

文章编号: 1007-4627(2017)03-0604-07

低本底液闪中子探测器的材料测试研究

李学洋¹, 杜强², 刘书魁³, 林兴德², 幸浩洋², 唐昌建², 朱敬军^{1,3,†}

- (1. 四川大学原子核科学技术研究所, 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610065;
2. 四川大学物理科学与技术学院, 成都 610065;
3. 清华大学工程物理系, 粒子技术与辐射成像教育部重点实验室, 北京 100084)

摘要: 为测量中国锦屏地下实验室 (China Jinping underground Laboratory, CJPL) 极低通量的中子本底, 需要建造大型快中子液体闪烁体探测器。建造探测器需要选用低放射性本底材料, 并且化学性质稳定, 不与液体闪烁体发生反应而影响液体闪烁体 (EJ-335) 的性能。为此, 建造了小型液闪探测器, 在其中分别放入聚四氟乙烯、无氧铜、氟橡胶、全氟醚橡胶这 4 种材料进行长期浸泡, 并分别进行了如下测试: 液闪长时间浸泡各种材料前后液闪的吸收光谱测试; 用 ^{60}Co γ 源检测小型液闪探测器光产额随时间的变化情况; 用 Am-Be 中子源检验探测器在浸泡前后的 n - γ 甄别性能。最终实验结果表明, 聚四氟乙烯和全氟醚这 2 种材料与液闪有很好的兼容性, 可作为大型快中子液闪探测器的容器和密封圈的备选材料。

关键词: 液闪探测器; 吸收光谱; 光产额; n - γ 甄别

中图分类号: TL812 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.34.03.604

1 引言

通过天文观测, 可知宇宙中存在大量的暗物质, 暗物质是什么目前仍是个谜^[1]。随着暗物质理论和实验研究的深入, 人们提出了多种可能的暗物质粒子, 其中 WIMP (弱相互作用重粒子) 是最有可能的暗物质候选者, 受到了理论和实验物理学的高度关注。由于 WIMP 粒子与物质之间的作用截面约为弱作用量级, 事例率极低。因此, 通常暗物质直接探测实验都在地下实验室进行以降低本底。目前世界各国都集中人力、物力和财力研究暗物质, 国际上探测 WIMP 粒子具有代表性的实验研究组有: 以意大利为主的 DAMA^[2] 实验、以美国为主的 CDMS^[3] 实验、CoGeNT^[4] 实验、LUX^[5] 实验, 以德国等几国科学家联合进行的 CRESST^[6] 实验、以日本为主的 XMASS^[7] 实验、以韩国为主的 KIMS^[8] 实验等。我国于 2010 年在四川西昌建成的中国锦屏地下实验室 (China Jinping underground Laboratory, CJPL), 其埋深约 2400 米, 是目前世界上最深的地下实验室, 也是我国第一个在地下开展的 WIMPs 直接探测实验的地下实验室^[9]。

中子在探测器中通过核反冲与探测器物质发生相互

作用, 与 WIMPs 粒子类似, 产生的信号很难区分。因此, 中子对暗物质探测实验结果有较大影响, 我们需要对地下实验室内的中子通量进行测量^[10,11]。由于地下实验室的中子本底能量范围宽、通量低, 我们需要建造大体积、自身放射性低、灵敏度高的中子探测器。因此, 建造探测器需要选用低放射性本底材料, 并且化学性质长期稳定, 不与液体闪烁体发生反应、被腐蚀而影响液体闪烁体 (EJ-335) 的性能^[12]。聚四氟乙烯、高纯无氧铜、石英玻璃是低本底物理实验中常使用的高纯度、低放射性材料^[13], 考虑到全石英玻璃容器在运输过程中更易于损坏, 我们拟采用聚四氟乙烯或高纯无氧铜 (内衬镀聚四氟乙烯薄膜以增加光反射) 作为容器, 容器端面用石英玻璃作为闪烁光的收集窗, 通过光导与光电倍增管连接。在容器与石英窗之间需要橡胶类的密封圈, 防止容器内液闪的渗漏。普通橡胶化学性质不够稳定, 易与液闪发生反应而使液闪性能下降。氟橡胶、全氟醚橡胶化学性质比较稳定, 可考虑用于制作密封圈。因此, 我们拟对上述材料进行测试。在本文中, 我们将建造小型液闪探测器, 对拟采用的材料进行测试, 为建造地下实验室所用的低本底中子探测器提供参考。

收稿日期: 2016-12-01; 修改日期: 2017-03-20

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (11055002, 11275134, 11475117); 清华大学粒子技术与辐射成像教育部重点实验室开放基金资助项目 (20151202)

作者简介: 李学洋 (1990-), 男, 湖北潜江人, 学生, 硕士研究生, 核能与核技术工程; E-mail: 454926895@qq.com

† 通信作者: 朱敬军, E-mail: zhujingjun@scu.edu.cn.

