

doi:10.3969/j.issn.2095-1035.2024.01.011

月球样品的中子活化分析技术研究

姚永刚 肖才锦* 李玉庆 焦学胜 孙凯 郭冰 陈东风*

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要 月球的起源是月球研究的核心问题。月球探测任务返回的数据和样品极大地提高了人类对地月系统的认知,同时也发现了更多未解之谜,亟待未来的探测任务和科学研究来解答。嫦娥五号月壤是我国首次地外天体采集返回的样品,也是继美国和苏联探月采样任务 45 年后人类再次获得的月球样品。鉴于月球样品的珍贵性和特殊性,利用先进技术开展其全元素含量的非破坏精准分析对于认识月球演化和月球资源就地开发利用具有重要的意义。依托大型核反应研究堆和加速器中子注量率优势,利用中子活化分析技术可实现月球样品中的全元素非破坏分析:1)仪器中子活化分析技术(INAA)可测量 Na—U 元素之间的 60 余种元素;2)瞬发 γ 中子活化分析技术(PGNAA)可补充测量 INAA 不适合测量的元素如 H、B、C、N 等;3)中子深度剖面分析技术(NDP)可测量样品近表面(微米级)聚变能源³He 的浓度深度分布;4)缓发中子测量技术(DNC)可定量样品中痕量裂变核素如²³⁵U 和²³⁹Pu,并结合 INAA 可测量²³⁸U/²³⁵U 同位素比值;5)14 MeV 快中子活化分析技术(FNAA)可测量 INAA 和 PGNAA 不灵敏或不适合测量的元素如 O、Si、P 等。因此,中子活化分析技术(NAA)可有效解决月球样品中全元素、非破坏和精准测量问题,为我国深空探测珍贵样品研究提供核分析技术支撑。

关键词 嫦娥五号月壤;月球陨石;中子活化分析;非破坏分析;深空探测

中图分类号:O657.35 **文献标志码**:A **文章编号**:2095-1035(2024)01-0093-11

Research on Neutron Activation Analysis Technology for Lunar Samples

YAO Yonggang, XIAO Caijin*, LI Yuqing, JIAO Xuesheng, SUN Kai, GUO Bing, CHEN Dongfeng*

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract The origin of the Moon is a core issue of lunar research. The data and samples returned by the lunar exploration missions have greatly improved the knowledge of the Earth-Moon system for human beings. However, some unsolved mysteries have been discovered and urgently needed to be answered by future exploration tasks and scientific research. China's Chang'E-5 (CE-5) lunar soil is the first sample collected and returned by an extraterrestrial body in China, and it is also the lunar sample obtained by humans Forty-five years after the US and Soviet lunar exploration sampling missions. Given the preciousness and specificity of lunar samples, the use of advanced technologies for non-destructive and precise analysis of the total elemental contents in the lunar soil sample is of great significance for understanding the lunar

收稿日期:2023-06-07 **修回日期**:2023-06-13

基金项目:国家财政部稳定支持基础科研计划专项项目(BJ22003001);秦始皇帝陵博物院青年开放课题(Qkfkt202108)

作者简介:姚永刚,男,副研究员,主要从事中子活化分析技术及应用研究。E-mail:yaoyonggang@ciae.ac.cn

* **通信作者**:肖才锦,男,研究员,主要从事中子活化分析技术研究。E-mail:cjshaw@ciae.ac.cn

陈东风,男,研究员,主要从事中子活化分析技术研究。E-mail:dongfeng@ciae.ac.cn

引用格式: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):093-103.
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):093-103.

evolution and the in-situ development and utilization of lunar resources. Based on the advantages of large-scale nuclear research reactors and accelerators neutron fluence rates, the non-destructive analysis of all natural elements in the lunar samples can be achieved using neutron activation analysis technology: 1) over 60 elements between Na and U can be detected by the instrumental neutron activation analysis technology(INAA). 2) The elements(e. g. ,H,B,C and N) that are usually not suitable for INAA method can be measured by prompt gamma-ray neutron activation analysis(PGNAA). 3) The depth of ^3He concentration in the near surface(micron level)of lunar sample could be analyzed by neutron depth profiling(NDP). 4) Trace fission nuclides such as ^{235}U and ^{239}Pu in the sample can be quantified by delayed neutron counting(DNC), and the $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ isotope ratio was also obtained by combining with INAA method. 5) Elements(e. g. ,O,Si and P) that are not suitable for INAA and PGNA methods can be measured by the 14 MeV fast neutron activation analysis(FNAA). Therefore, the neutron activation analysis(NAA) technology can effectively solve the problem of non-destructive, high-precision measurement for the natural elements in the lunar sample, and provide a nuclear technology supporting for the China's deep-space exploration samples.

Keywords Chang' E-5 lunar regolith; lunar meteorites; neutron activation analysis; non-destructive analysis; deep space exploration

地外样品是目前能获取到的来自其他天体的最直接地质证据。研究地外样品的目的在于揭示太阳系及其所含天体的宏观与微观演化过程,为人类进一步研究行星环境以及探索外星生命等提供认识。地外珍贵样品成分的非破坏精准分析对于人类认识天体演化以及我国深空探测与资源就地开发利用都具有重要的意义。月球是地球唯一的天然卫星,也是离地球最近的天体,是世界各国开展深空探测活动的首选目标。同时,其独特的太空环境和丰富的矿产资源使月球成为人类深空探索任务的理想前哨站,开发月球资源和建设月球基地已成为各航空航天大国和新兴国家竞争的焦点^[1-2]。

月壤是月球上最重要的资源,对月壤的研究将为人进一步解行星起源、探索宇宙奥秘、开展星际探测提供重要信息。地球上的土壤是机械作用、化学作用和生物作用的综合产物,而月壤主要是机械作用的产物如陨石的频繁撞击,撞击溅射物的不断堆积,宇宙射线的轰击和剧烈的温差促使月表岩石破裂和粉碎等^[3]。由此看出,月壤的形成是月球表面最重要的过程之一,其记录了关于月球及其空间环境的历史,是研究大时间尺度太阳活动的窗口。而月球化学元素和岩石矿物的丰度与分布是月球地质演化研究的基本素材。通过研究化学元素的含量和分布特征反演月球的地质演化过程,从而可进一步分析研究月球的整体化学成分与化学演化历史^[4]。相比于天文观测和遥感探测,直接利用月球采样返回任务采集的月壤样品开展实验室全面系统的精细化研究对于人类深入认识月球和其演化历史

