

分类号_____

密级_____

U D C _____

编号_____

中国科学院研究生院

博士学位论文

低本底和液体闪烁体探测器技术研究

李小波

指导教师姓名 曹俊 研究员 中国科学院高能物理研究所

申请学位级别 博士 学科专业名称 粒子物理与原子核物理

论文提交日期 2011年4月1日 论文答辩日期 2011年5月20日

培养单位 中国科学院高能物理研究所

学位授予单位名称 中国科学院研究生院

答辩委员会主席 李金

The study of low background and liquid scintillator detector techniques

LI Xiaobo

**In Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Doctor of Philosophy**



Graduate School of Chinese Academy of Sciences

Beijing, China

2011

(Submitted in April 2011)

© 2011
LI Xiaobo
All Rights Reserved

研究生学位论文声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师指导下独立进行研究工作所取得的成果，除文中已经注明引用的内容外，本学位论文的研究成果不包含任何他人享有著作权的内容。对本论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人和集体，均已在文中以明确方式标明。

签名：_____ 日期：_____

关于学位论文使用授权的说明

本人完全了解中国科学院高能物理研究所“关于中国科学院高能物理所研究生论文及研究成果使用权的规定”（2001）高发研生字第 315 号文件，即：高能物理研究所拥有在著作权法规定范围内学位论文的使用权，其中包括：（1）已获学位的研究生必须按规定提交学位论文，高能物理研究所可以采用影印、缩印或其他复制手段保存研究生上交的学位论文；（2）为教学和科研目的，高能物理研究所可以将公开的学位论文作为资料在图书馆、资料室等场所供科研人员阅读，或在所内网站供科研人员浏览部分内容；（3）根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》，向国家图书馆等相关部门报送可以公开的学位论文。

签名：_____ 日期：_____

摘要

中微子振荡是目前唯一观测到的超出粒子物理标准模型的现象，因此被认为是发现新物理的突破口与关键。 θ_{13} 是中微子振荡理论的六个基本混合参数之一，其大小决定着中微子物理的发展方向。大亚湾反应堆中微子实验的物理目标是精确测量中微子混合角参数 θ_{13} 到 0.01 或更好。这一物理目标对大亚湾中微子探测器提出很高的设计要求。大亚湾实验作为国内首家低本底、低能量、高精度的实验，本文对大亚湾中微子实验采用的液体闪烁体和低本底两项重要探测器技术进行了详细研究。

大亚湾液体闪烁体采用了新型的 LAB 为溶剂，不同于以往中微子实验采用的偏三甲苯，甲苯等，研究这种新型液体闪烁体的物理性质才能深刻理解探测器的时间和能量响应。本文通过紫外激发的方式测量了 LAB 为溶剂的液闪的时间特性，给出了溶剂 LAB、发光物质 PPO、波长位移剂 bis-MSB 的本征发光时间，提出了发光物质到波长位移剂之间的辐射传递能量模型，提取出 PPO 和 bis-MSB 的本征发光时间。通过电离激发的方式得到了 LAB 到不同浓度的 PPO 之间的非辐射传递能量的时间和 PPO 的本征发光时间，且 PPO 的本征发光时间和用紫外单独激发 PPO 测到的发光时间一样。同时用单光子的方法证明了大亚湾液闪在小体积容器内具有波形分辨能力。其次测量了大亚湾液闪各成分的发射光谱、吸收、荧光量子效率，并与其他实验给出的结果非常近似。这些液闪参数的测量对大亚湾模拟软件建立正确的光学模型有重要意义。最后通过比较大量通氮或者不通氮样品的发光时间和光产额的差别，得到氧气对液闪的淬灭主要是由溶剂 LAB 引入。同时发现大亚湾液闪的光产额随温度的降低而升高。淬灭效应的研究对保持大亚湾中心探测器各模块的全同性和提高能量分辨具有指导意义。

利用 Geant4 模拟了天然放射性铀，钍，钾在大亚湾液闪和其他材料中引入的各种关联和非关联本底。模拟并计算了大亚湾液闪在生产，存储和灌装过程中引入的氡气对 (α, n) 关联本底的贡献。从而对材料的各种放射性含量提出要求，为大亚湾中心探测器的设计和建造提供了重要依据。

低本底反康普顿伽马谱仪的研制是对低本底探测器研究的进一步发展。本论文提出了详细的设计方案，基于 Geant4 开发了伽马谱仪的模拟软件包 **HPGe**，并通过模拟细

致地优化和验证了探测器设计，通过这一研究，将为极低本底伽马谱仪的研制提供有力依据和实际经验。

关键词：中微子振荡，液体闪烁体，天然放射性本底， (α, n) 本底，低本底，伽马谱仪

ABSTRACT

Neutrino physics is the frontier of particle physics, astrophysics and cosmology physics. Neutrino oscillation is the only evidence of physics beyond the standard model in particle physics and considered as the key to search new physics. Among the six parameters of the neutrino mixing matrix, the value of θ_{13} is important to the future neutrino experiments. The physics goal of Daya Bay reactor neutrino experiment is to measure $\sin^2 2\theta_{13}$ to a sensitivity of 0.01 or better at 90% C.L.. This physics goal demands strict requirements on the detector design. As a China's first low background, low energy and high precision experiment, it is very necessary to study the low background and liquid scintillator detector techniques used in Daya Bay experiment.

The new solvent-LAB is used in liquid scintillator of Daya Bay neutrino experiment. Its properties is different with Toluene, Pseudocumene. In order to understand the energy and time response of the detector, it is very important to study the physical properties of the liquid scintillator. The timing properties of LAB based liquid scintillator is studied through ultraviolet excitation and the intrinsic time of LAB, PPO and bis-MSB can be obtained respectively. A model can be described the absorption and re-emission process between PPO and bis-MSB perfectly. The energy transfer time between LAB and PPO with different concentrations can be obtained via another model and ionization excitation. They both show that intrinsic time of PPO is same with ultraviolet excitation of PPO itself. We also show that our liquid scintillator has good pulse shape discrimination. The measurements of the emission spectrum, absorption and fluorescence quantum efficiency of solvent, primary fluor, and wavelength shifter are all very similar to other experiments. The parameters of liquid scintillator properties play an important role in constructing optical model in simulation software. At last, we also find that oxygen quenching to liquid scintillators is due to solvents by measuring a lot of samples bubbled or not. At same time, the light yield becomes higher when the environmental temperature turns lower. The study of oxygen quenching effect of liquid scintillator can give a directive significance in keeping the identity modules and improving the energy resolution of Daya Bay experiment.

The correlated backgrounds and uncorrelated backgrounds caused by nature radioactivity in liquid scintillator and other detector materials can be arrived from Geant4 simulation. The contribution of (α, n) correlated backgrounds caused by radon during the construction, storage and filling of liquid scintillator can be calculated. The allowed radioactivity can be derived according to the simulation results. This can also provide an important basis for detector design and construction.

Low background gamma spectrometer is a development for low background detector. A detailed design was proposed. The detector simulation programme **HPGe**, which is Geant4 based, can be used to optimize and validate the detector design. We can supply credible proof and experience for research and design of ultra low background detector by this study.