2 小型液闪探测器

2.1 4种材料

高纯无氧铜、聚四氟乙烯、氟橡胶和全氟醚橡胶是我们选择的四种测试材料，它们的简要介绍如表 1 所列。

2.2 小型液闪探测器系统

小型液闪探测器的主体为一个长 100 mm、内径 85

mm 的圆柱形玻璃容器，容积为 450 mL。上端开口，灌注 EJ-335 液闪后，分别放入经过无水乙醇和纯水多次清洗后的 4 种材料，然后使用包裹着双层聚四氟乙烯薄膜的玻璃盖子密封，下端为平底，通过硅油与光电倍增管 (CR173) 耦合，周围包裹聚四氟乙烯反光薄膜，其外侧再用黑胶布做避光处理。整个探测器放在特制的支架上，保证光电倍增管不会受到太大的压力而且能与容器保持紧密接触，同时整个探测器用黑色遮光布做避光处理，如图 1 所示。

表 1 材料介绍

材料	高纯无氧铜	聚四氟乙烯	氟橡胶	全氟醚
简介	不含氧也不含任何脱氧剂残留物的纯铜	聚四氟乙烯,简称为PTFE,一般称作“不粘涂层”或“易清洁物料	氟橡胶是指主链或侧链的碳原子上含有氟原子的合成高分子弹性体	全氟醚密封圈是由三个或更多氟橡胶单体聚合而成,单体上所有的位置被氟原子取代
特性	导电率高 耐腐蚀性能高 低温性能佳 加工性能好	耐高温 耐王水和一切有机溶剂 塑料中最佳的老化寿命 具有冷流性	耐高温性 耐老化性 机械性能好 耐辐射性较差	几乎对所有化学品都有优异的耐受性 抗高温硬化的性能 兼具橡胶的弹性和聚四氟乙烯的耐腐蚀性
表面积	(20.90±0.02) cm ²	(20.00±0.02) cm ²	(21.14±0.04) cm ²	(23.62±0.05) cm ²
作用	保护外壳和屏蔽本底	装载液体闪烁体(EJ-335)探测物质	密封圈	密封圈

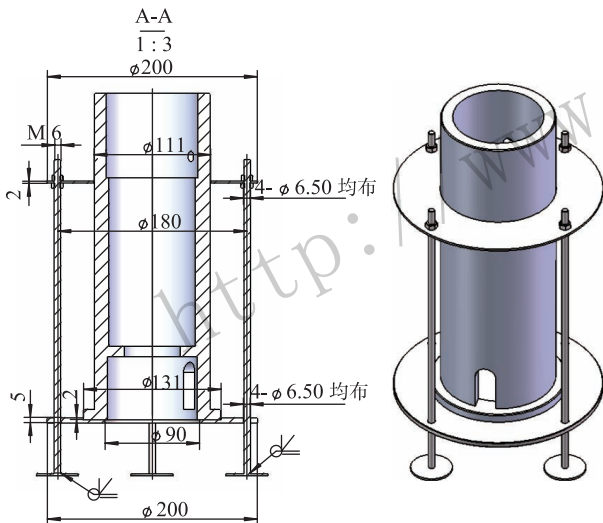


图 1 (在线彩图) 小型液体闪烁体探测器系统整体结构图

小型液闪探测器的数据采集系统 (Date Acquisition, DAQ), 使用的是由 CAEN 公司生产的 VME 机箱和电子学插件, 电子学系统框图如图 2 所示。从光电倍增管 (PMT) 和随机信号发生器 (Random Trigger Generator) 出来的信号, PMT 的信号经过阈值甄别器后直接接入快速模数转换插件 (FADC); Random Trigger 先经过阈值甄别器后与经过阈值甄别器后的 PMT 信号同时进入逻辑或插件 (Logical OR), 其输出的信号作为 FADC 的触发信号接入 V1721, 只有当 FADC 接收到触发信号 (trigger) 才会采数, FADC 采集的数据经光纤和光电转换插件传入电脑中。在数据采集中,