具有重要作用。1969~1972 年期间,美国 6 次阿波罗(Apollo)任务共采集回月球样品 381.7 kg。苏联月球(Luna)任务在 1970~1976 年间实施了 3 次无人样品采集与返回,共采集 0.321 kg 月球样品。科学家通过美国 Apollo 和苏联 Luna 返回月球样品的地面实验室分析工作获得了大量数据和成果,对人类科学认识月球起到了关键作用^[5]。2020 年 12 月 17 日,我国嫦娥五号探测器(CE-5)成功采集 1 731 g 月壤并返回地球,是继美国和苏联探月采样任务 45 年后人类再次获得的月球样品,也是人类首次在月球表面最年轻火山岩地区进行采样,弥补了美国和苏联采样区域有限的不足,拓展了月球样品的代表性^[6]。因此,我国首次地外采集的嫦娥五号月壤具有极其重要的科研价值和历史意义。2021 年 7 月 12 日,首批嫦娥五号月壤样品正式发放受到全国人民的关注,迅速点燃了中国科学家对月球和行星科学的研究热潮。由于 CE-5 月壤样品的特殊和珍贵,一般优先选用非破坏分析方法对 CE-5 月壤开展研究。中子活化分析技术(Neutron Activation Analysis,NAA)是一种核分析方法,利用其多元素、高灵敏和非破坏等特点,适合开展月壤样品的全元素精准分析。

深空探测事业是拓展人类认知、服务人类文明、增进人类福祉的伟大事业,值得人类永续求索。当前,月球是深空探测热点,人类已经成功完成了 10 次月球采样。月球科学研究对推动空间科学及相关探测技术发展具有重要作用,我国嫦娥五号月球样品研究已经取得系列原创性成果如月壤样品基本特性和新矿物、月球火山活动历史及年轻火山活

动成因、月球水和挥发分的含量与来源、月球表面陨石撞击和太空风化作用等,改变了人类对月球的热历史和岩浆历史的认识,对进一步研究和揭示月球起源和演化具有重要意义^[6-8]。本文根据嫦娥五号月壤的仪器中子活化分析研究为基础,主要介绍中子活化分析技术及其在月球样品研究中的作用和意义,为我国今后深空探测、月球演化认识和原位资源开发利用提供必要的核分析技术支撑。

1 活化分析原理

活化分析的基础是核反应,原理是使用一定能量和流强的中子、光子或其他带电粒子(如质子等)照射待测样品,使样品中被测元素/核素的原子受激活化,利用探测器测量核反应生成的放射性核素衰变时放出的缓发辐射或直接测量核反应时放出的瞬发辐射,从而实现元素/核素定量和定性分析的核分析技术^[9]。按照辐照粒子不同,活化分析可以分为中子活化分析、带电粒子活化分析和光子活化分析,其中以中子活化分析应用最广。而中子活化分析根据不同的方式可进一步划分为:1)根据入射中子能量的不同可分为冷中子活化分析、热中子活化分析、超热中子活化分析和快中子活化分析;2)根据中子源类型可分为反应堆中子活化分析、加速器中子源和同位素中子源活化分析;3)根据测量反应过程中不同的 γ 射线又可分为瞬发 γ 中子活化分析和缓发 γ 中子活化分析;4)根据照射后样品是否需要化学分离,可分为仪器中子活化分析(或常规中子活化分析,属于非破坏性分析)和放射化学中子活化分析(属于破坏性分析)。由于反应堆中子源中子注量率高、对多数元素活化截面大以及中子注量率的空间均匀性好等特点,因此,以反应堆为中子源的中子活化分析具有较低的探测极限、较高的选择性和准确度等优势,是活化分析的主流^[9-10]。

2 活化分析技术

2.1 仪器中子活化

仪器中子活化分析(Instrumental Neutron Activation Analysis, INAA)通常是指样品辐照后不进行任何化学处理,直接进行测量的分析方法。一般先将待测样品和质控标样以及堆中子参数测量活化片(如 Fe、Zr、Au 等高纯材料)通过传输装置送入到反应堆内进行中子辐照,然后经过一定冷却时间后,再利用高纯锗探测器和数字化多道谱仪进行样品中缓发 γ 射线的测量和分析。INAA 绝对定量公式如式(1)

所示^[15]:

$$m = \frac{MA}{N_A \theta \varphi \sigma \gamma \epsilon S D C} \quad (1)$$

式(1)中, m 为样品中待测元素的含量,g; M 为待测元素的摩尔质量,g/mol; A 为待测元素分析峰的强度, s^{-1} ; N_A 为阿伏伽德罗常数 6.02×10^{23} , mol^{-1} ; θ 为靶核素的同位素丰度,%; φ 为样品辐照所接受的中子注量率, $cm^{-2} \cdot s^{-1}$; σ 为核素与中子发生核反应的有效截面, cm^2 ; γ 为分析峰的 γ 分支比,%; ϵ 为分析峰的探测效率,%; S 为饱和因子, $S = 1 - \exp(-0.693t_i/t)$; D 为衰变因子, $D = \exp(-0.693t_d/t)$; C 为测量因子, $C = [1 - \exp(-0.693t_c/t)] / (0.693t_c/t)$ 。其中 S 、 D 和 C 因子公式中的 t_i 、 t_d 和 t_c 分别是指样品受中子照射时间、衰变/冷却时间和测量时间,s; t 是样品中子活化后生成的放射性核素的半衰期,s。在实际定量分析方面,由于有关核参数和实验参数准确度不高,一般主要采用 k_0 法和相对法进行元素定量^[11-12]。

INAA作为一种多元素分析方法,具有非破坏性、灵敏度高、准确度好、无需样品预处理、无试剂空白和可测元素种类多等优点,广泛应用于地球化学、宇宙科学、环境科学、考古学以及标准物质定值等领域。鉴于上述中子活化分析的特点和优势,INAA成为美国 Apollo 月球样品的主微量元素含量的主要分析方法之一^[12-14]。此外,有时为提高样品分析灵敏度,也采用将中子辐照后的样品先进行化学处理(即分离富集待分析的放射性核素)后再进行样品测量和分析,此方法称为放射化学中子活化分析(Radiochemical Neutron Activation Analysis, RNAA)^[9,14-15]。

1958年,我国第一座反应堆(简称 101 堆)和第一台加速器在中国科学院原子能所(现为中国原子能科学研究院)建成并投入运行,奠定了我国核技术应用的基础。20 世纪 80 年代,中国科学院原子能所(现中国原子能科学研究院)、中国科学院高能物理研究所和地球化学研究所曾利用 INAA 和 RNAA 技术开展了美国赠送给中国的 Apollo17 月球样品中元素含量的分析工作^[15-16]。此外,日本 Itokawa 小行星样品、宇宙尘以及月球和火星陨石等珍贵样品也是把 INAA 作为其中主微量元素分析的主要分析方法之一^[17-20]。

我国嫦娥五号(CE-5)成功采集 1 731 g 月壤并返回地球后,鉴于 CE-5 月壤样品的珍贵和特殊意义,中国原子能科学研究院联合中科院国家天文台针对 CE-5 任务采集的月球表面铲取样品,利用

INAA 技术的高灵敏、多元素、非破坏等优势开展了 CE-5 样品中 49 种元素的分析^[21]。此次 CE-5 月壤 INAA 实验中,利用微型中子源反应堆(Miniature Neutron Source Reactor, MNSR)开展月壤样品的短照实验(辐照时间为 300 s),测量了 Al、V、Mg、Ca、Ti、Dy、K 等元素含量;以及利用 49-2 泳池堆(Swimming Pool Reactor, SPR)开展了月壤样品长照实验(辐照时间为 24 h),测量了 Fe、Co、Na、Sc、Ba、U、Th、Cr、Zr、Zn、Ir、Au 和稀土元素等元素含量信息,实验参数如表 1 所示。为确保 CE-5 月壤