Key words: neutrino oscillation, liquid scintillator, natural radioactivity background, (α, n) background, low background, Gamma spectrometer

目录

1 中微子物理及低本底技术	1
1.1 中微子物理	1
1.1.1 引言	1
1.1.2 中微子质量及混合	3
1.1.3 中微子振荡及实验	5
1.1.4 中微子物理的主要问题	13
1.2 低本底技术	14
1.2.1 环境放射性	15
1.2.2 探测器自身和屏蔽材料的放射性	16
1.2.3 氦及其子体	17
1.2.4 宇宙线	18
1.2.5 中子	19
1.3 论文的内容和结构	19
2 液体闪烁体探测器技术概述	21
2.1 液体闪烁体的发光机制	21
2.1.1 π 电子的能级结构	21
2.1.2 π 电子的电离激发和荧光慢成分	25
2.1.3 液体闪烁体的组成和能量传递	26
2.2 闪烁光传播过程	29
2.2.1 光的吸收重发射	30

2.2.2	瑞利散射	31
2.2.3	边界效应	31
2.3	荧光淬灭效应	32
2.3.1	杂质淬灭	32
2.3.2	浓度淬灭	33
2.3.3	温度淬灭	33
2.3.4	电离淬灭	34
2.4	大亚湾实验的液体闪烁体	35
3	大亚湾液体闪烁体性能研究	39
3.1	LAB 为溶剂的液闪的时间特性	40
3.1.1	紫外激发的实验装置	40
3.1.2	LAB 的时间常数及氧气淬灭	44
3.1.3	PPO 的时间常数	45
3.1.4	bis-MSB 的时间常数及 PPO 到 bis-MSB 的能量传递	46
3.1.5	电离激发及 LAB 到 PPO 的能量传递时间	48
3.2	波形分辨(Pulse Shape Discrimination)	52
3.2.1	波形分辨的原理和方法	52
3.2.2	(n, γ) 分辨	53
3.2.3	(α, γ) 分辨	54
3.3	波长相关的物理性质测量	56
3.3.1	液体闪烁体的吸收	56
3.3.2	液体闪烁体的发射光谱	59
3.3.3	荧光量子效率	60
3.4	大亚湾液闪的淬灭效应	66
3.4.1	温度淬灭	66
3.4.2	氧气淬灭	66
3.5	液闪的相对光产额测量	69
3.6	本章小结	73

4 大亚湾天然放射性本底研究	75
4.1 天然放射性产生子	75
4.1.1 ^{238}U 和 ^{232}Th 的产生子	75
4.1.2 ^{40}K 的产生子	77
4.2 大亚湾中心探测器不同材料引入的单事例率及能谱	77
4.2.1 掺 Gd 液闪中的放射性事例率及能谱	80
4.2.2 普通液闪中的放射性事例率及能谱	82
4.2.3 AD 中其他部分的放射性事例率	82
4.3 液闪中的 (α, n) 关联本底及探测器设计指标	85
4.3.1 氦气引入的 (α, n) 关联本底	86
4.3.2 液闪中的天然放射系引入的 (α, n) 关联本底	92
4.4 本章小结	94
5 低本底反康普顿伽马谱仪的研制	95
5.1 伽马谱仪的工作原理及组成	96
5.2 伽马谱仪的模拟软件包 HPGe	101
5.2.1 产生子	101
5.2.2 探测器几何显示	103
5.2.3 物理过程	105
5.2.4 探测器设计的模拟优化	107
5.3 伽马谱仪的研制	113
5.3.1 高纯锗探测器	113
5.3.2 反康探测器	115
5.3.3 无氧铜	119
5.3.4 机械支撑和升降机构	121
5.3.5 电子学	121
5.4 伽马谱仪的安装调试	126
6 总结与展望	131
6.1 论文总结	131

6.2 展望	131
附录: ^{238}U 和 ^{232}Th 的衰变链	141
发表文章目录	145
致谢	147

插图目录

1.1	从 SNO 实验三种相互作用过程中得到的中微子通量, 带状结构代表 1σ , 等高线代表 68%, 95%, 99% 置信区间的通量分布, 虚线是标准模型预言的结果。	7
1.2	KamLAND 实验给出的存活几率随 L_0/E 的变化, 其中 L_0 为 180 km。实线是中微子振荡的最佳拟合曲线。	8
1.3	Super-Kamiokande 观测到的 sub-GeV ($<1.33\text{GeV}$) 和 multi-GeV ($>1.33\text{GeV}$) 的电子型和 μ 子型事例随天顶角的变化。虚线代表没有振荡时的 MC 模拟事例, 实线代表中微子振荡的最佳拟合曲线。	9
1.4	Super-Kamiokande 实验中 μ 中微子事例数对 L/E 的变化关系。点代表实验结果与蒙卡模拟未振荡的事例数比值, 实线对应 $\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$	10
1.5	历史上的反应堆中微子实验	11
1.6	人类或者探测器所接收的天然辐射。	14
1.7	不同能量的 γ 在不同材料中的衰减长度。	16
1.8	不同来源的中子通量随岩石深度增加的变化趋势。	18
2.1	π 电子的能级结构。 S_0 为基态, S_1, S_2, S_3 为激发单重态, T_1 为激发三重态。 [52]	23
2.2	斯托克斯位移。 [52]	24
2.3	常用溶剂的分子结构。	27
2.4	常用第一, 第二发光物质的分子结构和发射光谱最大值对应的峰位。	28

2.5 溶剂, 发光物质和波长位移剂之间的能量传递方式, 还分别列出了近似的发光物质浓度, 发射光谱峰位和能量传递距离。	30
2.6 线性烷基苯(LAB)的结构式。	36
3.1 紫外激发时, 单光子方法测量液体闪烁体发光时间的实验装置图。	41
3.2 入射到液体闪烁体中的紫外光的光谱分布	42
3.3 PMT的电荷分布, 双光子和多光子事例都可以忽略。	42
3.4 TDC 的刻度结果, 49.9 ps /channel。	43
3.5 仪器的时间响应, 半高全宽是 750 ps, 其中在 1550 道和 1900 道的小峰是由 PMT 的快后脉冲引入的。	43
3.6 氧气对 LAB 发光时间的淬灭效应。	44
3.7 LAB 在通氮情况下的时间常数为 48.6 ns。	45
3.8 LAB+PPO 在紫外激发时的荧光衰减曲线。	46
3.9 PPO 荧光衰减时间拟合结果	47
3.10 bis 荧光衰减时间拟合结果	48
3.11 不同浓度的 PPO 溶解在 LAB 中的荧光衰减曲线与 LAB+3 g/L PPO 紫外激发的比较(在 ^{60}Co 的辐射下)。	50
3.12 bis 荧光衰减时间拟合结果	51
3.13 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对快中子的时间响应的实验装置图	54
3.14 TOF和PMT2的电荷分布	55
3.15 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对快中子和 γ 的时间响应曲线。	55
3.16 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对 α 和 γ 的时间响应曲线。	56
3.17 双光束紫外可见分光光度计的工作原理。	57
3.18 上图是各编号的样品对应的衰减长度, 下图是大亚湾液闪用不同光程的比色皿测到的衰减长度。	58
3.19 Fluorolog Tau-3 荧光光谱仪的光路图。	60

3.20 左图表示少量的 LAB 溶解在环己烷中的吸收和发射光谱, 及纯 LAB 分子的吸收曲线, 右图样品 1 表示纯 LAB 分子的发射光谱, 样品 2, 3, 4 分别表示少量的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 3 g/L 的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 以及将大亚湾液闪(LAB + 3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB) 涂在很薄的石英玻璃片上测到的发射光谱, 样品 5 表示把少量的 bis-MSB 溶解在环己烷中测到的发射光谱。	61
3.21 比色皿放在样品室正中间和把比色皿往入射单色仪方向移动 1 mm 时测到的发射光谱光强度的比较。	63
3.22 入射到狭缝处光斑中心随荧光发射点的移动。	63
3.23 硫酸奎宁与 harmane 单位吸收的荧光光强(即 $\int s(\lambda)d\lambda/B$)随入射波长的变化。单位吸收的荧光光强正比于其量子效率。测量发射光谱是使用前向测量的方式。	65
3.24 PPO 与 bis-MSB 的溶液在不同吸收时的荧光光强。测量时使用了多个激发波长, PPO 的激发波长在 300 nm-340 nm 之间; bis-MSB 的激发波长在 360 nm-380 nm 之间。横坐标指的是溶液吸收百分比。	65
3.25 上图是光产额温度效应的测试系统示意图, 下图是在完全一样的条件下得到的某一温度下 ^{137}Cs 的能谱和激光能谱。	67
3.26 左图是不同温度下通过激光峰位得到的系统稳定性, 右图是有无修正系统稳定性时得到的液闪光产额在不同温度下的相对值。	68
3.27 左图是氧气对 LAB + 3g/L PPO 的光产额影响, 右图是氧气对 LAB + 1g/L PPO 的能量传递时间影响。	69
3.28 ^{239}Pu 电离激发液闪发光时, 测量光差额的示意图。	70
3.29 ^{239}Pu 电离激发液闪发光时的能谱分布。	70
3.30 上图是 LS 和 NaI 的位置, 用于测量被散射的伽马在 45 度出射时, 对应的康普顿电子能谱。下图是探测器后端电子学示意图。	72
3.31 被散射的伽马在 45 度出射时, GdLS 和 LS 对应的康普顿电子的高斯峰差异。	73
4.1 左图是 ^{238}U 的衰变系, 右图是 ^{232}Th 的衰变系 [82]。	76
4.2 在 AP 产生子中的 ^{238}U 衰变链, 被分成 9 个独立的产生子事例。	78

