the mobile miniaturized neutron source is an inevitable requirement for the field application of this technique. The prompt gamma activation imaging technique based on the movable neutron source can be divided into three categories according to the collimation method, which are based on single-hole collimation, coded-hole collimation, and

收稿日期:2024-02-27 **修回日期**:2024-03-25

基金项目:国家自然科学基金资助项目(12105143,42374226,11975121);中国博士后科学基金资助项目(2023M741453);江苏省市场监督管理局科技计划项目(KJ2024009,KJ2024044,KJ2023015)

作者简介:程璨,男,工程师,主要从事核技术及应用研究。E-mail:cheng_can@nuaa.edu.cn

* **通信作者**:贾文宝,男,教授,主要从事核技术及应用研究。E-mail:jiawb@nuaa.edu.cn

引用格式:程璨,赵冬,梁旭文,等.基于可移动中子源的瞬发 γ 活化成像研究进展[J].中国无机分析化学,2024,14(6):749-757.

CHENG Can, ZHAO Dong, LIANG Xuwen, et al. Advances in Prompt Gamma Activation Imaging Based on a Removable Neutron Source[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2024, 14(6): 749-757.

accompanying particle measurement. The technical principle, research progress and existing problems are introduced and discussed in this paper. The spatial resolution still needs to be improved. In the future, it will be further combined with image processing algorithms to improve the imaging quality and reduce the measurement time.

Keywords movable neutron source; prompt gamma-rays; elemental distribution imaging; positional resolution

在科学研究和工程应用中,对样品进行无损检测分析是一项重要的研究内容。成像分析能为后续更多的表征手段提供研究基础,因此得到研究人员的广泛重视,目前已开发出众多的成像方法用于样品的结构形貌重建^[1]。随着研究进一步需求,样品元素成分及元素成像检测越来越重要,在土壤中重金属元素、铀矿稀土等战略矿产的检测、海洋陆地地质学、材料合金性能分析、锂电池化学性能研究以及环境科学等领域具有重要意义。目前,激光诱导击穿光谱(LIBS)和 X 射线荧光光谱(XRF)已被应用于元素成像检测,但是这些方法的渗透深度有限,仅用于表面分析^[2-3]。中子作为电中性粒子,能够深入穿透样品,对其内部的信息进行探测,是大块样品的物理结构和元素组成的理想探针。

利用中子对样品的成分进行分析,主要分为两种方式。第一种是通过分析中子信息,由于许多核素在超热中子能区具有尖锐的中子吸收峰,通过分析穿过样品后的中子能谱可以得到样品的元素成分,该技术也称为中子能量共振成像(Neutron Energy Resonance Imaging, NERI)^[4]。ORNL(美国)、ISIS(英国)、PSI(瑞士)和 CSNS(中国)等一些领先的散裂中子源已经建成了该平台,并应用于核材料检测、考古和材料科学等领域^[5-8]。第二种方式瞬发 γ 射线中子活化分析(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA),由于中子与核素发生热中子俘获和非弹性中子散射反应会在极短时间内发射特征伽马射线,通过分析伽马射线的能量和强度即可对核素进行定性和定量分析,广泛应用于元素成分分析^[9-13]。

与 NERI 技术相比,PGNAA 可以使用连续模型的中子源进行,并且对轻元素具有更高的灵敏度,因此基于该技术的元素成像检测得到了大量研究,该技术又被成为瞬发 γ 活化成像(Prompt Gamma Activation Imaging, PGAI)。本文将对 PGAI 技术的原理方法和研究现状进行介绍,并重点对基于小型化可移动中子源的 PGAI 技术的研究进展进行总结分析。

1 PGAI 技术理论基础

PGAI 技术的基础是 PGNAA,其原理如图 1 所示。中子与原子核相互作用,在极短时间内($<10^{-14}$ s)释放具有特定能量的 γ 射线,通过探测器对 γ 射线进行测量,记录到的特征峰面积 A 可以通过式(1)表示:

$$A = \frac{m_s}{M_s} \Phi N_A \sigma \epsilon t \quad (1)$$

式中, m_s (g)为待测核素的质量, M_s (g/mol)为待测核素的摩尔质量, Φ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)为样品处的中子通量, N_A (mol^{-1})为阿伏伽德罗常数, σ (cm^2)为产生该特征 γ 射线的反应截面, ϵ 为伽马射线探测器的探测效率, t (s)为测量时间。这是对核素进行定量分析的基础。

一般意义上,PGNAA 技术是对样品整体进行测量,得到的结果是被检测区域内样品各种核素含量的平均值。若要实现 PGAI 技术,则需要通过方法实现对样品不同位置的信息获取。目前常用的方法为以下三种:断层扫描、准直聚焦和像素探测器测量,如图 1 所示。