样品分析的准确性和可靠性,实验中采用多种认证参考标准物质和单元素化学标准进行质控。实验研究结果与美国 Apollo 和苏联 Luna 月球样品元素含量数据进行了对比研究。由于铂族元素在地壳中高度亏损,但在大部分地外物质中富集,因此,通常将铂族元素铱(Ir)含量异常作为是否有地外物质加入的重要依据之一。例如柴之芳院士团队^[22-23]曾利用 INAA 技术研究了白垩系和第三系界限(距今 6 500 万年)黏土层中 Ir 丰度的异常,并提出了恐龙灭绝的地外物质碰撞模型。

表 1 中子活化分析实验参数
Table 1 Experimental parameters of INAA

Thermalneutron fluence rate/ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	Irradiation time	Decay time/d	Counting time/s	Elements
9.0×10^{11} (MNSR)	300 ^①	150 ^①	500	Al, Mg, Ca, Ti, Mn, V
		8 ^②	2 000	Dy, Na, K
		4	2 000	K
3.9×10^{13} (SPR)	24 ^②	6—10	5 000	Na, Ho, La, Sm, Lu, Yb, U, Au, Pr, W, Ca, Re, Os, As, Br, Cd, Ga, Hg, Rb
		20	10 000	Hf, Cr, Fe, Sc, Co, Ni, Sr, Nd, Zr, Ce, Ba, Th, Ir, Tb, Eu, Gd, Sb
		25	15 000	Cs, Zn, Ag, Se, Ta, Tm

Note: ^① The unit is s, ^② The unit is h.

除了在月球直接采取珍贵的月壤外,月球陨石也是研究地月系统中重要的样品资源。月球陨石是月球遭受小行星或彗星撞击飞溅出来并降落到地球上的岩石,其独特的化学成分与地球岩石有明显差异,直接反映了月球的关键演化信息。人类从月球直接采集样品,其样品种类和采样区域有限,且所需人员和经费投入巨大。而月球陨石随机来源于月球的各个部位,代表了来自月球表面随机区域的样品,是除人类取回的珍贵月壤之外研究月球物质成分和演化历史重要的样品补充来源^[18-19]。在陨石研究方面,国内外科研人员利用 INAA 技术也开展了大量的工作,比如吉林陨石研究、阿德伦陨石、月球陨石以及其他陨石等^[24-27]。当然,INAA 技术也有其不足,比如不能辐照液态或气体(需要样品制备成固态),主要适用于分析固态样品;不能测量样品中元素的化学价态;不同元素的分析元素灵敏度差异较大;不适合分析低原子序数的元素含量如 H、B 等。因此,针对月球样品或珍贵地外样品开展地面实验室多角度、全元素和精细化研究,需要结合不同技术方法的特点和优势才能完成。欧阳自远等^[28]在《吉林陨石研究的十年》文章中写道:“吉林陨石研究的十年,在我国逐步形成了一支多学科、能进行综合研

究的陨石学、宇宙化学和空间地质学科研队伍。正是这支队伍在我国地学界最早采用仪器中子活化分析、放射化学中子活化分析、快中子活化分析、高分辨电镜、质子激发 X 射线分析、稀有气体同位素质谱分析、低水平放射性宇宙成因核素分析、离子探针质谱分析、火花源质谱分析、加速器质谱分析、裂变径迹和热释光分析等先进技术研究。吉林陨石研究对促进我国地质研究的设备与技术更新、提高研究水平起了重要的推动作用。”同样,针对美国赠送的 1 g Apollo 月壤样品和我国自主采集的 CE-5 月壤开展综合性精细化研究,对于我国优化整合国内科研单位技术优势、建立和培养深空探测人才队伍等起到了非常重要的作用。

2.2 瞬发 γ 中子活化

瞬发 γ 中子活化分析技术(Prompt Gamma-ray Neutron Activation Analysis, PGNA)与 INAA 不同,原理是通过探测器(如高纯锗)测量中子与样品辐照时产生的瞬发 γ 射线的能量和强度来进行元素定量的分析方法。INAA 测量的是中子与样品辐照生成放射性核素的缓发 γ 射线,是一种离线分析方法,其可分析元素周期表中大部分元素,但不适合对中子俘获生成核为非放射性核、纯 β 衰变和 γ 分支

比相对较低的核素测量。而 PGNAA 技术是一种多元素在线检测方式,为 INAA 的补充,对 H、B、C、N、S 等有较好的灵敏度。具体见公式(2)^[29]:

$$P = N\sigma\varphi\epsilon\gamma t = \frac{m N_A \theta}{M} \sigma\varphi\epsilon\gamma t \quad (2)$$

式(2)中, P 为特征 γ 射线峰计数, s^{-1} ; N 为靶核素原子数; σ 为中子俘获截面, cm^2 ; φ 为样品辐照处中子注量率, $cm^{-2} \cdot s^{-1}$; ϵ 为全能峰的探测效率, %; γ 为分支比, %; t 为照射时间, s; N_A 为阿弗加德罗常数 6.02×10^{23} , mol^{-1} ; θ 为靶核素丰度, %; m 为靶元素的质量, g; M 为靶元素的原子摩尔质量, g/mol。

月球没有磁场和大气的保护,已经风化的细小月壤颗粒经过太阳风辐照后被注入太阳风物质中的氢是月球表面水的主要来源,月球永久阴影区中可能存在的大量水冰有重要的科学意义与利用价值。通过分析月球水冰中氢元素的同位素丰度,可探究月球水的来源和演化机制,反演地月系统的起源与演化历史。月球上的水冰也可能是未来人类月球活动的重要资源。但目前月球极区水冰探测结果主要基于雷达、中子、光谱等轨道遥感手段,存在探测精度低、空间分辨率低、信噪比低等问题,难以获得精细的月球极区水冰分布与含量信息^[30-31]。依托反应堆水平孔道高通量中子优势,利用 PGNAA 技术

可直接非破坏在线测量月球样品中 H 含量(或水,是指存在于矿物中的结构水,不是通常意义的水)。具体原理是利用测量样品中的 H 与中子产生的瞬发 γ 特征射线(射线能量 2 223 keV)强度进行元素的定量分析,而且 PGNAA 对于 H 比较灵敏,其探测限可达 $0.1 \sim 1 \mu g$ ^[32]。中国原子能科学研究院依托中国先进研究堆(China Advanced Research Reactor, CARR)冷中子导管初步建立了 PGNAA 实验装置,并已开展了多种样品的瞬发 γ 分析研究,图 1 为 PGNAA 测量 NH_4Cl 样品中的氢元素瞬发 γ 能谱示例^[33]。图 1 中可以看出 H 的特征 γ 射线(能量 2 223 keV)非常明显,也无其他 γ 射线干扰。因此,PGNAA 技术非常适合测量样品中的 H,若用于测量月球样品中更低含量的 H,还需要将样品靶室抽真空或充 4He 气体,以减少空气中水分(H)的本底干扰。除了 H,PGNAA 也适合测量月球样品中的 Cl、Fe、Ca、Mg、Cd、Gd 和稀土元素(Rare Earth Element, REE)等 20 余种 INAA 也适合分析的元素,进一步交叉验证元素分析的可靠性和准确度。此外 PGNAA 技术是一种整体样品实时在线分析方法,与 INAA 相比其优势有可测量低原子序数元素的含量、不受堆内样品辐照管道尺寸和样品形态限制以及可分析大体积样品元素含量和分布等,可与 INAA 技术进行优势互补。