4.3 在 AP 产生子中的 ^{232}Th 衰变链, 被分成 4 个独立的产生子事例。	78
4.4 ^{40}K 的衰变分支。	79
4.5 高斯函数拟合 1.46 MeV 的 γ 产生的光电子数分布。	81
4.6 ^{40}K 在 GdLS 中的能谱分布。	81
4.7 ^{238}U 在 GdLS 中的能谱分布。	81
4.8 ^{232}Th 在 GdLS 中的能谱分布。	81
4.9 ^{232}Th 在未划分子事例时的能谱分布, 一个 branch 产生的可见光能量堆 积在一起, 出现大于 6 MeV 的事例。	83
4.10 天然放射性 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 在液闪中的能谱分布。	84
4.11 (α, n) 反应导致的关联本底示意图。	86
4.12 (α, n) 反应的截面大小。	86
4.13 α 在 GdLS 中 step 的个数, step 的长度及每走一步后的动能的分布。	87
4.14 当 ^{16}O 处于基态时, 中子在实验室里的动能分布。	89
4.15 在质心系中的发射角为均匀分布时, 中子在 ^{16}O 处于基态、第一、第二 激发态时的动能分布。	90
4.16 动能分布为图 4.14 中(a)所示时, 快中子在 20 吨 GdLS 中产生的类似中 微子信号特征的快慢信号能量分布。	90
4.17 ^{238}U 和 ^{232}Th 在衰变过程中放出的 α 能量及其分支比, 相应的还有 $(\alpha,$ $n)$ 反应的截面。	93
5.1 ORTEC 第三代电致冷产品。	97
5.2 Ge 谱仪示意图	98
5.3 ^{238}U 和 ^{232}Th 的衰变链。	102
5.4 Muon 在海平面的能量, ϑ , φ 分布。	103
5.5 Ge 谱仪示意图	104
5.6 在反康探测器的内外表面加上厚度为 1 mm 的 ESR 反射膜。	105
5.7 ESR 反射膜的折射率随波长的变化。	106
5.8 塑料闪烁体在选择不同阈值 Veto 时, HPGe 上看到的能量沉积和峰康比。	107
5.9 模拟的 50000 个 1.461 MeV 事例在反康上产生的总 pe 数分布, 光子击中 时间分布, 产生光电子的光子波长分布。	108

5.10 模拟的 50000 个 1.461 MeV 事例在反康中的沉积能量和 PMT 收集到的总 pe 数的二维分布及其每个 PMT 上产生的 pe 数分布。其中 pmtID 为奇数的是上面 4 个 PMT, 偶数的是底部 4 个 PMT	109
5.11 铜里的白色部分为厚度为 0.2 mm 的空气薄层。	111
5.12 Ge 谱仪示意图	112
5.13 高纯锗探测器的外部尺寸。	114
5.14 高纯锗探测器的测试电路图。	114
5.15 在无任何屏蔽下, 高纯锗探头测到的周围环境本底的能谱分布。	115
5.16 反康探测器的立体、侧视和俯视图。	116
5.17 底部两块塑料闪烁体的实物图。	117
5.18 2 英寸 PMT、1 英寸 PMT 及 PMT 分压器设计。	118
5.19 PMT 和塑料闪烁体的耦合、固定、光密封。	119
5.20 无氧铜板的切割。	120
5.21 机械支撑和升降机构。	122
5.22 伽马谱仪的电子学读出。	123
5.23 PMT (CR135) 的波形。	124
5.24 单次和多次相互作用 HPGe 探测器产生的电流脉冲形状。	125
5.25 用 PSA 方法和 BGO 晶体压低康普顿坪前后 ^{137}Cs 的能谱差异。	125
5.26 底部可移动部分安装, 包括无氧铜板, 2 个 1 英寸 PMT, 2 块塑料闪烁体。	127
5.27 底部不移动铜板的安装和定位。	127
5.28 不移动部分的塑料闪烁体和 2 英寸 PMT 的安装。	128
5.29 无氧铜侧板的安装。	128
5.30 2 英寸 PMT 电缆线的固定。	129
5.31 伽马谱仪安装好后的装置图。	129
6.1 ^{238}U 的衰变链。只列出产生可见光能量大于 100 keV 和分支比大于 0.5% 的衰变。	142
6.2 ^{232}Th 的衰变链。只列出产生可见光能量大于 100 keV 和分支比大于 0.5% 的衰变。	144

表格目录

1.1	不同反应堆中微子实验的比较。	12
1.2	大亚湾实验误差的要求	12
1.3	中微子信号和本底事例率的比值	13
2.1	一些有机溶剂的荧光时间和量子效率.	27
2.2	一些有机溶剂的瑞利散射长度 @430 nm	32
3.1	LAB 到 PPO 的快时间传递常数 τ_1 (ns) 及其权重 ω_1 , PPO 的本征发光时间 τ_3 (ns)。	52
3.2	待测样品的编号和组成成分。	57
3.3	不同样品的光产额差异。	71
4.1	能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时, 10^{-3} ppb 的 U, Th, K 在 20 吨 GdLS 中产生的单事例率。	82
4.2	能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时, 10^{-3} ppb 的 U, Th, K 在 20 吨 LS 中的单事例率。	83
4.3	单位活度的液闪原材料的天然放射性在大亚湾 AD 单事例率和关联本底的贡献。	94
5.1	岩石放射性在不同无氧铜厚度下对 Ge 晶体的本底贡献。	109
5.2	不同材料的单位活度的放射性对 Ge 晶体的本底贡献	110

第一章 中微子物理及低本底技术

1.1 中微子物理

1.1.1 引言

中微子物理在最近七十多年的时间内取得了突破性进展。1914年，查德威克发现 β 衰变过程中产生的电子拥有连续的能谱。如果 β 衰变是两体衰变，则意味着能量和动量不守恒。为了避免这一问题，Pauli在1930年提出了中微子的假设[1]。Pauli认为 β 衰变应该是一个三体衰变，衰变过程中还放出一种自旋为1/2的、质量很小的、电中性的、相互作用极弱的费米子，这就是后来被称为“中微子”的粒子。从此，拉开了中微子物理的序幕。

1956年，Cowan和Reines[2]等人在Sanvannah River反应堆实验中发现反电子中微子 $\bar{\nu}_e$ ，从而给出中微子存在的实验证据。1962年，Lederman、Schwartz和Steinberger发现了 μ 中微子 ν_μ [3]。2001年Kodama等人发现了 τ 中微子 ν_τ [4]。中微子被证实存在后，人们对中微子的探索并没有停步。Pauli在提出中微子概念的同时就已经根据衰变能谱预言了中微子质量必须非常小。这一事实加上后来在所有中微子实验中都没有发现右旋中微子(或左旋反中微子)和轻子数破坏，使得人们相信中微子是无质量的粒子。但是三大类可能的实验用来探测中微子质量以及其它有关的、超出标准模型的新物理： β 衰变能谱测量中微子质量[5]，中微子振荡[6]，以及破坏轻子数守恒的稀有衰变(例如 $0\nu\beta\beta$ 衰变)或反应等[7]。

中微子振荡概念最先由Pontecorvo[6]受 $K^0 \rightleftharpoons \bar{K}^0$ 振荡的启发，在1957年率先提出。他当时假设的是 ν_e 和 $\bar{\nu}_e$ 之间发生振荡，用以解释戴维斯声称他所观测到的过程 $\bar{\nu} + {}^{37}Cl \rightarrow {}^{37}Ar + e^-$ ，这个后来被证明是错误的[8]。1962年Maki, Sakata[9]等人