断层扫描是最早被提出来实现 PGAI 检测的方法,其基本原理是在探测器前方连续旋转样品,获得多个角度的 γ 射线信息,之后通过算法进行处理得到不同能量 γ 射线的出射位置进而实现元素成像。准直聚焦是设置一对相互垂直、高度准直的中子束和 γ 射线测量系统。理论上,探测器测量的伽马射线来自于中子束和探测器准直立体角的几何相交体积,通过移动样品就可以实现对样品内部不同区域中的核素进行分析。像素探测器测量是利用具有空间分辨能力的探测器如康普顿相机等对样品发射的 γ 射线进行分析,结合图像重建算法实现对样品的元素成像检测。

由于 PGAI 技术在多个领域具有广泛的应用前景,包括我国在内的多个国家都进行了大量的研究。目前,PGAI 测量平台主要集中在反应堆中子源或大型加速器中子源上。如图 2 所示,匈牙利的布达佩斯中子中心(Budapest Neutron Center, BNC)的

反应堆^[14-15]和德国慕尼黑工业大学 FRM II 反应堆^[16]上的 PGAI 测量平台相对较为成熟,样品处的热中子通量为 $10^7 \sim 10^9 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,可以实现较高分辨率(2~5 mm 量级)的元素成像^[17-18]。在这两个平台上已经完成了大量实验,包括对古文物检测、

陨石分析、核燃料位置识别等^[19-22]。在国内,中国先进研究堆(China Advanced Research Reactor, CARR)^[23]以及中国绵阳研究堆(China Mianyang Research Reactor, CMRR)^[24]也展开了 PGAI 技术的研究工作。

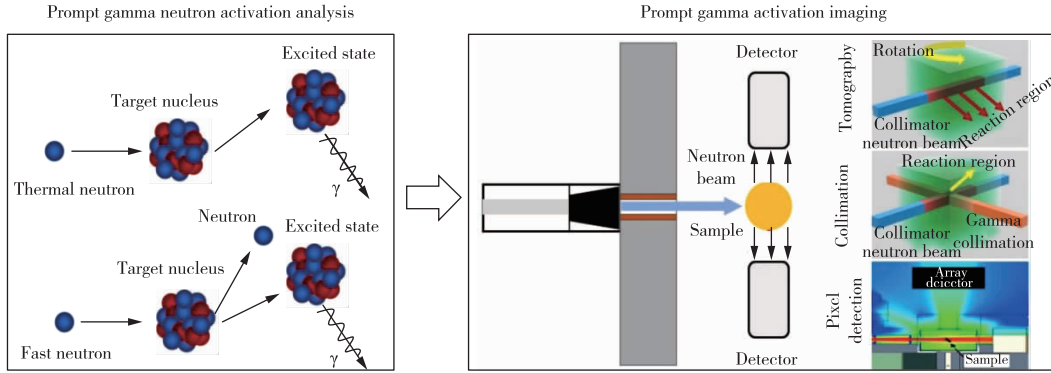


图 1 PGNAA 和 PGAI 技术原理示意图

Figure 1 Schematic diagram of PGNAA and PGAI techniques.