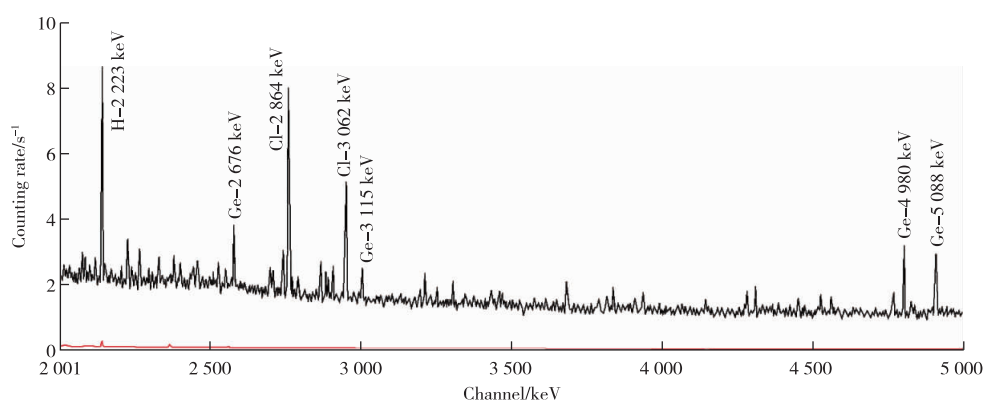


图 1 NH_4Cl 样品中 H 瞬发 γ 能谱

Figure 1 Prompt gamma-ray spectrum of H in the NH_4Cl sample.

对于珍贵的陨石块状样品,可结合 PGNAA 与中子成像(Neutron Tomography, NT)技术实现不对样品切片和取样,对其内部元素成分进行三维分布分析,即瞬发 γ 射线活化成像技术(Prompt Gamma-ray Activation Image, PGAI)^[34-35]。PGAI 是一种新型元素成像方法,该技术基于瞬发 γ 射线中子活化分析并结合准直测量手段,可以实现对样

品内部元素空间分布分析。相比 NT 成像技术,PGAI 技术不仅能对样品内部元素含量进行定量定性分析,还可以得到样品中元素分布的 3D 信息,与中子成像方法优势互补。此外,PGAI 元素成像技术与激光诱导击穿光谱(Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS)成像技术和激光剥蚀电感耦合等离子体质谱(Laser Ablation Inductively Coupled

Plasma Mass Spectrometry, LA-ICP-MS) 技术原位微区多元素扫描成像等不同,其利用的是中子探针和特征 γ 射线的深穿透性,测量的是中子辐照区域体样品的元素含量,而不是样品表面。由于中子具有良好的穿透能力,这一优势使该技术十分适用于大块样品的成分和结构分析。例如,德国科研人员利用 PGAI 技术对一块墨西哥 Allende 陨石块(重量 220 mg)进行了二维元素分布扫描分析,测量了陨石中硅(Si, γ 射线能量 3 539 keV)、铁(Fe, γ 射线能量 7 631 keV)和镁(Mg, γ 射线能量 585 keV)元素分布,研究结果发现陨石中这些元素含量分布非常不均匀^[36]。

此外,月球是离地球最近的天体,独特的太空环境和丰富的矿产资源使月球成为深空探索任务的关键中转站,开发月球资源和建设月球基地已成为各航空航天大国和新兴国家竞争的焦点。鉴于将材料从地球运送到月球的高难度和高成本,原位资源利用(In-situ Resource Utilization, ISRU)已成为月球基地建设中的关键内容^[37]。除了利用 PGNA 或 PGAI 技术非破坏精准测量月球返回样品和陨石中的多元素含量和分布外,还可利用移动式中子源(同位素中子源如²⁵²Cf、小型加速器中子源如 D-D 或 D-T 中子发生器)研制小型化 PGNA 装置。利用小型化 PGNA 技术优势将其搭载到未来月球移动实验室或月球科研车上,可进行月球表面大体积块状石头元素含量原位分析,或开展矿产资源(如 Ti、Fe、REE 等)和生活必需资源(如水)分布勘探,为我国月球科研基地建设和原位资源利用提供核技术力量。

2.3 中子深度剖面分析

中子深度剖面分析(Neutron Depth Profiling, NDP)是一种高灵敏、高分辨测量材料近表面深度分布信息的无损检测技术。NDP 原理是基于轻元素核素(如³He、⁶Li 和¹⁰B 等)俘获热中子后发生(n, p)或(n, α)反应,出射粒子具有特定的能量,通过测定出射粒子(如质子 p 和阿尔法 α 粒子)特定的能量和强度进行元素定性和定量分析。因为出射带电粒子穿过材料时会损失能量,通过测量反应发生的位置到样品表面的能量损失则可以得到该元素的深度分布。深度 X 和剩余能量 E(X)之间的关系满足方程(3)^[38]:

$$X = \int_{E(X)}^{E_0} dE/S(E) \quad (3)$$

式中: E_0 是出射粒子的初始能量,MeV; $E(X)$ 是反应产生的出射粒子经过 X(μ m)深度后的剩余能量,MeV; $S(E)$ 是材料的阻止本领。

氦元素位于元素周期表上第二位,是一种重要的战略性稀有气体资源,在医疗科研、航天军工、半导体等尖端产业都有着无可替代的用途。氦有两种同位素(⁴He 和³He),地球上氦元素主要是⁴He,而³He在地球上非常稀少(天然丰度仅为 0.000134%)储量只有 0.5 t 左右,远远无法满足现有需求。³He 也是一种近乎完美的核聚变燃料,是科学研究上获得极低温环境的重要制冷剂,为超导、量子计算等前沿研究提供重要保障,因此,³He 是重要的战略资源^[39]。而在月球上,因为没有磁场和大气的保护,已经风化的细小月壤颗粒经过太阳风辐照会被注入太阳风物质(主要是氢和氦)。太阳风注入的³He 主要集中于月球表层 1 μ m 以内,由于受各种尺度小天体的撞击,使深层月壤与表层月壤相混合,因此月壤深层也含有³He。通过遥感估算月球表面月壤中³He 含量达到一百万吨量级,能够为人类提供万年的能源需求^[40]。近期,我国科学家通过研究嫦娥五号月壤样品中胶结质玻璃和氦原子探测研究发现,钛铁矿的表面有一层纳米级厚度的玻璃物质,并且有大量氦-3 气泡被捕获并保存在月壤中钛铁矿颗粒表面的玻璃层中^[41]。美国 Apollo 月球样品中的³He 一般都采用破坏性的质谱分析技术,测量的含量范围在 1.4~15.1 ng/g^[42]。因太阳风注入的³He 主要在月壤样品近表面微米,而利用中子与³He 的高反应截面特性和中子深度剖面分析技术优势,可非破坏直接开展月壤近表面中³He 含量分析。NDP 技术测量³He 的探测限为 1.5×10^{12} atom/cm²,具体是利用探测器测量³He 与中子发生核反应³He(n, p)³H 后生成的带电粒子(质子 p 能量 572 keV 和氚³H 能量 191 keV)进行样品中³He 核素的定量分析^[43-44]。中国原子能科学研究院(简称原子能院)依托 CARR 堆高中子通量优势建立了 NDP 装置并开展了标准样品近表面元素含量的深度分布研究和定量技术研究^[38,45]。因此,可尝试利用 NDP 非破坏技术开展研究月样或地外样品近表面中³He 含量的分析。