提出 ν_e 和 ν_μ 之间发生振荡的可能性。据此, Pontecorvo [10] 于 1967 年提出两代中微子振荡和混合的概念。最早被观测到可能存在振荡的是太阳中微子。Homestake [11] 实验在 1968 年发现测量到的太阳中微子 ν_e 比标准太阳模型(SSM) [12] 预言的要少。这就是太阳中微子失踪之谜。后来的一系列实验 Kamiokande [13], SAGE [14], GALLEX [15], SuperK [16] 和 GNO [17] 证实了这一问题的存在。2002 年 SNO [18] 实验通过带电流过程、中性流过程以及弹性散射过程测量到了 ν_μ 和 ν_τ 的通量, 并发现测量到的三种中微子通量之和正好与标准太阳模型预言的一样。SNO 实验给出了 ν_e 到 ν_μ 或 ν_τ 转化的直接证据。至此说明了中微子味道的转换可以用中微子振荡理论来解释, 但是还没有排除其他的机制。反应堆中微子实验 KamLAND [19] 在 180 km 的平均基线上观测到的中微子事例数与理论无振荡的事例数之比为 $0.611 \pm 0.085 \pm 0.041$, 由于中微子是反应堆与太阳唯一共同的东西, 中微子消失现象只能用中微子本身的性质来解释。因此, 确定了大角度混合解 (LMA) 与物质效应 (MSW) 的太阳中微子振荡模式。

高能宇宙线在到达地面之前, 也会与大气层中的核子相互作用产生 ν_e 到 ν_μ 。理论预测的 ν_μ 和 ν_e 的比值为 2, 然而 Kamiokande [20]、IMB [21]、Soudan-2 [22] 和 MACRO [23] 等大气中微子实验观测到的 ν_μ 和 ν_e 的比值比理论值小, 约为 1。这被称为大气中微子反常现象。SuperK 实验 [24] 在 1998 年发现 ν_μ 的缺失与中微子的能量和传播距离有很强的依赖关系, 这与中微子的振荡形状完全吻合, 从而首先给出大气中微子振荡的证据。以后的加速器中微子实验 K2K [25] 和 MINOS [26] 也进一步证明了大气中微子振荡。

最初所有中微子振荡的实验证据来自天然的太阳、大气中微子, 因此中微子振荡在某种程度上依赖于人们对天然中微子源的理解, 比如太阳模型、宇宙线在大气中的簇射过程等。然而利用人工中微子源, 反应堆和加速器产生的中微子观测到的振荡是对中微子发生振荡的强有力证明。

加速器中微子实验 LSND [27] 在探测 $\bar{\nu}_\mu \rightarrow \bar{\nu}_e$ 振荡的时候, 发现中微子质量平方差为 $\Delta m_{LSND}^2 \sim 1$ eV, 比太阳、大气中微子的质量平方差分别大了 5 个和 2 个量级。如果 LSND 实验被证实, 则说明或存在惰性中微子 ν_s [28], 或者 CPT 破坏 [29], 或者存在非标准中微子的相互作用。由于与 LSND 实验类似的 KARMEN 实验 [30] 并没有观测到 $\bar{\nu}_e$ 出现的信号, 所以 LSND 实验被大多数人怀疑。为了验证这个结果, MiniBooNE 中微子实验 [31], 与 LSND 实验有着相似的 L/E_ν , 通过 $\nu_\mu \rightarrow \nu_e$ 过程来观测电子中微

子的产生。2007 年和 2008 年的观测结果，在 98% 的置信水平上与 LSND 的结果不一致，但是 MiniBooNE 实验观测到的低能电子中微子信号偏多，与预言不一致，影响了结果的可信度。2010 年 MiniBooNE [32] 发表了反中微子振荡的结果，在 2 倍标准偏差下看到了类似 LSND 的振荡。看来是否存在惰性中微子还有很长的路要走。

反应堆中微子实验 CHOOZ [33] 和 Palo Verde [34]，他们观测到的中微子事例数与理论预测到的无振荡事例数，几乎相等。所以没有观测到中微子振荡，只给出了中微子混合角的上限。

中微子振荡说明中微子有质量且存在味道混合。中微子质量与混合的起源是超出标准模型的新物理。为了解释中微子的质量起源，人们提出了多种机制和模型，其中最受欢迎的是 Seesaw 机制 [35]。在 Seesaw 机制中，人们引入了右旋中微子来扩展标准模型。由于右旋中微子是 $SU(2)_L$ 的单态，它的质量产生机制不受弱电规范对称性自发破缺的约束，所以右旋中微子的质量可以远大于弱电对称性破缺能标。左旋中微子质量被重的右旋中微子质量强烈压低，所以质量很小。Seesaw 机制的另外一个优势是可以通过 Leptogenesis [36] 机制解释宇宙中物质与反物质的不对称，Leptogenesis 机制是当前宇宙学和粒子物理的前沿问题。随着宇宙的演化，右旋中微子偏离热平衡衰变产生的 CP 不对称最终导致了轻子反轻子不对称，从而最终转化成物质与反物质的不对称。

下面我们将介绍中微子的质量、轻子混合、CP 破坏及各类中微子振荡实验，并总结了目前实验对中微子质量以及混合的限制。

1.1.2 中微子质量及混合

大气、太阳、反应堆和加速器中微子实验已经用确凿的证据证明中微子振荡现象的存在。这是第一个具有坚实实验证据支持的超出标准模型的新物理现象。中微子振荡，说明中微子具有非简并的静止质量，而且不同种类的中微子可以相互转化。对于有质量的中微子，其味道本征态为 ν_e, ν_μ, ν_τ ，质量本征态为 ν_1, ν_2, ν_3 。在弱相互作用下的味道本征态 $|\nu_\alpha\rangle$ 可以表示为质量本征态 $|\nu_j\rangle$ 的线性叠加。它们之间的关系可以由 PMNS 矩阵来描述。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_{j=1}^3 U_{\alpha j} |\nu_j\rangle \quad (\alpha = e, \mu, \tau) \quad (1.1)$$

其中 U 是 PMNS 混合矩阵元，描述了不同代的轻子间的味混合，与夸克的 CKM 混合矩阵类似，由于存在三代轻子， U 中可以自然的包含 CP 破坏相位。粒子物理手册上提

供了一种参数化 PMNS 混合矩阵的方式，我们一般称之为”标准参数化” [37]:

$$\begin{aligned}
 U &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & C_{23} & S_{23} \\ 0 & -S_{23} & C_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{13} & 0 & \hat{S}_{13}^* \\ 0 & 1 & 0 \\ -\hat{S}_{13} & 0 & C_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{12} & S_{12} & 0 \\ -S_{12} & C_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\phi_1} \\ e^{i\phi_2} \\ 1 \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} C_{12}C_{13} & C_{13}S_{12} & \hat{S}_{13}^* \\ -S_{12}C_{23} - C_{12}\hat{S}_{13}S_{23} & C_{12}C_{23} - S_{12}\hat{S}_{13}S_{23} & C_{13}S_{23} \\ S_{12}S_{23} - C_{12}\hat{S}_{13}C_{23} & -C_{12}S_{23} - S_{12}\hat{S}_{13}C_{23} & C_{13}C_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\phi_1} \\ e^{i\phi_2} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.2)
 \end{aligned}$$

其中， $C_{jk} = \cos \theta_{jk}$, $S_{jk} = \sin \theta_{jk}$, $\hat{S}_{13} = e^{i\delta} \sin \theta_{13}$, δ 一般被称为 Dirac 相位角, ϕ_1 和 ϕ_2 是 Majorana 相位角，在中微子振荡公式中，这两个相位会抵消掉，对中微子振荡没有影响。只有 Dirac 相位 δ 才会导致中微子振荡中的 CP 破坏效应。描述轻子 CP 破坏程度的 Jarlskog 不变量 \mathcal{J} [38] 可以表示成下式：

$$\mathcal{J} = s_{12}c_{12}s_{23}c_{23}s_{13}c_{13}^2 \sin \delta, \quad (1.3)$$

中微子振荡与六个参数有关：三个混合角 θ_{12} 、 θ_{13} 和 θ_{23} ，两个独立的质量平方差 $\Delta m_{21}^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ 和 $\Delta m_{32}^2 \equiv m_3^2 - m_2^2$ ，一个 CP 相位角 δ 。当前的实验对于这六个参数还有两个半没有确定，一个是 δ ，一个是 θ_{13} ，还有就是 Δm_{32}^2 的正负号。2010 年的一个全局拟合 (global fit) 的结果 [39] 如下所示：

$$\begin{aligned}
 \Delta m_{21}^2 &= 7.59 \pm 0.20 ({}^{+0.61}_{-0.69}) \times 10^{-5} \text{ eV}^2 \\
 \Delta m_{31}^2 &= \begin{cases} -2.36 \pm 0.11 ({}^{\pm 0.37}) \times 10^{-3} \text{ eV}^2 \\ +2.46 \pm 0.12 ({}^{\pm 0.37}) \times 10^{-3} \text{ eV}^2 \end{cases} \\
 \theta_{12} &= 34.5 \pm 1.0 ({}^{+3.2}_{-2.8})^\circ \\
 \theta_{23} &= 42.8 {}^{+4.7}_{-2.9} ({}^{+10.7}_{-7.3})^\circ \\
 \theta_{13} &= 5.1 {}^{+3.0}_{-3.3} (\leq 12.0)^\circ \\
 \sin^2 \theta_{13} &= 0.008 {}^{+0.012}_{-0.007} (\leq 0.043) \\
 \delta_{CP} &\in [0, 360]
 \end{aligned}$$