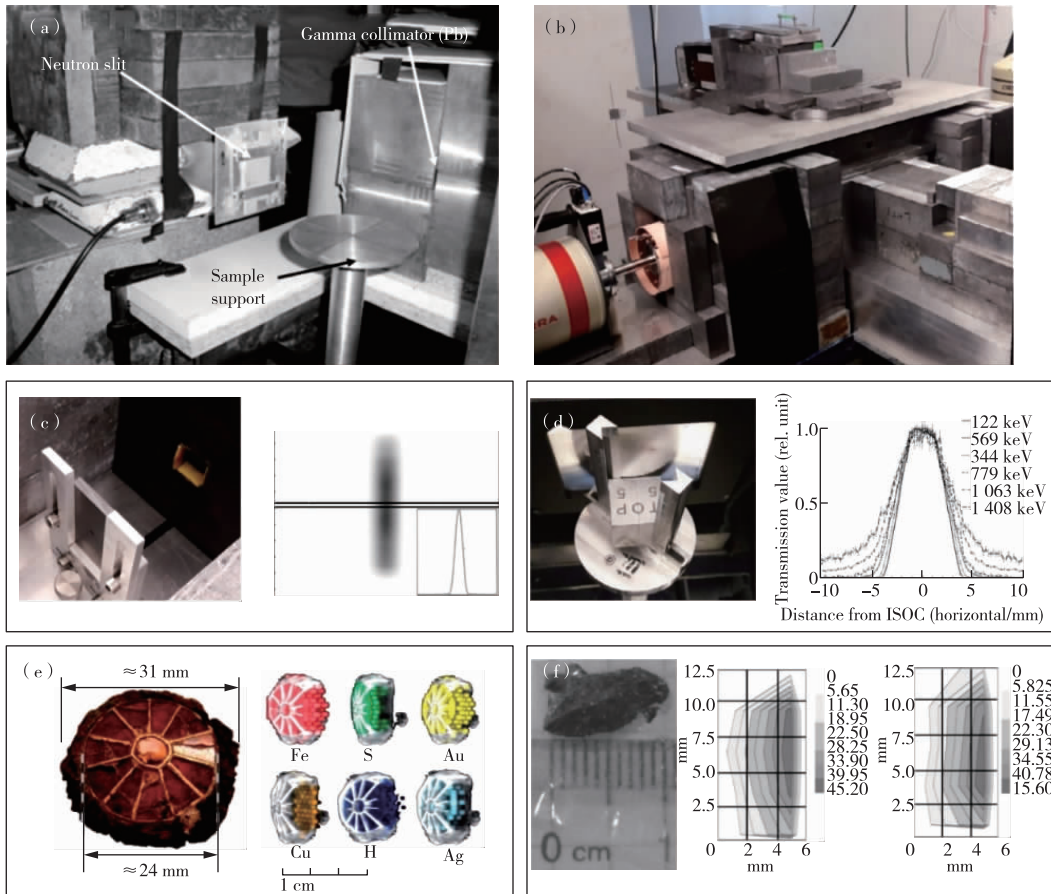


图 2 BNC 中心 PGAI 平台和 FRM II 反应堆 PGAI 平台及其 neutron 和伽马准直系统^[15-16]: (a) BNC 平台;

(b) FRM II 反应堆 PGAI 平台; (c) 中子准直; (d) γ 射线准直; (e) 文物测量^[19]; (f) 陨石测量^[20]

Figure 2 The PGAI facility of BNC reactor and FRM II reactor, as well as the neutron and γ -ray collimator^[15-16].

(a) The PGAI facility of BNC reactor; (b) The PGAI facility of FRM II reactor; (c) Neutron collimator; (d) γ -ray collimator;

(e) Cultural relic determination^[19]; (f) Meteorite determination^[20].

美国国家标准与技术研究院 (National Institute of Standards and Technology, NIST) 在反应堆上进行了基于康普顿相机的 PGAI 研究^[25]。然而,康普顿相机存在对 γ 射线的能量分辨率以及对高能 γ 射线的探测效率的限制,需要进一步探索。此外,韩国原子能科学院也进行了基于符合测量的 PGAI 研究,对相关探测器系统进行了模拟探索研究^[26]。

2 基于可移动中子源的 PGAI 技术

由于在反应堆上开展 PGAI 技术限制了其应用场景,尤其是现场检测的需求。因此研究人员将目光聚集于基于小型化可移动的低通量中子源的 PGAI 技术,主要包括同位素中子源(如²⁵²Cf、²⁴¹Am-Be 中子源等)以及中子发生器(D-D、D-T 中子发生器)。同位素中子源的中子发射率稳定,但其持续发射中子;而中子发生器为电控制,可以调节出束时间及强度,并且可以结合伴随 α 粒子测量^[27],但其稳定性需在测量过程进行监测,以保证 PGAI 测量结果的准确性。可移动中子源的中子产额通常在 $10^5 \sim 10^9 \text{ s}^{-1}$ 量级,样品位置处的热中子注量率通常在 $10^3 \sim 10^5 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 量级。

2.1 准直聚焦成像

2018 年,南京航空航天大学^[28-29]搭建了基于²⁵²Cf-252 中子源及 D-T 中子发生器的热中子瞬发伽马活化成像装置,基于蒙特卡罗模拟计算,建立了装置优化设计方法。该方法对装置的中子源倍增体、慢化体及准直体材料及尺寸进行优化,提升样品位置处的热中子注量率;对伽马射线探测器的中子屏蔽材料、伽马射线屏蔽准直材料及尺寸进行优化,降低进入探测器的伽马射线噪声,以提升测量信噪比。并提出利用活化片对样品外侧不同位置处的注量率进行监测,以尽可能修正中子自屏蔽效应带来的不利影响。利用该装置对硼、镉、氯等元素进行实验测量,其空间分辨率约为 5 cm。

快中子的俘获反应截面比热中子低很多,但其在某些非弹性散射反应测量中必须要采用能量更高的快中子。同时快中子具有更强的穿透能力,在碳、氧以及部分金属元素检测中具有独特的优势。2020 年,南京航空航天大学^[30]搭建了基于 D-T 中子发生器和高纯锗探测器的快中子瞬发伽马活化成像装置,快中子无需慢化,在样品位置处具有更高的注量率,中子与伽马射线的准直口大小均为 $4 \text{ cm} \times 4 \text{ cm}$,利用该装置实现了对 Fe、Cu 和 Ti 元素样品的二维分布成