2.4 缓发中子测量技术

缓发中子测量(Delayed Neutron Counting, DNC)是一种灵敏、快速、无损、准确测定裂变核素(如²³⁵U 和²³⁹Pu)的方法,具体原理是利用样品中²³⁵U 和²³⁹Pu 经反应堆中子辐照后发生裂变反应,裂变产物以零点几秒至几十秒的半衰期释放缓发中子,测量

缓发中子计数即可得出样品中 ^{235}U 和 ^{239}Pu 的含量,裂变产生的缓发中子总计数公式如式(4)所示^[46]:

$$N_s = N\sigma\epsilon\varphi \sum_{n=1}^6 \frac{\alpha_n}{\lambda_n} (1 - e^{-\lambda_n t_i}) e^{-\lambda_n t_d} (1 - e^{-\lambda_n t_c}) \quad (4)$$

式中, N 为样品中可裂变核数; σ 为裂变截面, cm^2 ; ϵ 为缓发中子探测器的探测效率,%; φ 为样品辐照处中子注量率, $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$; t_i 、 t_d 和 t_c 分别为样品辐照、冷却和测量时间,s; α_n 和 λ_n 分别为第 n 组缓发中子的绝对产额和衰变常量。研究人员利用原子能院微堆垂直孔道辐照 ^{235}U 和 ^{239}Pu 样品(辐照时间30 s、冷却2 s、测量100 s),DNC系统测量裂变核素的探测限为 ^{235}U (0.14 μg)和 ^{239}Pu (0.18 μg)。如果利用CARR高中子注量率优势($8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)和8个缓发中子探测器(如 ^3He 管)进行测量,则DNC系统的探测限可降低约2~3个量级^[46-48]。因此,可利用DNC技术非破坏测量月壤样品中的可裂变核素 ^{235}U 和 ^{239}Pu 的含量。此外,可进一步结合INAA技术开展月壤样品中 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 同位素比值研究,具体方法为:样品中裂变核素 ^{235}U 含量可利用DNC测量与中子发生裂变反应后生成的缓发中子进行定量,而 ^{238}U 含量可利用INAA技术测量与中子俘获反应后生成的 ^{239}U - ^{239}Np 特征 γ 射线(能量为277.6 keV)进行定量分析。

2.5 快中子活化

快中子活化分析(Fast Neutron Activation Analysis, FNAA)是利用加速器氘核核反应 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 产生的14 MeV中子辐照待测样品,使样品中的元素(某一种稳定同位素)与快中子产生阈能核反应如 (n, p) 、 (n, α) 和 $(\text{n}, 2\text{n})$ 等,然后利用探测器测量样品活化后生成的放射性特征 γ 射线进行元素定量分析的方法^[48],具体测量的 γ 射线与元素定量之间的关系如式(5)所示:

$$A = \frac{m N_A \theta}{M} \sigma \varphi \epsilon \gamma \text{SDC} \quad (5)$$

式中,各物理量含义与式(2)中一致,都是测量样品活化后放射性生成核产生的缓发 γ 射线,区别只是在于样品辐照选用中子的能量不同,产生的核反应道不同。INAA采用 (n, γ) 反应,而FNAA根据测量不同的元素选用不同的反应如 (n, p) 或 (n, α) 等。因而FNAA和INAA选用的核参数(如反应截面 σ ,其随着中子的能量不同而变化)也不同。

FNAA使用的14 MeV快中子是利用加速器产生的,与反应堆中子源不同的是其能量较大(一般INAA

利用的是反应堆热中子,最可几能量0.025 3 eV),其优势是针对INAA和其他方法难以测定或不灵敏的元素如O、Si、P、N等。比如利用14 MeV中子与氧同位素 ^{16}O 发生 $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ 反应,通过测量 ^{16}N 生成的缓发 γ 射线(如能量6.13 MeV)进行O定量分析。1980年,广东省测试分析研究所(现中国广州分析测试中心)和中国科学院地球化学研究所研究人员曾利用14 MeV快中子活化分析测量了美国Apollo17号月壤(70017-291)中的O、Si、Al、Mg、Ti和Ca等主要元素含量,并与地球岩石和阿伦德陨石样品进行了对比研究^[49]。因此,利用14 MeV快中子活化分析可以开展月壤样品中Si、O等其他活化分析技术难以测量的元素,还可测量Mg、Ti、Ca、Al等元素与INAA和PGNAA等方法结果进行对比验证,进一步提高NAA元素定量分析结果的准确性。

此外,加速器中子源根据中子能量不同分为D-D源(氘氘中子源,中子能量约2.5 MeV)和D-T源(氘氚中子源,中子能量约14 MeV)两种。一般 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反应截面比 $\text{D}(\text{d}, \text{n})^3\text{He}$ 大2个量级,所以D-T中子源产额一般比D-D中子源高2个量级。而进一步根据应用场所或使用方式不同,加速器中子源可分为固定式大型加速器和移动式小型中子发生器/中子管,且一般固定式大型加速器中子源通量比移动式中子发生器/中子管高。比如,中国原子能科学研究院600 kV高压倍加器可提供 $1 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ 的D-T中子,利用飞行时间法测得中子能量为14.65 MeV中子源^[50]。此外,若选择利用伴随粒子标记技术的快中子发生器作为小型化PGNAA装置中子源搭载到月球科研车上,还可精确聚焦待测大块状岩石感兴趣区域产生的瞬发 γ 射线(或可开展大块岩石元素含量分布测量),降低样品周围引起的 γ 本底干扰,进一步提高分析的灵敏度和准确度。

3 其他

除了上述中子活化分析技术在月球样品分析测量以外,利用反应堆中子可为月球样品 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年提供中子辐照。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年法是在 ^{40}K - ^{40}Ar 定年法的基础上发展起来的,二者的桥梁是样品在反应堆用快中子(能量大于100 keV)辐照后, ^{39}K 通过 $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$ 核反应转化为 ^{39}Ar ,而地球岩石矿物样品的 $^{40}\text{K}/^{39}\text{K}$ 为恒定值(恒定是相对的,实际上地球岩石样品中的 $^{40}\text{K}/^{39}\text{K}$ 值是有微小差异的,但这种差异已经被 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年的不确定度所覆