从全局拟合的结果，我们可以知道：

- θ_{13} 只有一个上限，虽然目前最佳拟合值倾向于 $\theta_{13} > 0$ ，但是也不排除 $\theta_{13} = 0$ 。
- 质量平方差 Δm_{32}^2 的符号未确定，中微子质量等级未知。
- 中微子振荡实验对 CP 相角没有任何限制。

我们知道 CP 破坏程度的 Jarlskog 不变量 \mathcal{J} 是正比于 $\sin \theta_{13}$ 的，如果 θ_{13} 太小，则会导致 CP 相角很难测量，可能需要很强的中微子源和更低本底的实验。如果 θ_{13} 为零，则 CP 相角将不能通过中微子振荡实验得到，因此 θ_{13} 的大小决定了未来中微子物理的发展方向。

1.1.3 中微子振荡及实验

考虑从源处发出一束动量为 P 的 ν_α ，其中 $\alpha = e, \mu, \tau$ ，在真空中传播一段距离 L 后到达探测器，实验上观测到它们转化成 ν_β 的概率为：

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(L) \rangle|^2 = \left| \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i}^* U_{\beta i} e^{-iE_i L} \right|^2 \quad (1.4)$$

其中 $E_i = \sqrt{P^2 + m_i^2}$ ，假设中微子的动量远大于质量，所以中微子可以看作是极端相对论粒子，即速度近似等于光速，则可以用传播距离代替时间，且有： $E_i = \sqrt{P^2 + m_i^2} \approx P + \frac{m_i^2}{2P}$ ，因此 1.4 可以写为：

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= \delta_{\alpha\beta} \\ &- 4 \sum_{i>j} \operatorname{Re}(U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin^2 \left[1.27 \Delta m_{ij}^2 \left(\frac{L}{E} \right) \right] \\ &+ 2 \sum_{i>j} \operatorname{Im}(U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin \left[2.54 \Delta m_{ij}^2 \left(\frac{L}{E} \right) \right] \end{aligned} \quad (1.5)$$

式中， $\Delta m_{ij}^2 \equiv m_i^2 - m_j^2$ ，单位是 eV²， L 的单位是 km， E 的单位是 GeV，常数 1.27 来自于单位制的换算。从公式 1.4 或者 1.5 可以看出，Majorana 相位自动消去而不会影响中微子振荡。因此中微子振荡实验不能区分中微子是 Dirac 粒子还是 Majorana 粒子。但是它们在轻子数破坏过程中会出现，比如无中微子的双 β 衰变。

当中微子振荡实验的 L/E 满足关系：

$$\frac{\Delta m^2 L}{E} = o(1) \quad (1.6)$$

时，三代中微子振荡近似变成两种中微子的振荡。在方程 1.2 所示的 PMNS 矩阵参数化条件下，公式 1.5 近似变成如下形式：

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = \sin^2 2\theta \sin^2 [1.27 \Delta m^2 L/E] \quad (1.7)$$

当 $\beta \neq \alpha$ 时，和

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\alpha) = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 [1.27 \Delta m^2 L/E] \quad (1.8)$$

方程 1.7 描述中微子的产生 (appearance) 几率，方程 1.8 描述中微子的消失 (disappearance) 几率，它们是实验中经常用到的两个公式。

1978 年，Wolfenstein [40] 发现当中微子在物质中传播时其振荡行为会受到中微子与物质中的电子以及核子之间的相干向前弹性散射的影响。该影响相当于在中微子有效哈密顿量中增加一个有效势 V 。 V 的出现会改变中微子在物质中的有效质量和味混合角。1985 年，Mikheev 和 Smirnov 发现中微子在变密度的物质中传播时，其振荡振幅可以被共振放大，这便是 MSW 效应 [41]。该效应可以很好地解释太阳中微子由太阳中心传播到太阳表面的过程中发生味转化的问题。

根据不同振荡参数的测量方法， Δm_{21}^2 和 θ_{12} 被称为太阳中微子振荡参数，有时记为 Δm_{sol}^2 和 θ_{sol} ； Δm_{32}^2 和 θ_{23} 被称为大气中微子振荡参数，有时记为 Δm_{atm}^2 和 θ_{atm} 。

下面将以几个著名的中微子振荡实验为例，理解中微子振荡的机制。

太阳中微子实验

1968 年，Homestake 实验发现测量到的太阳中微子 ν_e 约为标准太阳模型预言值的三分之一。此后，一些辐射化学实验（用氯或镓作为探测物质）和水切伦科夫实验也成功地发现了太阳中微子丢失现象。2002 年，SNO 实验用 1000 吨重水探测 8B 衰变产生的太阳中微子。测量了中微子的带电流过程 (CC: $\nu_e + d \rightarrow e^- + p + p$)、中性流过程 (NC: $\nu_x + d \rightarrow \nu_x + p + n$)、弹性散射过程 (ES: $\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$)。其中带电流过程仅对 ν_e 中微子敏感，而中性流过程对所有的活性中微子探测是同等的，弹性散射过程可以探测三种活性中微子，但是对 ν_μ, ν_τ 不是很敏感。2005 年 SNO 公布的新结果为

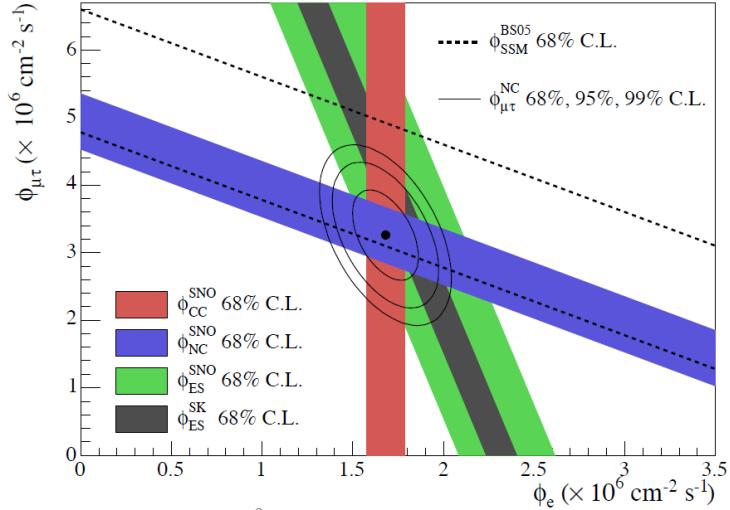


图 1.1: 从 SNO 实验三种相互作用过程中得到的中微子通量, 带状结构代表 1σ , 等高线代表 68%, 95%, 99% 置信区间的通量分布, 虚线是标准模型预言的结果。

[42]:

$$\begin{aligned}
 \phi_{CC}^{SNO} &= (1.68 \pm 0.06^{+0.08}_{-0.09}) \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \\
 \phi_{ES}^{SNO} &= (2.35 \pm 0.22 \pm 0.15) \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \\
 \phi_{NC}^{SNO} &= (4.94 \pm 0.21^{+0.38}_{-0.34}) \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1},
 \end{aligned} \tag{1.9}$$

其中第一项是统计误差, 第二项是系统误差。上式的第三个式子是三种味道的中微子总通量。它和标准模型预言的太阳 ^8B 中微子的通量一致。图 1.1 是电子中微子(ν_e)通量 ϕ_e 和非电子中微子 $\phi_{\mu\tau} = \phi_\mu + \phi_\tau$ 通量的二维分布, 其中也列出了太阳模型的预言和 Super-Kamiokande 实验弹性散射的结果。三种过程分别用不用颜色的带表示, 它们相交于同一点, 说明实验结果是自洽的, 而且中性流的结果与标准太阳模型的预言相符。非零的 $\phi_{\mu\tau}$ 是中微子味道转换的强有力证据。中微子味道转换并不会改变总的中微子通量, 仅仅在不同味道之间重新分配而已。