像,结果如图 3 所示,分辨率能够达到 4 cm。

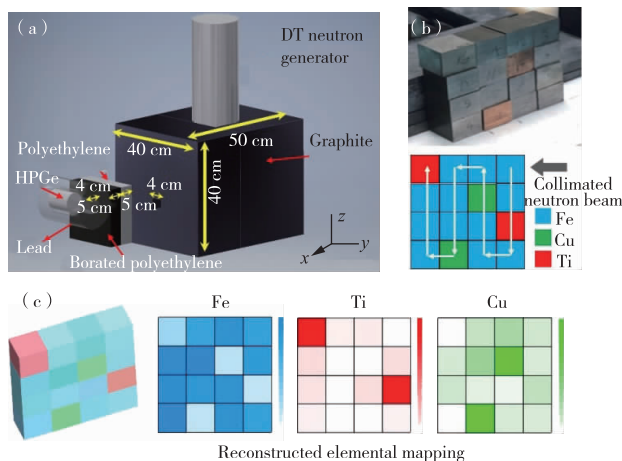


图 3 (a,b) 基于 DT 中子发生器的 PGAI 平台和金属样品;(c) Fe、Cu 和 Ti 测量结果^[30]

Figure 3 (a,b) The PGAI facility based on DT neutron generator and the metallic sample; (c) Determination of Fe, Cu and Ti^[30].

2.2 编码板成像

在单孔准直技术研究基础上,基于编码准直的成像技术得到研究人员的关注,该方法也是一种基于像素探测器方法,被称为单像素成像,也被称为压缩感知像或者鬼成像,已成功应用于许多成像技术,包括基于太赫兹波、X 射线、可见光和中子的成像技术。由于常用的像素探测器每个单元的尺寸较小,无法对低通量中子源激发的 γ 射线能谱进行测量,因此采用一个大体积的没有空间分辨率的 γ 探测器进行测量,之后利用一系列编码板对 γ 能谱信息进行调制,最后将一系列 γ 能谱与对应的编码图案做关联运算,重建出样品的元素分布,其基本原理如图 4 所示^[31]。

若一个图像有 N 个像素,对于一个探测器其所测量到的特征 γ 射线面积是由各像素点发射的 γ 射线与当前编码板相关的探测效率累积而来,此时式(1)可以改写为:

$$A = \sum_{n=1}^N \Phi_n \epsilon_n m_n \frac{N_A \sigma}{M}$$

式中, Φ_n ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 为像素 n 位置处的中子通量, ϵ_n 为像素 n 产生的特征 γ 射线被探测器采集到的探测效率, m_n (g) 为像素 n 处待测核素的质量。若中子源项和样品位置固定不变,则式中 Φ_n 也是一个常数值。如果使用 L 个编码板进行测量 ($L < N$), 则有如下关系:

$$[A] = [\epsilon_n][m_n]$$

式中, $[A]$ 是个 $L \times 1$ 的列向量, 表示 L 次测量下特征峰面积 A ; $[m_n]$ 是 $N \times 1$ 向量, 表示有 N 个像素点的图像; $[\epsilon_n]$ 是 $L \times N$ 矩阵, 表示探测效率, 其第 l ($1 \leq l \leq L$) 行对应第 l 次测量。重建的图像的像素数取决于效率矩阵的大小。

在此基础上, 2022 年南京航空航天大学研究人员首次提出了基于编码准直的 PGAI 技术, 并将其应用于二维元素分布成像, 有效地提升了探测效率及空间分辨率。实验利用 $^{241}\text{Am-Be}$ 中子源与高纯锗探测器, 采用 36 个 10 cm 厚的随机编码铁制编码孔板对含镉与氯元素的二维样品进行测量^[32]。实验装置如图 5 所示, 测量中准直器紧贴待测样品表面, 每组测量时间为 3 h, 其空间分辨率约为 1 cm。

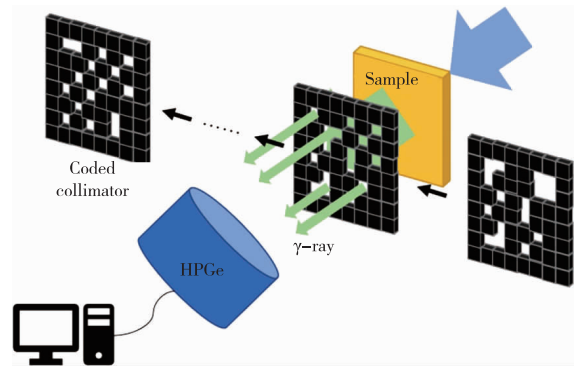


图 4 基于编码孔准直的二维 PGAI 技术原理示意图^[31]
Figure 4 Schematic diagram of 2D PGAI measurement based on multi-coded collimators^[31].