当 PMT 和随机触发信号同时超过阈值时才会给出触发信号, Random Trigger 用于探测器能量零点的刻度和系统死时间的计算, 实验中我们使用 CJPL 编写的基于 LabView 的数据采集软件。

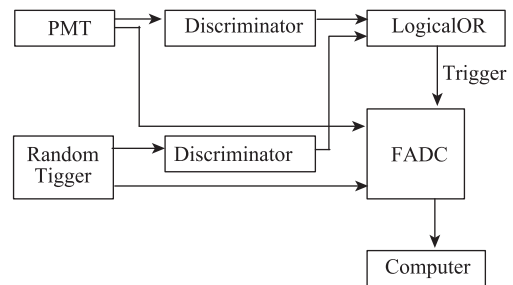


图 2 电子学系统框图

3 实验结果及分析

3.1 液闪的光衰减长度

为了获得浸泡材料前后液闪的光衰减长度, 可以通过测量浸泡材料前后液闪的吸光度来计算液闪的光衰减长度。光衰减长度的定义为当光在物体中通过一定长度后光强衰减为原来的 1/e 时, 所通过的光程长度。衰减长度的计算公式为 $L = \log(e) \times b / A(\lambda)$, 其中 L 为衰减长度, b 为比色皿光程。使用紫外可见分光光度计测量时, 根据朗伯比尔定律有 $A(\lambda) = -\log(I/I_0) = \epsilon bc$, 其中 $A(\lambda)$ 是一定波长下的吸光度, I 是入射光强, I_0 是经过一定光程比色皿后的出射光强, ϵ 是摩尔吸光系

数, b 为比色皿光程, c 是液闪中吸光物质的浓度^[14]。由于液闪 EJ-335 的最大发射光谱和 PMT 的光谱响应范围都集中在 424 nm 附近, 所以实验中最关心的是液闪在 424 nm 处的光衰减长度, 使用的石英比色皿的光程为 10 cm, 因此可以得到光衰减长度与吸光度的换算关系式 $L = 0.04343/A(424 \text{ nm})$ 。如图 3 所示为 4 种低本底材料的吸收光谱测试结果, 表 2 为运用上面的换算公式求得波长在 424 nm 处的光衰减长度。从图 3 和表 2 可以看出聚四氟乙烯和全氟醚的吸光度和光衰减长度浸泡前后变化最小, 表明聚四氟乙烯和全氟醚对液体闪烁体的光学性质影响很小。

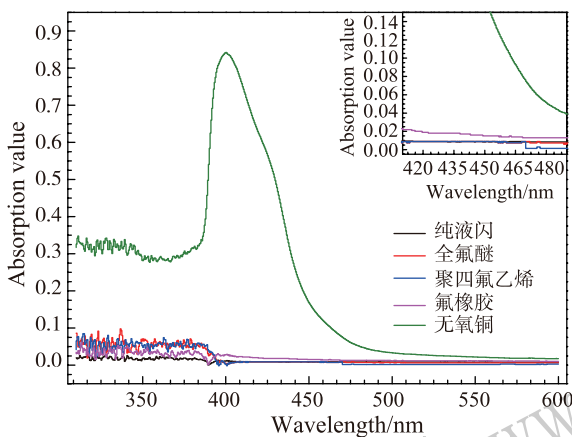


图 3 (在线彩图) 浸泡过材料的液闪的吸收光谱图

表 2 紫外可见分光光度计测试吸收光谱与光衰减长度

浸泡材料的液闪	测得 424 nm 处的吸光度	计算 424 nm 处的光衰减长度/m
纯液闪EJ-335	0.0090±0.0002	4.826±0.107
全氟醚	0.0088±0.0003	4.935±0.168
聚四氟乙烯	0.0089±0.0001	4.879±0.055
氟橡胶	0.0180±0.0002	2.413±0.027
高纯无氧铜	0.5820±0.0003	0.075±0.001