在 SNO 实验后的一段时间里, 几种能够解释太阳中微子味道转换的候选机制也被重新考虑。候选机制包括受太阳内部物质效应影响的不同振荡形式、真空中的中微子振荡和一些非标准的方案 (例如中微子衰变(Decay) [43] 等模型)。在 SNO 实验之前, 通过整体拟合所有的太阳中微子实验数据发现质量平方差和混合角的参数

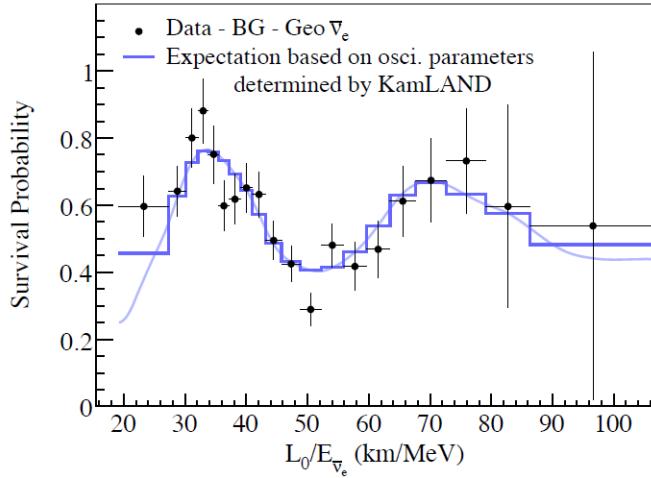


图 1.2: KamLAND 实验给出的存活几率随 L_0/E 的变化, 其中 L_0 为 180 km。实线是中微子振荡的最佳拟合曲线。

空间有简并情况: “小角混合解” (SMA), “大角混合解” (LMA), “低质量平方差解” (LOW), “真空振荡解” (VO)。SNO 的实验结果在 3σ 可信度下排除了 SMA, 但是并没有排除其它情况。如果 LMA 和 CPT 守恒, 根据中微子和反中微子的性质, 日本的 KamLAND 实验应该看到反中微子有一部分消失, 如果与物质效应有关的其他解或真空振荡是太阳中微子味转换的物理机制, 那么 KamLAND 实验不应该看到中微子减少。KamLAND 在 99.95% 的置信区间内给出了反电子中微子丢失。随着统计量的增加, KamLAND 不仅观察到反电子中微子能谱的变化, 同时第一次给出了反中微子的存活几率随 L/E 的变化 [44], 如图 1.2。自此, 中微子振荡的 LMA 是太阳中微子味道转换的最合理机制。

位于意大利 Gran Sasso 的 Borexino 实验组 [45] 从 2007 年以来一直致力于太阳 ^7Be 中微子的探测。Borexino 利用 300 吨极纯的液体闪烁体通过 ν_e 和电子的弹性散射过程, 探测单能的 0.862 MeV 的中微子, 阈值仅为 250 keV, 探测低能的中微子不仅是对标准太阳模型的检验, 更可进一步了解几个 MeV 的中微子在太阳中的物质效应。

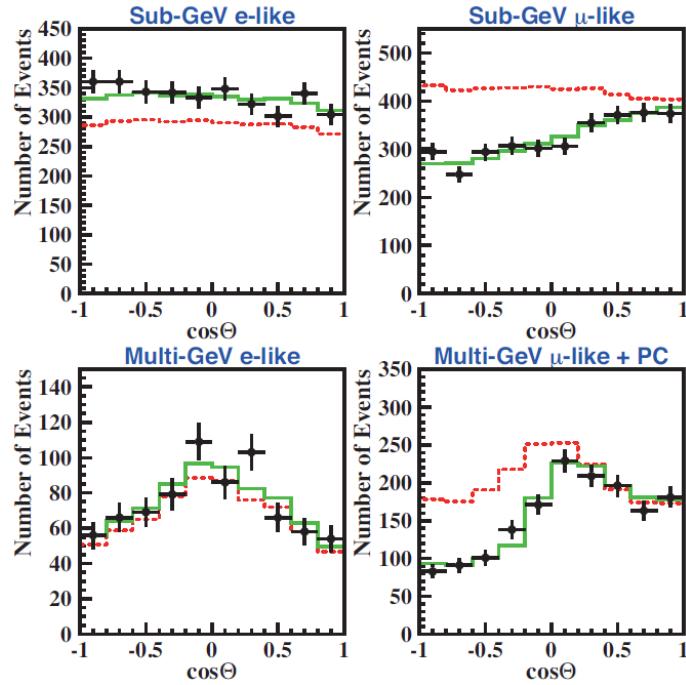


图 1.3: Super-Kamiokande 观测到的 sub-GeV ($<1.33\text{GeV}$) 和 multi-GeV ($>1.33\text{GeV}$) 的电子型和 μ 子型事例随天顶角的变化。虚线代表没有振荡时的 MC 模拟事例，实线代表中微子振荡的最佳拟合曲线。

大气中微子实验

上个世纪七八十年代，很多实验如日本的 Kamiokande 和美国的 IMB 实验，利用水切伦科夫探测器寻找质子衰变，此时大气中微子成了他们实验的主要本底，并因此发现了大气中微子反常。后来 Super-Kamiokande 采用了五万吨纯水，测量中微子与水反应后产生的带电轻子，带电轻子在水中产生的切伦科夫光被水四周的光电倍增管探测到，实验上无法区分是中微子还是反中微子信号，但是可以通过切伦科夫光环的清晰程度判断是 ν_e 还是 ν_μ 。图 1.3 给出了 Super-Kamiokande 观测到的 sub-GeV ($<1.33\text{GeV}$) 和 multi-GeV ($>1.33\text{GeV}$) 的电子型和 μ 子型事例随天顶角的变化。 $\cos \Theta = 1$ 代表向下穿， $\cos \Theta = -1$ 代表向上穿。

如果中微子不发生味转换，则向上和向下穿过探测器的中微子总数是相等的，在 $\cos \Theta = 0$ 两侧观测到的事例数应该是对称的。然而从图 1.3 可以看出，向上和向下

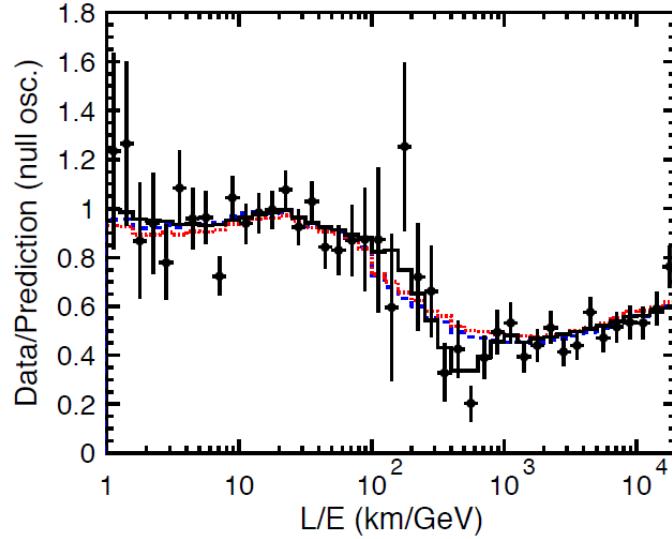


图 1.4: Super-Kamiokande 实验中 μ 中微子事例数对 L/E 的变化关系。点代表实验结果与蒙卡模拟未振荡的事例数比值, 实线对应 $\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$ 振荡的最佳拟合值, 虚线和点线分别表示中微子衰变和退相干模型的最佳拟合值。

穿过的电子中微子数基本相等, 而且是关于 $\cos \Theta = 0$ 对称的, 说明 ν_e 基本没发生变化。但是 ν_μ 在穿过地球的过程中数量减少了。说明在经过地球的这段距离中发生了 $\nu_\mu(\bar{\nu}_\mu) \rightarrow \nu_\tau(\bar{\nu}_\tau)$ 的振荡。Super-Kamiokande 实验组分析了中微子事例数对 L/E 的依赖关系如图 1.4, 实验数据显示的低谷只能由中微子振荡来解释, 这给出了大气中微子味道转换的背后物理一定是中微子振荡。