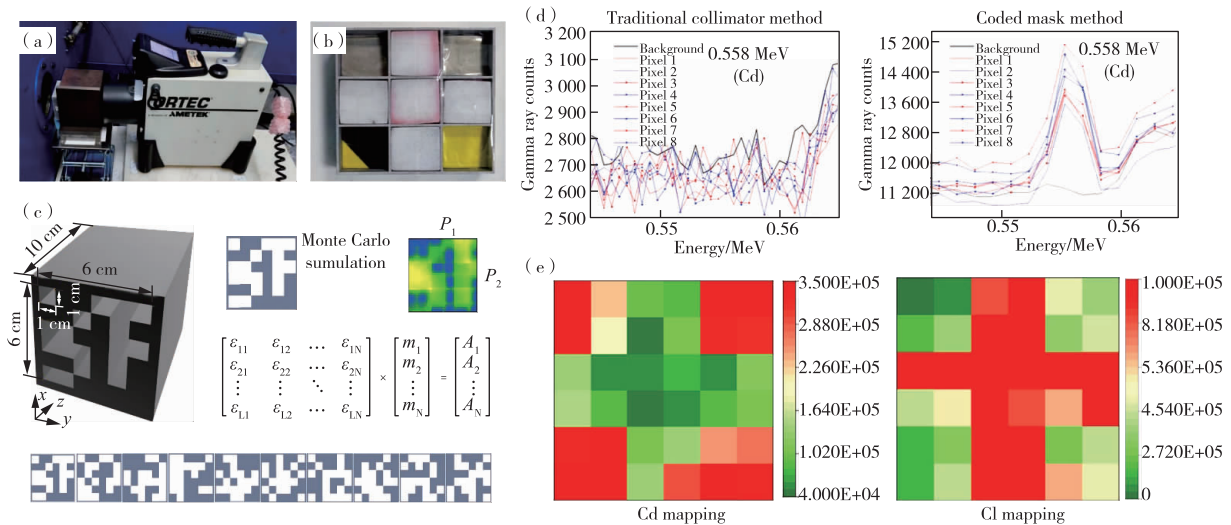


图 5 (a) 实验测量实物图; (b) 待测样品 (四个角为 Cd 片, 其余为 NaCl); (c) 编码板结构示意图及部分随机编码方式; (d) 编码板测量能谱与传统准直测量能谱对比; (e) Cd 和 Cl 元素分布^[25]
Figure 5 (a) The picture of experimental setup; (b) Tested sample (Cd plates are positioned at the four corners whereas five NaCl plates are placed in the remaining regions); (c) Schematic diagram of one collimator and some random patterns; (d) The prompt gamma-ray spectra of coded mask method and traditional collimator method; (e) The elemental mapping of Cd and Cl^[32].

随后对编码板设计进行了研究, 提出了基于旋转调制准直器的 PGAI, 将有特定图案准直器在测量过程旋转, 对入射射线产生呈现周期性的屏蔽和衰减, 从而产生一个随时间变化的信号, 可以从波动的时间信号中提取成像信息。如图 6 所示, 准直器采用了斜哈达玛编码, 每组测量将准直器旋转 4° , 其空间分辨率约为 $0.5 \sim 1$ cm。

2.3 伴随粒子法成像

在基于中子发生器的 PGAI 技术中(图 7), D-D 中子发生器会在产生中子的同时, 产生一个 He-3 的伴随粒子, D-T 中子发生器会在产生中子的同时, 产生一个 α 粒子, 伴随粒子与中子与样品产生的瞬发伽马射线存在符合关系, 基于符合测量的原理对样品进行元素成像。在此方法中无需对中子及伽马射线进行准直^[33]。