3.2 电荷积分谱的计算及参数定义

图 4 为探测器对 Am-Be 中子源测量时采集到的一个脉冲波形示例图及数据处理中各参数的定义。由于使用的 FADC 采样频率为 500 MHz, 所以横坐标每个点代表 2 ns。 Q_{total} 代表脉冲的总电荷积分, 积分区间从峰前 40 ns 到峰后 160 ns。以 Q_{total} 为横坐标, 计数率为纵坐标画出直方图, 即为 γ 源的电荷积分谱 (Q 谱), 这里直方图的横坐标为 Q 值(电荷积分值)且统一为 1000 个 bin, 纵坐标为每个 bin 内的计数率(bin 内事件个数除以测量时间), 这样做的目的是可以方便地将 γ 或中子源测量结果中的本底扣除, 如图 5 所示为浸泡聚四氟乙烯的探测器扣除了本底的电荷积分谱。图中 Q_{part} 代表脉冲下降沿的电荷积分,

积分区间从峰后 30 ns 到峰后的 160 ns, 定义甄别因子 $Dis=Q_{part}/Q_{total}$, 以甄别因子 Dis 为横坐标, 等效电子能量 E_{ee} 为纵坐标画散点图, 即为 n- γ 甄别图。

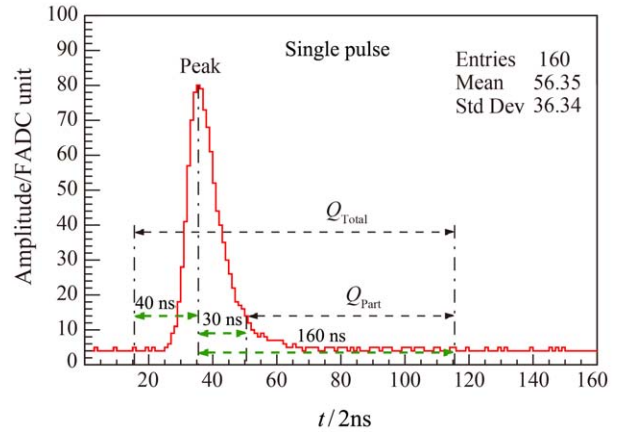


图 4 (在线彩图) 单个脉冲波形示例图

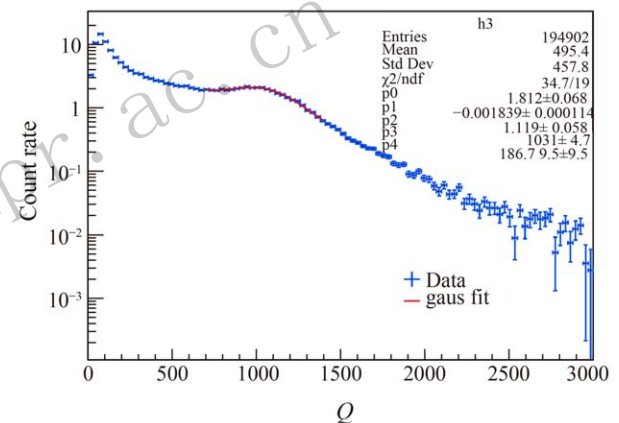


图 5 (在线彩图) 聚四氟乙烯的电荷积分谱

^{60}Co 的 γ 射线在能谱图中本主要有 4 种成分: 指数本底、光电效应形成的全能峰、康普顿散射形成的康普顿平台和电子对效应^[15]。由于测量所使用的探测器的液闪体积有限, 使得全能峰相对于康普顿散射的计数非常少, 因此拟合不再考虑全能峰, 只考虑康普顿平台和本底。由于康普顿效应沉积能量的最大值, 即康普顿边沿与 γ 射线总能量有固定的对应比例关系, 因此选择康普顿边沿作为比较液闪相对光产额变化的特征量。图 5 为使用 ^{60}Co 的 γ 源对浸泡有聚四氟乙烯材料的探测器所测到的扣除了本底的电荷积分谱。

3.3 光产额的变化率

如图 6 所示, 这 4 个电荷积分能谱图分别为浸泡了 4 种低本底材料的探测器的电荷积分谱随着时间的变化情况, 图中选择了测试 3 个月中 4 个不同的测试时间点, 从图 6 中可以看出浸泡过全氟醚和聚四氟乙烯的液闪的光产额基本没有发生变化, 而浸泡了氟橡胶和无氧铜的液闪有很明显的变化。