盖),由此建立起 ^{40}Ar 和 ^{39}Ar 之间的关系^[51-52]。

此外,地外物质(如月球样品、陨石、宇宙尘等)长期在宇宙空间运行,直接接受银河宇宙射线和太阳宇宙射线辐照,通过多种核反应产生了多种稳定的和放射性同位素即宇宙成因核素如 ^{26}Al 、 ^{60}Co 、 ^{54}Mn 等。根据宇宙成因核素的含量和产率,可研究地外物质在宇宙射线中的暴露年龄或宇宙射线的组成、通量及时空稳定性等问题^[53]。因此,利用低本底高纯锗探测装置可以非破坏测量月球样品(月壤、月球岩块、月球陨石)中宇宙射线产生的宇生核素,进而为研究月球样品暴露年龄以及宇宙射线通量研究等提供数据。比如,研究人员利用反宇宙射线低本底 γ 谱仪测量了一个目击陨石样品(质量为113 g)中的 γ 放射性核素,测量时间14.2 d,测量发现样品中共含有11种放射性核素如 ^7Be 、 ^{22}Na 、 ^{26}Al 、 ^{54}Mn 、 ^{46}Sc 、 ^{60}Co 、 ^{40}K 和 ^{51}Cr 等^[54]。

中子活化分析技术还可以测量地外样品中宇生核素 ^{53}Mn 含量(半衰期 $3.74\times 10^6\text{ a}$),样品中 ^{53}Mn 主要是由宇宙射线与Fe元素通过散裂反应生成,也是一种用来研究样品在空间受到宇宙射线辐照历史的核素^[55]。因样品中原有的Fe等元素与快中子反应会造成测量干扰[如 $^{54}\text{Fe}(\text{n},\text{p})^{54}\text{Mn}$ 、 $^{55}\text{Mn}(\text{n},2\text{n})^{54}\text{Mn}$ 反应],所以,在INAA分析之前一般采用Fe和Mn化学分离(破坏性)后再利用反应堆中子辐照样品,通过热中子俘获 $^{53}\text{Mn}(\text{n},\gamma)^{54}\text{Mn}$ 核反应生成放射性核素 ^{54}Mn ,再利用高纯锗探测器测量 ^{54}Mn 特征 γ 射线(半衰期312.2 d, γ 能量为834.8 keV)来进行 ^{53}Mn 核素的定量分析。

4 总结与展望

人类已经成功完成了10次月球采样。20世纪,科学家利用地面实验室设备系统研究和分析了Apollo和Luna任务返回的月球样品,获得了丰富的分析数据和研究成果,对科学认识月球起到了关键作用。我国首次地外采样返回-嫦娥五号探月任务的圆满完成,也为我国探月工程“绕、落、回”三个发展阶段的战略规划画上了圆满句号。嫦娥五号月球样品的研究进一步加深和扩展了人类对于月球演化的认识,取得了系列突破性的原创成果。当前月球是世界深空探测热点,我国将在2024年前后发射嫦娥六号探测器,实现人类首次月球背面采样返回;2026年前后发射嫦娥七号,实现月球南极资源勘查;2028年前后发射嫦娥八号,和嫦娥七号一起构成月球科研站基本型以及2030年前实现中国人首

次登陆月球,开展月球科学考察及相关技术实验,进一步深化人类对月球和太阳系起源与演化的认识,为月球科学的发展贡献中国智慧。

而核分析技术主要是提供一种对样品科学的分析手段,生命力在于与物理、化学、材料、医学、地质、环境等学科领域的高度融合,交叉学科及技术的融合应用才能最大发挥核分析技术的优势,以及推动核分析技术的广泛应用。柴之芳院士在《现代核分析技术》序中写道:“从实际应用领域看,上至天文、下到深海,大到宇宙、小到细胞,远溯到考古、近到当代高新技术,都是核分析技术的用武之地。”此外,中子活化分析技术的每种分析方法都有其自身的特点和最佳分析范围,比如INAA一般测量Na到U元素之间60余种元素含量信息,而不能进行样品中元素化学种态分析和低原子序数如H、B含量分析。同时,INAA测量的是样品在反应堆内辐照活化后的缓发 γ 射线,其本质决定了离线测量方式和小样品分析,而不是实时在线测量如PGNAA。PGNAA或PGAI技术优势是利用中子的深穿透性,可非破坏在线测量大体积样品中元素含量或分布,而不是样品表征分析技术如NDP。因此,需要根据样品种类实际情况和具体分析要求,重点选择不同的分析方法组合进行全元素分析。我国是核能与核技术利用大国,而中国原子能科学研究院作为我国核科学技术的发祥地和基础性、前瞻性、先导性、工程性的核科研综合基地,可依托其反应堆高热中子注量率和加速器快中子优势,并结合多种核分析技术开展月球和地外珍贵样品的非破坏分析研究。

本文主要通过介绍中子活化分析技术及其在月球或地外样品分析中的能力,期望为我国未来深空探测中提供核分析技术支持。通过我国嫦娥五号月球样品的分析,国内建立了跨越多学科多部门的联合攻关力量,结合核分析技术和非核分析技术,充分发挥各自优势开展了综合性和精细化的分析研究工作,建立的研究团队和先进的分析技术将为后续世界各国月球探测和深空探测这一人类共同的事业继续贡献中国方案和中国力量。

致谢:感谢中国原子能科学研究院(简称原子能院)刘蕴韬研究员、鲍杰研究员、喻宏研究员、柳卫平研究员、罗琦院士以及中科院国家天文台李春来研究员、常进院士、刘建军研究员、左维研究员、周琴副研究员的大力支持和帮助。感谢原子能院中国先进研究堆、49-2泳池堆和微堆及工作人员提供的样品辐照工作。