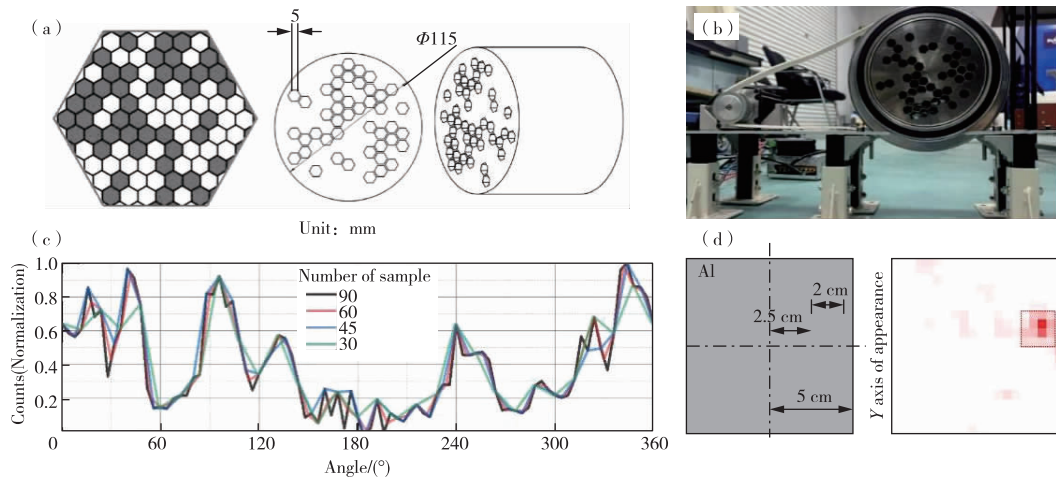


图 6 (a) Skew-Hadamard URA 编码结构; (b) 准直体实物图; (c) 效率响应函数; (d) Cd 片分布测量结果
 Figure 6 (a) The coded pattern of skew-Hadamard URA; (b) The picture of collimator;
 (c) Efficiency response function; (d) The determination of Cd plate.

以 D-T 中子发生器为例,氘氚聚变反应引发的 3.5 MeV α 粒子在真空中以 1.3 cm/ns 的速度飞行。这些粒子进入位置灵敏的 α 探测器,记录其时间、能量和位置信息。同时,能量为 14 MeV 快中子以 5 cm/ns 的速度在空气中飞行,随后进入被测样品,与核素发生非弹性散射,极短时间内产生瞬发 γ 射线。通过周围的 γ 探测器测量瞬发 γ 射线的时间和能量信息。由于瞬发 γ 射线的产生时间和飞行时间几乎可以忽略, α 探测器和 γ 探测器的信号可被视为符合信号。通过筛选出存在固定时间关联的 α - γ 符合事件,获得符合瞬发 γ 射线的能谱。 α 位置灵敏探测器的每一个像素都能独立工作,实现对不同区域内样品元素的独立识别,从而实现元素空间分布的测量^[34]。

在此方法中,在中子入射方向上的空间分辨率与系统的时间分辨能力有关,考虑到中子的飞行速度及系统可实现的时间分辨率,此方向上的空间分辨率在 10 cm 量级;在中子入射方向的垂直方向上,其空间分辨率与 α 位置灵敏探测器的位置分辨能力

及几何布置(靶点-探测器距离、靶点-样品距离)相关。

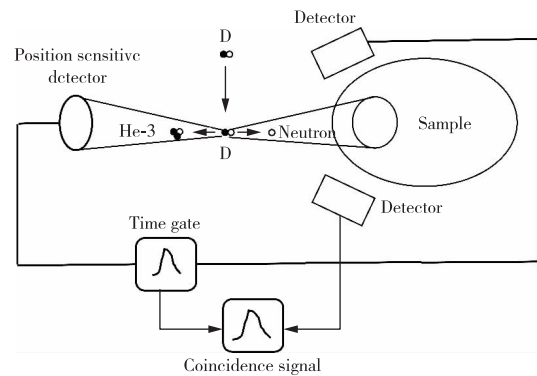


图 7 伴随粒子法 PGAI 技术原理示意图^[33]
 Figure 7 Schematic diagram of PGAI techniques based on associated particle^[33].

综上所述,基于可移动中子源的 PGAI 技术经过不断地发展,在成像性能方面,其空间分辨率在厘米量级,表 1 给出了一些典型的 PGAI 应用条件及测量效果。

表 1 部分 PGAI 平台、应用条件及测量效果
Table 1 Some PGAI platforms, application conditions and measurement results

Nation/Year	Neutron source type	Type of collimation	Neutron flux rate at the sample/($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	Spatial resolution/mm	Per pixel measurement time/s
Germany/2009 ^[20]	Reactor neutron source	Single hole 2 mm×2 mm	$\sim 10^9$	2	3 557
Germany/2013 ^[19]	Reactor neutron source	Single hole 2 mm×2 mm	$\sim 10^9$	2	10 000
Hungary/2015 ^[22]	Reactor neutron source	Single hole 2 mm×2 mm	$\sim 10^7$	4-7	-
USA/2008 ^[35]	Neutron generator	Chromatography	-	10.5	-
China/2023 ^[34]	Neutron generator	Associated particle	$\sim 10^4$	100	-
China/2020 ^[29]	Isotopic neutron source	Single hole 50 mm×50 mm	$\sim 10^3$	50	-
China/2020 ^[30]	Neutron generator	Single hole (2-d) 40 mm×40 mm	$\sim 10^4$	40	3 600
China/2022 ^[32]	Isotopic neutron source	Single hole(2-d) 10 mm×10 mm	$\sim 10^3$	×	×
China/2022 ^[31-32]	Isotopic neutron source	Coded mask(2-d)	$\sim 10^3$	10	10 800
USA/2021 ^[36]	Gamma verification	Rotary modulation	-	10	-
China/2022	Neutron generator	Rotary modulation(2-d)	$\sim 10^3$	10	7 200

Note: × is not detectable, - is not reported in the publication.