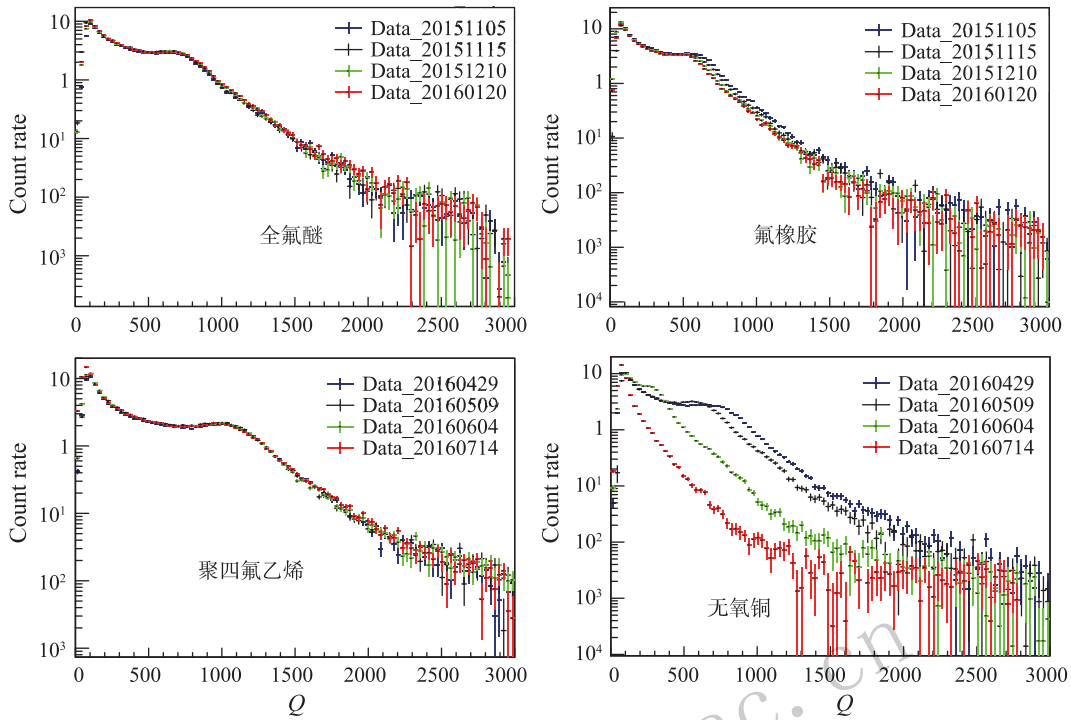


图 6 (在线彩图) 浸泡了 4 种材料的探测器的电荷积分谱随时间的变化情况

我们把 3 个月中所有测试时间点的电荷积分谱进行拟合，得到高斯拟合的平均值，对应着康普顿边沿，即光产额的值单独画直方图就可以看出峰位移动的变化率，从而计算出光产额在 3 个月中的变化率，如图 7 所示。从图 7 中可以看出，浸泡过全氟醚和聚四氟乙烯的液闪的光产额变化最小，浸泡过 4 种材料的液闪的光产额变化率从小到大依次为聚四氟乙烯 2.19%、全氟醚 2.62%、氟橡胶 10.80%、无氧铜 91.63%。光产额的实验测试结果表明，聚四氟乙烯和全氟醚与液体闪烁体具有很好的兼容性，而氟橡胶较差，无氧铜与液闪的兼容性很差，以此排除氟橡胶和无氧铜作为低本底中子探测器的材料选择。

3.4 n-γ 甄别

实验中采用的中子放射源是 Am-Be 中子源，该中子源不仅放出中子，也放出 γ 射线，同时环境中也伴随大量的 γ 射线，在实验数据分析处理中，采用电荷比较法对 n 和 γ 进行甄别，电荷比较法是利用反冲质子 (n 信号) 与反冲电子 (γ 信号) 的脉冲波形的形状差异来区分，中子信号波形的慢成份比例要大于 γ 信号的慢成份比例^[15]。如图 8 所示，图 8 为一个典型中子信号波形与 γ 信号波形的对比。