日本的 K2K 实验 [46] 用 KEK 实验室的 12 GeV 质子打靶产生的 μ 中微子, 利用 120 km 远的 Super-K 探测器进行探测, 进一步证实了 μ 中微子的振荡现象。

美国的 MINOS 实验利用费米实验室 120 GeV 质子产生的 μ 中微子进一步研究了加速器中微子振荡现象, 探测器位于 735 km 远的一个矿井中, 但是最终测量结果与 K2K 的结果基本一致, 得到的大气中微子振荡参数的精度更高。

反应堆中微子实验

θ_{13} 的测量可以通过加速器实验和反应堆实验得到。但是在加速器实验中, 振荡概率依赖于 $\sin^2(2\theta_{13}) \sin^2(\theta_{23}) \delta_{CP}$, 质量等级及物质效应。短基线的反应堆实验可以给出

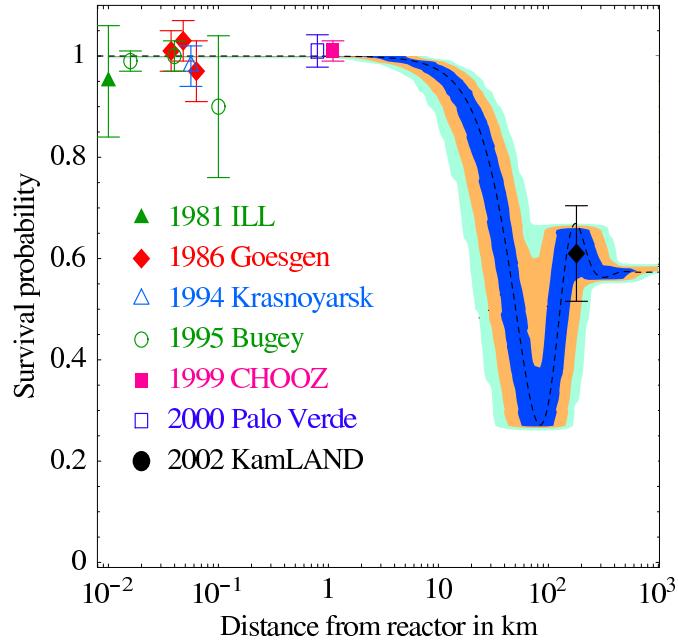


图 1.5: 历史上的反应堆中微子实验

干净的 θ_{13} 值。

通过观测反应堆产生的反电子中微子的存活几率可以得到 θ_{13} 的信息。基线一般在 1 km 到 2 km 之间, 这时候有 $1.27\Delta m_{21}^2 L/E \sim 0$, 利用近似关系 $\Delta m_{32}^2 \sim \Delta m_{31}^2$, 得到公式 1.10:

$$P(\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e) \simeq 1 - \sin^2(2\theta_{13}) \sin^2(1.27\Delta m_{32}^2 L/E) \quad (1.10)$$

因此, 在最优化的基线情况下 $1.27\Delta m_{32}^2 L/E \sim \pi/2$, 存活几率可以近似为 $P(\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e) \approx 1 - \sin^2(2\theta_{13})$ 。然而, 反应堆中微子能量满足一定能谱图, 找不到一个绝对优化的基线让 $1.27\Delta m_{32}^2 L/E = \pi/2$, 所以 $P(\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e) < 1 - \sin^2(2\theta_{13})$ 。图 1.5 显示了几十年来反应堆中微子实验探测结果, 其中 KamLAND 实验基线较长, 测量出的是 θ_{12} 引起的振荡, 其他实验由于探测器质量不够大 (最重的 Palo Verda 实验也才 10 吨), 或者探测器系统误差太大, 或者基线不够长 (< 1 km), 都没有测量到 θ_{13} 引起的振荡。CHOOZ 实验 [33] 给出了最好的结果为 $\sin^2(2\theta_{13}) < 0.17$ 。

目前正在建造和运行的可精确测量中微子振荡参数 θ_{13} 的有三个实验组，如表 1.1。大亚湾中微子实验将会给出最好的灵敏度。

Experiments	Location	热功率 (GW)	距离 近/远(m)	山体高度 近/远(mwe)	靶质量 (tons)	sensitivity
Double Chooz	法国	8.5	400/1050	115/300	10/10	0.03
RENO	韩国	16.4	290/1380	120/450	16/16	0.02
Daya Bay	中国	11.6(17.4)	363(500) /1985(1615)	260/910	40×2/80	0.01

表 1.1: 不同反应堆中微子实验的比较。

大亚湾实验要使灵敏度达到 0.01，实验的误差要达到表 1.2 中的要求。表 1.2 中包

表 1.2: 大亚湾实验误差的要求

误差要求	近点	远点
统计误差	0.07%	$\leq 0.24\%$
探测器相关误差	$\leq 0.38\%/\text{模块}$	
反应堆相关误差	$\leq 0.2\%$	
本底相关误差	0.3%	0.2%

含了三类最基本的系统误差，根据各个探测器之间或反应堆之间的误差是非独立的还是独立的，系统误差可以分为关联误差和非关联误差。

根据大亚湾实验的本底误差，可以对信噪比提出要求。表 1.3 列出了各种本底与信号事例率的比值。

	大亚湾近点	岭澳近点	远点
中微子信号 (/天/模块)	930	760	90
天然放射性/信号	<0.2%	<0.2%	<0.1%
快中子/信号	0.1%	0.1%	0.1%
$^8\text{He}/^9\text{Li}$ 本底/信号	0.3%	0.2%	0.2%

表 1.3: 中微子信号和本底事例率的比值。

1.1.4 中微子物理的主要问题

在过去的几十年中, 尽管标准模型取得了巨大的成功, 但是它也面临着许多挑战。从理论的角度来看, 它并没有能够描述引力相互作用; 从实验来看, 自 1998 年以来, 一系列的太阳、大气、反应堆、以及加速器中微子实验都表明中微子存在非零的质量, 不同味中微子之间存在着混合, 这已经成为了有坚实实验证据支持的超出标准模型的新物理。因此, 标准模型不可能是完整的终极理论, 它应该只是某种更深层次理论在低能标的一种有效理论, 而中微子的微小质量极有可能是这种更基本理论在低能唯象上的一个表现。从唯象的角度研究中微子质量与味混合可以帮助我们揭开其背后物理的神秘面纱, 从而最终使人们对自然界的认识达到一个新的深度。

中微子物理是我们通往新物理之路的指路灯, 但是同时也留给了我们许多难题。这些难题的解答无一例外地需要依靠未来的中微子实验。目前我们面临的问题主要包括:

- θ_{13} 的值。
- 中微子的代数, 是否存在惰性中微子。
- 中微子是 Majorana 粒子还是 Dirac 粒子。
- 质量平方差 Δm_{32}^2 的符号, 即中微子质量等级。
- 宇宙中物质与反物质的不对称能否通过轻子的 CP 破坏效应产生。
- 中微子和反中微子的性质是否破坏 CPT 守恒。
- 中微子的绝对质量和中微子质量的起源。

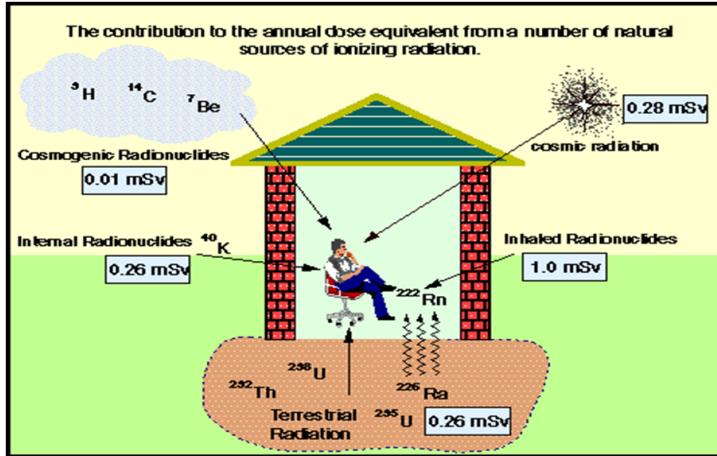


图 1.6: 人类或者探测器所接收的天然辐射。

1.2 低本底技术

人们对低能量稀有事例的探索，比如中微子振荡实验、暗物质实验、 $0\nu\beta\beta$ 实验，使得低本底技术也取得了显著进步。通过对信号的有效标记或者信号的特征可以排除一部分本底；通过对探测器的被动屏蔽，或者低本底材料的耐心选择，也可以减少一部分本底。但是本底的事例率仍然正比于本底来源的辐射量大小。对于探测低能量的，稀有事例的探测器来说，受到的低能放射性影响主要指的是能量在 10 MeV 以下的，来自天然的，人工的，宇宙线的放射性。根据 [47] 可以把这类本底分为以下 5 个方面：