参考文献

- [1] CRAWFORD I A, JOY K H. Lunar exploration; opening a window into the history and evolution of the inner Solar system[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 2014, 372: 20130315. DOI: 10.1098/rsta.2013.0315.
- [2] LI C L, WANG C, WEI Y, et al. China's present and future lunar exploration program[J]. *Science*, 2019, 365, 6450: 238-239.
- [3] 郑永春, 欧阳自远, 王世杰, 等. 月壤的物理和机械性质[J]. *矿物岩石*, 2004, 24(4): 14-19.
ZHENG Yongchun, OUYANG Ziyuan, WANG Shijie, et al. Physical and mechanical properties of lunar regolith[J]. *Journal of Mineralogy and Petrology*, 2004, 24(4): 14-19.
- [4] 欧阳自远. 月球科学概论[M]. 北京: 中国宇航出版社, 2005.
OUYANG Ziyuan. Introduction to lunar sciences[M]. Beijing: China Astronautic Press, 2005.
- [5] NEAL C R. The Moon 35 years after Apollo: what's left to learn? [J]. *Chemie der Erde-Geochemistry*, 2009, 69: 3-43.
- [6] LI C L, HU H, YANG M F, et al. Characteristics of the lunar samples returned by Chang'E-5 mission[J]. *National Science Review*, 2022, 9(2): 16-28.
- [7] CHE X, NEMCHIN A, LIU D, et al. Age and composition of young basalts on the Moon, measured from samples returned by Chang'E-5 [J]. *Science*, 2021, 374: 887-890.
- [8] LI Q L, ZHOU Q, LIU Y, et al. Two billion-year-old volcanism on the Moon from Chang'E-5 basalts[J]. *Nature*, 2021, 600: 54-58.
- [9] 中国大百科全书(第三版)核技术编辑委员会. 核技术[M]. 北京: 中国大百科全书出版社, 2021.
Editorial Board of Encyclopedia of China, 3rd ed. Nuclear techniques[M]. Beijing: Encyclopedia of China Publishing House, 2021.
- [10] 朱升云. 核分析技术及其应用[M]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学出版社, 2022.
ZHU Shengyun. Nuclear analytical techniques and applications[M]. Harbin: Harbin Engineering University Press, 2022.
- [11] GREENBERG R R, BODE P, DE NADAI FERNANDES E A. Neutron activation analysis: a primary method of measurement[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2011, 66: 193-241.
- [12] GOLEŠ G G, OSAWA M, RANDLE K, et al. Instrumental neutron activation analyses of lunar specimens[J]. *Science*, 1970, 167: 497-499.
- [13] TUREKIAN K K, KHARKAR D P. Neutron activation analysis of milligram quantities of lunar rocks and soils[J]. *Science*, 1970, 167: 507-509.
- [14] SCHMITT R A, WAKITA H, REY P. Abundances of 30 elements in lunar rocks, soil, and core samples[J]. *Science*, 1970, 167: 512-515.
- [15] 孙用均, 田伟之, 肖家祝, 等. Apollo-17 月海玄武岩样品的仪器和放射化学多元素中子活化分析[J]. *核化学与放射化学*, 1983(5): 167-175.
SUN Yongjun, TIAN Weizhi, XIAO Jiazhong, et al. Multi elemental neutron activation analysis of an Apollo-17 Lunar mare basalt sample using instrumental and radiochemical methods [J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 1983(5): 167-175.
- [16] 孙景信, 陈冰如, 王玉琦, 等. 月岩(70017-291)的仪器中子活化分析[J]. *地球化学*, 1980(4): 419-424.
SUN Jingxin, CHEN Bingru, WANG Yuqi, et al. Instrumental neutron activation analysis of Apollo-17 mare basalt (70017-291) [J]. *Geochimica*, 1980 (4): 419-424.
- [17] EBIHARA M, SEKIMOTO S, SHIRAI N, et al. Neutron activation analysis of a particle returned from Asteroid Itokawa[J]. *Science*, 2011, 333: 1119-1121.
- [18] NAIR A G C, ACHARYA R, REDDY A V R, et al. Elemental composition of Jagannath meteorite by neutron activation analysis[J]. *Current Science*, 2004, 87 (5): 654-657.
- [19] KIRILLOV A, GROZDOV D, ZINICOVSCAIA I. et al. Elemental composition of the Chelyabinsk meteorite determined by neutron activation analysis[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2022, 331: 249-253.
- [20] 倪邦发, 王平生, 田伟之, 等. 宇宙尘-微玻璃球的中子活化分析[J]. *地质地球化学*, 1995(4): 105-108.
NI Bangfa, WANG Pingsheng, TIAN Weizhi, et al. Neutron activation analysis of cosmic dust-microspheres[J]. *Geological and Geochemistry*, 1995(4): 105-108.
- [21] YAO Y G, XIAO C J, WANG P S, et al. Instrumental neutron activation analysis of Chang'E-5 lunar regolith samples[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2022, 144: 5478-5484.
- [22] 柴之芳, 马淑兰, 毛雪瑛, 等. 白垩系和第三系界线富铌层中的元素相关性研究[J]. *地质论评*, 1986(1): 16-23.
CAI Zhifang, MA Shulan, MAO Xueying, et al. Elemental correlation in Ir-rich cretaceous and tertiary

- boundary layers [J]. *Geological Review*, 1986 (1): 16-23.
- [23] 孔屏, 柴之芳. 白垩-第三纪界线样品异常铱的赋存状态及其地质意义[J]. *地质科学*, 1993, 28(1): 87-92.
KONG Ping, CAI Zhifang. Chemical species of anomalous iridium and implication of insoluble spherules in the cretaceous-tertiary boundary clay [J]. *Scientia Geologica Sinica*, 1993, 28(1): 87-92.
- [24] 金立云, 李云, 杨敏. 吉林陨石中 6 个贵金属元素的中子活化分析[J]. *核技术*, 1982, 5(4): 44-45.
JIN Liyun, LI Yun, YANG Min. Neutron activation analysis of six metal elements in the Jilin meteorites[J]. *Nuclear Techniques*, 1982, 5(4): 44-45.
- [25] 袁玲, 林杨挺, 欧阳自远. 阿伦德陨石中壳层球粒的仪器及放射化学中子活化分析[J]. *核化学与放射化学*, 1988, 10(4): 226.
YUAN Ling, LIN Yangting, OUYANG Ziyuan. Instrumental and radiochemical neutron activation analysis of layered chondrules from Allende meteorite[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 1988, 10(4): 226.
- [26] YAO Y G, XIAO C J, LI C L, et al. Determination of the multi-elemental composition of lunar meteorites using instrumental neutron activation analysis [J]. *Atomic Spectroscopy*, 2022, 43(4): 313-320.
- [27] 钟红海, 黄景清, 凌育远, 等. 用仪器中子活化分析研究岩庄陨石元素宇宙化学特征[J]. *分析测试学报*, 1995, 14(2): 7-11.
ZHONG Honghai, HUANG Jingqing, LING Yuyuan, et al. A preliminary study on the cosmochemical characteristics of elements in the Yanzhuang meteorites by INAA[J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 1995, 14(2): 7-11.
- [28] 欧阳自远, 李肇辉. 吉林陨石研究的十年[J]. *中国科学院院刊*, 1986, 1(4): 337-341.
OUYANG Ziyuan, LI Zhaozhui. Ten-years of scientific research on Jilin meteorites [J]. *Bulletin of Chinese Academy of Sciences*, 1986, 1(4): 337-341.
- [29] 张兰芝, 倪邦发, 田伟之, 等. 瞬发 γ 中子活化分析系统的建立[J]. *原子核物理评论*, 2005, 22(1): 103-105.
ZHANG Lanzhi, NI Bangfa, TIAN Weizhi, et al. System of prompt γ -ray neutron activation analysis[J]. *Nuclear Physics Review*, 2005, 22(1): 103-105.
- [30] 王超, 张晓静, 姚伟. 月球极区水冰资源原位开发利用研究进展[J]. *深空探测学报*, 2020, 7(3): 241-247.
WANG Chao, ZHANG Xiaojing, YAO Wei. Research prospects of lunar polar water ice resource in-situ utilization [J]. *Journal of Deep Space Exploration*, 2020, 7(3): 241-247.
- [31] 季节, 张伟伟, 杨旭, 等. 月球极区水冰采样探测技术综述[J]. *深空探测学报*, 2022, 9(2): 101-113.
JI Jie, ZHANG Weiwei, YANG Xu, et al. Overview of water ice sampling and detection techniques in the lunar polar region [J]. *Journal of Deep Space Exploration*, 2022, 9(2): 101-113.
- [32] LINDSTROM R M, RÉVAY Z. Prompt gamma neutron activation analysis (PGAA): recent developments and applications [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2017, 314: 843-858.
- [33] 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.
- [34] 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.
- [35] 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. 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.
- [36] LEA C, PETRA K, RALF S, 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.
- [37] 刘建忠, 李雄耀, 朱凯, 等. 月球原位资源利用及关键科学与技术问题[J]. *中国科学基金*, 2022, 36(6): 907-918.
LIU Jianzhong, LI Xiongyao, ZHU Kai, et al. Key science and technology issues of lunar in situ resource utilization [J]. *Bulletin of National Natural Science Foundation of China*, 2022, 36(6): 907-918.
- [38] TANG C J, XIAO C J, YAO Y G, et al. Neutron depth profiling system at CARR [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2019, 148: 102-107.
- [39] 法文哲, 金亚秋. “嫦娥一号”多通道微波辐射计测量估算全月球月壤层氦 3 含量 [J]. *科学通报*, 2010, 55(32): 3097-3101.