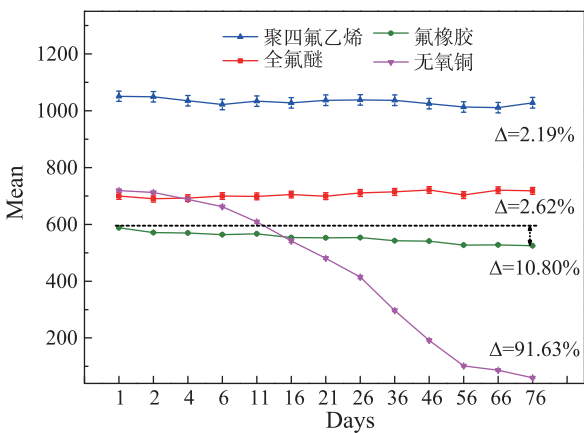


图 7 (在线彩图) 光产额随时间的变化

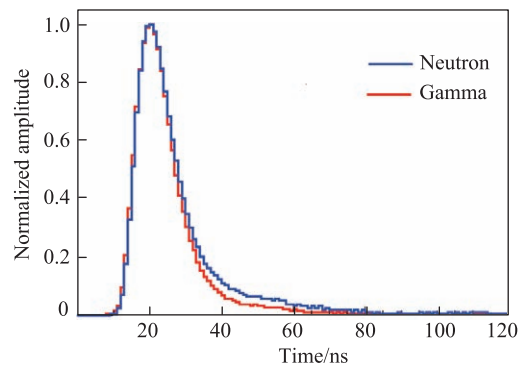


图 8 (在线彩图) 中子信号波形与 γ 信号波形的对比

由图 4 的参数定义，以甄别因子 Dis 为横坐标，等效电子能量 E_{ee} 为纵坐标画伪彩图，即为 n-γ 甄别图。如图 9 所示，图 9 分别为浸泡有聚四氟乙烯和全氟醚的液闪探测器的前期与后期的 n-γ 甄别效果图，图中高能

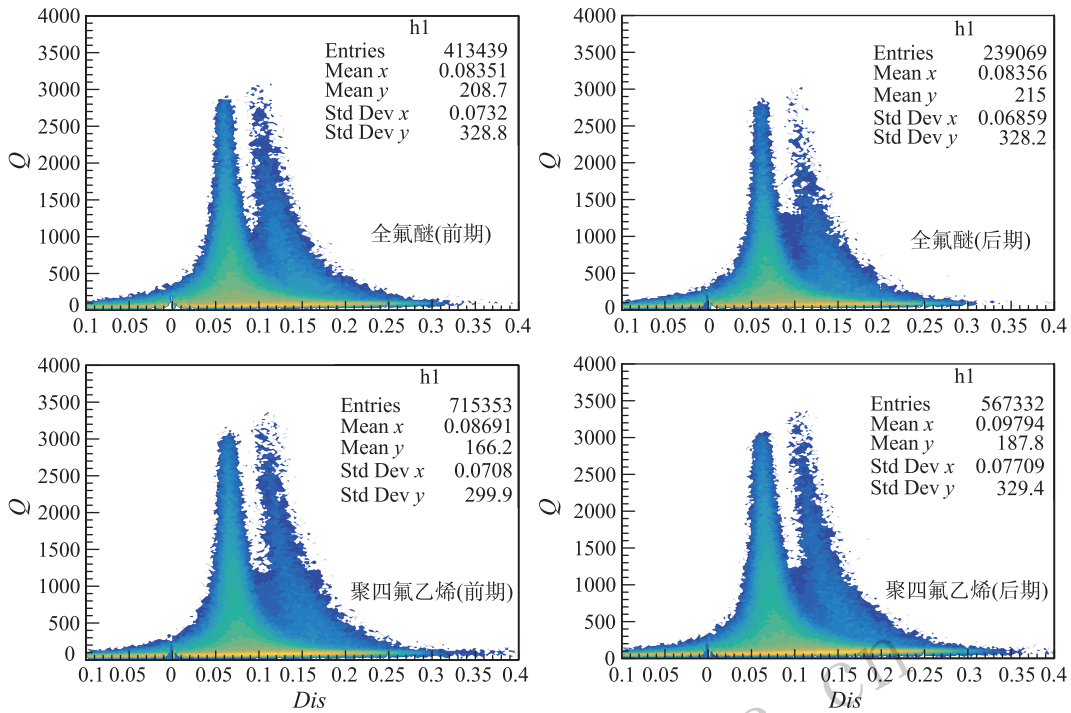


图 9 (在线彩图) 电荷比较法 n-γ 甄别图

区明显分为两个带，由图 8 可知， γ 信号的甄别因子 Dis 要小于中子，因此图 9 中每个图中左边的为 γ 信号，右边的为中子信号。很明显，如果两个峰的半高宽越小、两个峰之间的距离也大都说明该方法的 n- γ 甄别效果越好^[17]，所以可以定义优质因子