3 总结及展望

本文对基于可移动小型化中子源的 PGAI 技术的实现原理、研究进展及应用局限进行了介绍。由于中子及伽马射线的强穿透能力,该技术在大批样品内部元素分布检测中具有独特的优势,尽管基于反应堆和大型加速器的 PGAI 平台已经可以开展多种研究,然而面向现场应用依然存在局限性。可移动小型化中子源是该技术现场应用的必然要求,然而由于中子源通量低,传统的准直测量方法无法实现高分辨率的测量。针对该问题,目前利用编码成像的方法提高了测量效果,其空间分辨率能够达到 0.5~1 cm。在未来的工作中,将进一步从图像重建算法上开展工作如利用超分辨重建等技术,弥补硬件条件带来的限制。在实际应用中可根据需求,联用中子照相或者 X 射线透射等技术以满足更为复杂的应用要求。

参考文献

- [1] BLEUET P, GERGAUD P, LEMELLE L, et al. 3D chemical imaging based on a third-generation synchrotron source [J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2010, 29(6): 518-527.
- [2] 郑培超, 刘少剑, 王金梅, 等. LIBS 结合图像筛选方法提高钢铁中 Cu、Cr、Mn 元素检测稳定性研究 [J]. *中国*

无机分析化学, 2024, 14(2): 223-232.

- ZHENG Peichao, LIU Shaojian, WANG Jinmei, et al. Enhancement of detection stability for Cu, Cr, and Mn in steel using LIBS coupled with image screening methods [J]. *Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry*, 2024, 14(2): 223-232.
- [3] FABRE C, DEVISMES D, MONCAYO S, et al. Elemental imaging by laser-induced breakdown spectroscopy for the geological characterization of minerals [J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2018, 33(8): 1345-1353.
- [4] SHINOHARA T, KAI T, OIKAWA K, et al. The energy-resolved neutron imaging system, RADEN [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2020, 91(4): 043302. DOI: 10.1063/1.5136034.
- [5] TREMSIN A S, VALLERGA J V. Unique capabilities and applications of Microchannel Plate (MCP) detectors with Medipix/Timepix readout [J]. *Radiation Measurements*, 2020, 130: 106228. DOI: 10.1016/j.radmeas.2019.106228.
- [6] CIPPO E P, BORELLA A, GORINI G, et al. Imaging of cultural heritage objects using neutron resonances [J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2011, 26(5): 992-999.
- [7] YANG J Q, ZHOU J R, ZHANG L J, et al. Recent measurements at the CSNS towards the construction of a nMCP detector for the energy resolved neutron

- imaging instrument [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2021, 1003: 165322. DOI: 10. 1016/j. nima. 2021. 165322.
- [8] RUIZ E R C, STALDER N, LEE J, et al. Prospects of spectroscopic neutron imaging: optimizing experimental setups in battery electrolyte research [J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2023, 25(36): 24993-25007.
- [9] 姚永刚, 肖才锦, 李玉庆, 等. 月球样品的中子活化分析技术研究[J]. 中国无机分析化学, 2024, 14(1): 93-103.
YAO Yonggang, XIAO Caijin, LI Yuqing, et al. Research on neutron activation analysis technology for lunar samples[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2024, 14(1): 93-103.
- [10] AL-ABDULLAH T, NAQVI A A, KHIARI F Z, et al. Sulfur analysis in bulk samples using a DD portable neutron generator based PGNA setup[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2020, 326(1): 555-561.
- [11] 袁司夷, 朱琳, 韩聪美, 等. 在线分析技术在中国的发展[J]. 中国无机分析化学, 2020, 10(2): 20-27.
YUAN Siyi, ZHU Lin, HAN Congmei, et al. Development of online analytical technology in China [J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2020, 10(2): 20-27.
- [12] MAUERHOFER E, HAVENITH A, KETTLER J. Prompt gamma neutron activation analysis of a 200 L steel drum homogeneously filled with concrete [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2016, 309: 273-278.
- [13] 刘立坤, 郭冬发, 黄秋红. 岩石矿物中铀钍的分析方法进展——非破坏分析法[J]. 中国无机分析化学, 2012, 2(4): 10-14.
LIU Likun, GUO Dongfa, HUANG Qihong. Review on the analytical methods for determination of uranium and thorium in rocks and minerals——non-destructive analysis[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2012, 2(4): 10-14.
- [14] 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.
- [15] KIS Z, SZENTMIKLÓSI L, BELGYA T. NIPS-NORMA station—a combined facility for neutron-based nondestructive element analysis and imaging at the Budapest Neutron Centre [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, 779: 116-123.
- [16] KLUGE E J, STIEGHORST C, REVAY Z, et al. Optimization and characterization of the PGAI-NT instrument's Neutron Tomography set-up at MLZ [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2019, 932: 1-15.
- [17] BELGYA T, KIS Z, SZENTMIKLÓSI L, et al. First elemental imaging experiments on a combined PGAI and NT setup at the Budapest Research Reactor [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2008, 278(3): 751-754.
- [18] KIS Z, BELGYA T, SZENTMIKLÓSI L. Monte Carlo simulations towards semi-quantitative prompt gamma activation imaging [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2011, 638(1): 143-146.
- [19] SCHULZE R, SZENTMIKLÓSI L, KUDEJOVA P, et al. The ANCIENT CHARM project at FRM II: three-dimensional elemental mapping by prompt gamma activation imaging and neutron tomography [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2013, 28(9): 1508-1512.
- [20] CANELLA L, KUDÉJOVÁ 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.
- [21] MARÓTI B, POLONKAI B, SZILÁGYI V, et al. Joint application of structured-light optical scanning, neutron tomography and position-sensitive prompt gamma activation analysis for the non-destructive structural and compositional characterization of fossil echinoids [J]. NDT & E International, 2020, 115: 102295. DOI: 10. 1016/j. ndteint. 2020. 102295.
- [22] SZENTMIKLÓSI L, KIS Z. Characterizing nuclear materials hidden in lead containers by neutron-tomography-driven prompt gamma activation imaging (PGAI-NT) [J]. Analytical Methods, 2015, 7(7): 3157-3163.
- [23] 姚永刚, 肖才锦, 金象春, 等. CARR 堆冷中子瞬发伽玛活化分析系统及实验研究 [J]. 同位素, 2018, 31(6): 362-369.
YAO Yonggang, XIAO Caijin, JIN Xiangchun, et al. Experimental research on cold neutron prompt gamma-ray activation analysis system at CARR [J]. Journal of Isotopes, 2018, 31(6): 362-369.