- FA Wenzhe, JIN Yaqiu. Global inventory of helium-3 in lunar regoliths estimated by a multi-channel microwave radiometer on the Chang-E 1 lunar satellite[J]. Chinese Science Bulletin, 2010, 55(32): 3097-3101.
- [40] 欧阳自远, 邹永廖, 李春来, 等. 月球某些资源的开发利用前景[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2002, 27(5): 498-503.
- OUYANG Ziyuan, ZOU Yongliao, LI Chunlai, et al. Prospect of exploration and utilization of some lunar resources [J]. Earth Science-Journal of China University of Geoscience, 2002, 27(5): 498-503.
- [41] LI A, CHEN X, SONG L J, et al. Taking advantage of glass: capturing and retaining the helium gas on the moon[J]. Materials Futures, 2022, 1: 035101. DOI: 10.1088/2752-5724/ac74af.
- [42] SLYUTA E N, ABDRAKHIMOV A M, GALIMOV E M, et al. The estimation of helium-3 probable reserves in lunar regolith [J]. Lunar and Planetary Science XXXVIII, 2007. <https://www.lpi.usra.edu/meetings/lpsc2007/pdf/2175.pdf>.
- [43] DOWNING R G, LAMAZE G P, LANGLAND J K, et al. Neutron depth profiling: overview of the NIST facilities [J]. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 1993, 98(1): 109-126.
- [44] LAMAZE G P, CHEN-MAYER H, LANGLAND J K, et al. Neutron depth profiling with the new NIST cold neutron source[J]. Surface & Interface Analysis, 2015, 25(3): 217-220.
- [45] SHI C, XIAO C J, YAO Y G, et al. Inverse iteration algorithm for neutron depth profiling [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2018, 317: 81-85.
- [46] 张贵英, 肖才锦, 袁国军, 等. 缓发中子计数法定量 ^{235}U 、 ^{239}Pu 初步研究[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(7): 1096-1011.
- ZHANG Guiying, XIAO Caijin, YUAN Guojun, et al. Preliminary study on determination of ^{235}U and ^{239}Pu using delayed neutron counting method [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2013, 47(7): 1096-1011.
- [47] XIAO C J, YAO Y G, JIN X C, et al. Application of delayed neutron counting at CIAE [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2017, 312: 711-715.
- [48] 胡国辉, 钟红海, 许汉卿, 等. 中国某些球粒陨石中主量元素的 14 MeV 中子活化分析[J]. 科学通报, 1984, 29(13): 806-809.
- HU Guohui, ZHONG Honghai, XU Hanqing, et al. 14 MeV neutron activation analysis of major elements for some chondrite meteorites in China [J]. Chinese Science Bulletin, 1984, 29(13): 806-809.
- [49] 胡国辉, 钟红海, 许汉卿, 等. 阿波罗-17(70017-291)月海玄武岩的 14 MeV 中子活化分析[J]. 地球化学, 1980(3): 248-252.
- HU Guohui, ZHONG Honghai, XU Hanqing, et al. 14 MeV neutron activation analysis of Apollo-17(70017-291)mare basalt[J]. Geochimica, 1980(3): 248-252.
- [50] 郑小海, 聂阳波, 阮锡超, 等. 基于高压倍加器的快中子照相技术研究[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(6): 1117-1121.
- ZHENG Xiaohai, NIE Yangbo, RUAN Xichao, et al. Experimental study of fast neutron radiography based on cockcroft-walton generator [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, 49(6): 1117-1121.
- [51] 张佳, 刘汉彬, 李军杰, 等. ^{40}Ar - ^{39}Ar 同位素定年方法研究进展[J]. 世界核地质科学, 2014, 31(1): 53-58.
- ZHANG Jia, LIU Hanbin, LI Junjie, et al. Advances in the study of ^{40}Ar - ^{39}Ar isotopic dating method [J]. World Nuclear Geoscience, 2014, 31(1): 53-58.
- [52] 来庆洲, 王厚起, 张波. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 同位素定年技术的发展及其在青藏高原生长演化研究中的应用[J]. 中国无机分析化学, 2023, 13(1): 61-67.
- LAI Qingzhou, WANG Houqi, ZHANG Bo. Development of $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ isotopic dating technology and its application in the study of growth and evolution of the Tibetan Plateau [J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2023, 13(1): 61-67.
- [53] 周小霞, 宋绍仪, 李瑞香. 陨石宇宙成因核素的研究[J]. 空间科学学报, 1981, 1(1): 74-76.
- ZHOU Xiaoxia, SONG Shaoyi, LI Ruixiang. A study of cosmogenic nuclides on meteorites [J]. Chinese Journal of Space Science, 1981, 1(1): 74-76.
- [54] 刁立军, 孟军. 陨石样品中放射性核素 γ 能谱法初步测量分析 [M]. 北京: 中国原子能科学研究院年报, 2012: 266.
- DIAO Lijun, MENG Jun. Gamma-ray spectrometry method for the preliminary determination of radionuclides in the meteorite sample [M]. Beijing: Annual Report of China Institute of Atomic Energy, 2012: 266.
- [55] 易惟熙, 欧阳自远, HEUSSER G, 等. 陨石中宇宙成因核素 ^{53}Mn 的放化中子活化分析[J]. 核技术, 1987(8): 29-35.
- YI Weixi, OUYANG Ziyuan, HEUSSER G, et al. The determination of the cosmogenic ^{53}Mn in meteorites by RNAA [J]. Nuclear Techniques, 1987(8): 29-35.