$$FOM(\text{Figure of Merit}) = \frac{\Delta D}{W_\gamma + W_n}$$

来说明 n- γ 甄别效果的好坏，其中 ΔD 表示两个峰之间的距离， W_γ ， W_n 分别为两个峰的半高宽，优质因子越大则 n- γ 甄别效果越好。由于每个探测器的光电倍增管的增益不同，所以只能和自身前后对比，通过比较各自前后优质因子的变化情况来判定聚四氟乙烯和全氟醚是否影响液闪的 n- γ 甄别效果。图 10 为脉冲能量为 $Q_{\text{Total}} = 1000 \sim 2000$ 区间内， Q_{part} 积分区间开始位置为峰后 30 ns 时的甄别因子分布。分别用高斯函数拟合两个峰，从高斯函数

$$f(x) = ae^{-\frac{(x-\text{mean})^2}{2\sigma^2}}$$

可以推理出半高宽 $FWHM = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma = 2.35482 \times \sigma$ ，从而得到 ΔD ， W_γ 及 W_n ，进而计算出优质因子 FOM。

浸泡有聚四氟乙烯和全氟醚的探测器的优质因子计算结果如表 3 所列，可以看出聚四氟乙烯和全氟醚橡胶相应的优质因子变化都很小且都在误差范围内。

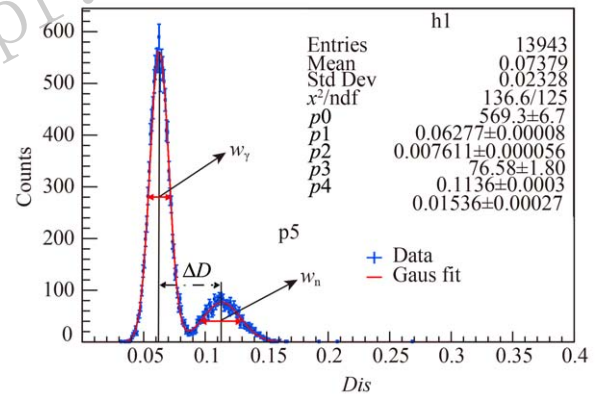


图 10 (在线彩图) $Q_{\text{total}}=1000\sim 2000$ 区间的甄别因子分布图

表 3 优质因子

优质因子	全氟醚	聚四氟乙烯
FOM(前期)	2.2129±0.0212	2.1114±0.0332
FOM(后期)	2.2496±0.0206	2.0795±0.0198

4 结论

本文通过设计和搭建小型液闪探测器系统，对所挑选的 4 种材料从液闪的光衰减长度、光产额变化、n- γ 甄别三方面展开为期 3 个月的兼容性实验测试工作进行了介绍。

液闪的光衰减长度、光产额变化情况以及 n- γ 甄别效果的实验结果表明：聚四氟乙烯和全氟醚这两种材料

与液体闪烁体(EJ-335)具有较好的兼容性,经过3个月的浸泡后几乎对液闪的性能没有影响,它们对液闪的光产额变化影响在5%以下,对于像大亚湾的中微子实验、CJPL的中子通量测量实验这样需要建造长期稳定运行的大型液闪探测器装置的探测器材料选择具有重要的参考意义,因此我们选择聚四氟乙烯和全氟醚橡胶分别作为大型快中子液闪探测器的容器和密封圈材料。

参考文献:

- [1] CLOWE D, BRADA M, GONZALEZ A H, *et al.* *Astrophysical Journal*, 2006, **648**(2): 109.
- [2] DAMA实验室网站. <http://people.roma2.infn.it/~dama/web/home.html>.
- [3] AKERIB D S, ARMEL-FUNKHOUSER M S, ATTISHA M J, *et al.* *Phys Rev D*, 2005, **72**: 052009.
- [4] AALSETH C E. [The CoGeNT Collaboration], arXiv:1002.4703 [astro-ph.CO].
- [5] LUX实验室网址. <http://luxdarkmatter.org/>
- [6] ANGLOHER G. Commissioning Run of the CRESST-II Dark Matter Search. arXiv: 0809.1829v2.
- [7] XMASS实验室网站. <http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/xmass/index-e.html>.
- [8] KANG K J, CHENG J P, CHEN Y H, *et al.* *Journal of Physics: Conference Series*, 2010, **203**: 012028
- [9] KANG Kejun, CHENG Jianping, LI Jin, *et al.* *Frontiers of Physics*, 2013, **8**(4): 412.
- [10] CHAZAL V, BRISSOT R, CAVAINAC J F, *et al.* Neutron background measurements in the Underground Laboratory of Modane[J]. *Astroparticle Physics*, 1998, **9**(2): 163.
- [11] XING Haoyang, WANG Li, ZHU Jingjun, *et al.* *Chinese Physics C*, 2013, **37**(2): 49.
- [12] [Http://www.eljentechnology.com/index.php/products/liquid-scintillators/ej-331-ej-335](http://www.eljentechnology.com/index.php/products/liquid-scintillators/ej-331-ej-335)
- [13] ZHANG Caixun, LIN Xingde, ZHAO Jianlin, *et al.* *Chinese Physics C*, 2015, **14**(8): 34.
- [14] DING Yayun. Study on Gadolinium-doped Liquid Scintillator for Daya Bay Reactor Anti-neutrino Experiment[D]. Beijing: Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, 2009: 81. (in Chinese)
(丁雅韵. 大亚湾反应堆中微子实验掺钆液体闪烁体的研制[D]. 北京: 中国科学院高能物理研究所, 2009: 81.)
- [15] LIU Jinchang, LI Zuhao, YANG Changgen, *et al.* *High Energy Physics and Nuclear Physics*, 2007, **31**(1):76. (in Chinese)
(刘金昌, 李祖豪, 杨长根, 等. 高能物理与核物理, 2007, **31**(1): 76.)
- [16] DING Dazhao, YE Chuntang, ZHAO Zhixiang. *The Physics of Neutron*[M]. Beijing: Atomic Press, 2005:132.(in Chinese)
(丁大钊, 叶春堂, 赵志祥. 中子物理学[M]. 北京: 原子能出版社, 2005: 132.)
- [17] Sichuan University. *Radiation Detection and Measurement*[M]. Chengdu: Sichuan University Press, 2003: 390. (in Chinese)
(四川大学. 辐射探测与测量[M]. 成都: 四川大学出版社, 2003: 390.)

Study of Material Used in Liquid Scintillator Detector with Low Background

LI Xueyang¹, DU Qiang², LIU Shukui³, LIN Xingde², XING Haoyang², TANG Changjian², ZHU Jingjun^{1,3,†}

(1. Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610065, China;

2. School of Physical Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610065, China;

3. Key Laboratory of Particle and Radiation Imaging of Ministry of Education, Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: In order to measure the flux and spectrum of neutron background which is extremely low in China JinPing underground Laboratory (CJPL), liquid scintillator detector with large scale used to detect fast neutron need to be fabricated. Surrounding materials used in detector require the excellent performance, such as low radioactivity as well as stable chemical properties, which do not react with liquid scintillator, so as to avoid affecting the performance of detector. Polytetrafluoroethylene(PTFE), highly purified no-oxygen copper, fluororubber and perfluoroelastomer had been put in a small detector and soaked for a long time. The change of absorption spectrum and light yield along with time as well as the performance of n- γ discrimination after soaked were tested. The results show that PTFE and Perfluoroelastomer are compatible with liquid scintillator, which offers a reference for the selection of material used in container and seal of liquid scintillator detector used to detect fast neutron.

Key words: liquid scintillator detector; absorption spectrum; light yield; n- γ discrimination

<http://www.npr.ac.cn>

Received date: 1 Dec. 2016; **Revised date:** 20 Mar. 2017

Foundation item: National Natural Science Foundation of China(11055002, 11275134, 11475117); Key Laboratory of Particle and Radiation Imaging of Ministry of Education Open Foundation of Tsinghua University(20151202)

† **Corresponding author:** ZHU Jingjun, E-mail: zhujingjun@scu.edu.cn.