- [24] 杨鑫,李润东,王冠博,等.瞬发 γ 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.
- [25] CHEN-MAYER H H, BROWN S, YANG H. Feasibility study of Compton imaging for PGAA[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2019,322(3):1729-1738.
- [26] LEE H R, KIM J, SUN G M. Monte Carlo simulation study on coincidence-based imaging system for neutron-induced prompt-gamma activation imaging[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2018,318(3):2285-2289.
- [27] EVANS C J, MUTAMBA Q B. The use of associated particle timing based on the D+D reaction for imaging a solid object[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2002,56:711-716.
- [28] 耿书群.基于热中子的瞬发 γ 射线活化成像技术的模拟研究[D].南京:南京航空航天大学,2018.
GENG Shuqun. Simulation study of prompt gamma activation imaging technology based on the thermal neutron[D]. Nanjing: Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, 2018.
- [29] 程璨.基于PGNAA技术的大块样品元素分布检测的研究[D].南京:南京航空航天大学,2020.
CHENG Can. Study of elemental distribution in a bulk sample based on PGNAA Technique [D]. Nanjing: Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, 2020.
- [30] HEI D Q, JIA W B, CHENG C, et al. Feasibility study of fast neutron-induced gamma ray imaging of large sample based on D-T neutron generator [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2021, 492:7-14.
- [31] 贾文宝,陈奕泽,黑大千,等.基于多编码板准直器的瞬发 γ 射线活化成像[J].核技术,2022,45(10):100201-1-8. DOI:10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.100201.
JIA Wenbao, CHEN Yize, HEI Daqian, et al. Prompt gamma-ray activation imaging based on multi coded-aperture collimators [J]. Nuclear Techniques, 2022, 45(10): 100201. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.100201.
- [32] 陈奕泽.基于编码准直PAGI技术的二维元素分布检测方法研究[D].南京:南京航空航天大学,2023.
CHEN Yize. Study on detection method of 2D element distribution with coded-aperture based PAGI technology [D]. Nanjing: Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, 2023.
- [33] ABEL M R, NIE L H. Monte Carlo simulations of elemental imaging using the neutron-associated particle technique[J]. Medical Physics, 2018,45(4):1631-1644.
- [34] ZHANG R, CHEN S Z, PENG C, et al. Development of an associated particle imaging system with pixel SiC detectors [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2023,1052:168304. DOI:10.1016/j.nima.2023.168304.
- [35] FLOYD C E, KAPADIA A J, BENDER J E, et al. Neutron-stimulated emission computed tomography of a multi-element phantom[J]. Physics in Medicine & Biology, 2008,53(9):2313-2326.
- [36] KIM H S, KIM G, YE S J. Dual-particle imaging performance of a $\text{Cs}_2\text{LiYCl}_6:\text{Ce}$ (CLYC)-based rotational modulation collimator (RMC) system [J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2021,69(6):1389-1396.