- 1, 环境放射性
- 2, 探测器自身和屏蔽材料的放射性
- 3, 氡及其子体
- 4, 宇宙线
- 5, 中子。

其中天然辐射的本底来源可以形象的用图 1.6 所示，图中的人也可以表示我们的探测器。自从人类在地球上出现以后，就一直受到天然存在的辐射源的照射，包括来自宇宙射线及其次级粒子，来自地球本身存在的天然放射性核素放出的 α , β 和 γ ，空气中的氡气及其子体，包含在食物，饮料中的各种天然存在的放射性核素。人工辐射包括医用 X 射线，来自大气中的由于核武器，核电站泄漏的放射性尘埃等。

下面分别从以上 5 个方面介绍每种放射性的来源及其压低策略。

1.2.1 环境放射性

周围环境的放射性来源主要有三类，原生的、宇宙线产生的放射性核素及其人工制造的。原生的长寿命的天然放射性核素 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 在地壳中的含量分别为 2.4 ppm, 9.6 ppm, 2.7 ppm。这些放射性核素广泛存在于地球的岩石、土壤、江河、湖海中。活度和分布随着岩石构造的类型不同而变化，尤其以花岗岩和结晶花岗岩中的含量最高。在岩石表面，这些长寿命的放射系很难达到衰变平衡态，它们的子核会由于物理或者化学的原因发生迁移，尤其是 ^{238}U 、 ^{232}Th 衰变系上的氡，会释放到空气中。据估计，每天每平米大约有 1300 Bq 的氡气会从土壤中释放到大气中。

宇宙线与大气或者地表相互作用产生的放射性核素主要有： ^{14}C ， ^{3}H ， ^{7}Be 等。与原生放射性核素的放射相比，它的贡献是很小的，约占总环境放射性的 1%。核武测试或者核电站泄漏导致的人为放射性核素有： ^{14}C ， ^{3}H ， ^{137}Cs ， ^{90}Sr 等。1986 年前苏联切尔诺贝利核电站事故，热气团将堆芯中的大量放射性物质抛向 1200 m 高空中，然后水平传输，总放射性含量约为 1.2×10^{19} Bq，放射性成分主要是碘和铯。在欧洲造成复杂的烟羽弥散径迹，放射性物质沉降在前苏联西部广大地区和欧洲国家，并有全球性沉降。在白俄罗斯、乌克兰等地， ^{137}Cs 的含量超过 $185 \text{ Bq}/\text{m}^3$ 。因此在低本底实验中使用这些地方的材料将要很小心。

对探测器有影响的本底主要是这些放射性核素放出的 γ ，它们对探测器周围的屏蔽材料有一定的穿透能力。典型的低本底实验对探测器放射性的含量要求为 ppb 或 ppt，探测器周围的被动或者主动屏蔽也要把外部环境的伽马水平压低到这个量级，图 5.1 所示不同能量的 γ 在水、铅、铜中的衰减长度。如果要使外部环境本底压低 f 倍， $f > 1$ ，所需要的屏蔽层厚度可以用下列式子估算出来：

$$l = \lambda(E_\gamma) * \ln f, \quad (1.11)$$

要使 100 keV (2.6 MeV) 的 γ 的通量减少 $f = 10^5$ 倍，则需要 67 cm (269 cm) 厚的水，2.8 cm (34 cm) 厚的铜，或者 0.18 cm (23 cm) 的铅。这种估算只能到量级上，要精确得到外部环境的伽马对放射性本底的贡献，包括伽马在材料中的散射效应和能量阈值的考虑，则依赖于蒙卡模拟和对探测器所处环境的放射性含量了解。

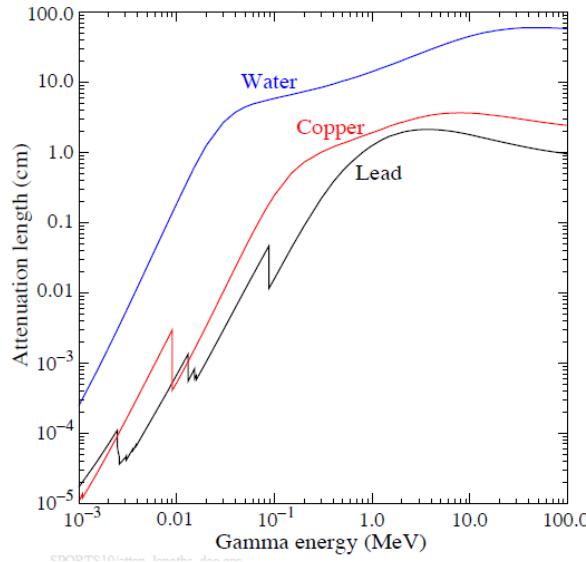


图 1.7: 不同能量的 γ 在不同材料中的衰减长度。

由于水的密度低，所以水对伽马的衰减长度比较长，这样我们需要更大体积的水才能达到同样的屏蔽效果。但是水很便宜，很多大体积的探测器都采用水来屏蔽，而且在水中装上 PMT 同时兼做宇宙线 Veto 的探测器。

1.2.2 探测器自身和屏蔽材料的放射性

在压低了外部环境的放射性到一定水平后，探测器材料自身的内禀放射性及探测器周围屏蔽体的放射性将会变得重要起来。从前面我们可以知道，由于原生的，宇宙线引入的或者人工产生的放射性核素将广泛的分布在地球的岩石，土壤，江河湖海，大气中，在地球上的任何材料都有一定的放射性含量，只是高低而已。某些材料复杂的生产工艺，比如需要和一些反应物发生反应等，将会使材料的放射性纯度进一步下降。在材料的预选择上，我们要知道以下几个方面：

- (1), 合成的材料比天然的材料放射性低。
- (2), 很少和其他物质发生反应的惰性材料或者气体放射性低。
- (3), 由于生产工艺不同，材料的放射性有高有低。比如 Al, Fe 含有更多的原生放射性，电解铜或者无氧铜则较为干净，Ge 或者 Si 的放射性水平可以达到 ppb，现代生产的 Pb 都含有 ^{210}Pb 的放射性，塑料或者液体的其他碳氢化合物由于蒸馏等精练过

程，也是很纯净的。

屏蔽材料的选择一般是要求原子序数高，自身放射性较低，成本低。比如金属 Hg，可以通过反复蒸馏达到很高的纯度，但是 Hg 是很贵的。Fe 很便宜，但是被炼铁炉内衬添加的 ^{60}Co 给污染了。Pb 有高的原子序数，合理的价格，但是内禀的放射性是不能忽略的。

Pb 的内禀放射性已经被很多作者研究过，主要原因是 ^{210}Pb 导致的， ^{210}Pb 的半衰期为 22.3 年，它的子体 ^{210}Bi 会放出一个末态能量为 1.162 MeV 的 β ，这个电子会在 Pb 中通过韧致辐射产生伽马， ^{210}Pb 自然放出的低能伽马和低能电子会被 Pb 自吸收掉。Pb 一般从低铀的矿中开采出来，经过精练，只能去掉 ^{238}U ， ^{210}Pb 仍然留在 Pb 中。低本底实验中应该使用老铅，经过几个半衰期后， ^{210}Pb 及其子体基本衰变完，目前地球上老铅的资源很少。

裂变产物 ^{137}Cs 也在某些材料的表面发现，通过反应堆和核燃料的再处理从而进入到大气中的放射性气体 ^{85}Kr 对某些低本底实验也很重要， ^{85}Kr 在有机材料中的溶解度很高。材料表面的放射性不是材料本身的属性，但是会在材料的生产和加工过程中引入。因此为了避免污染，生产和安装低本底实验的部件经常在洁净间内完成。

1.2.3 氪及其子体

稀有气体 ^{222}Rn 是 ^{238}U 衰变系的中间产物，从土壤的表面释放到大气中。室外氡浓度一般在 10 到 $100 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ，室内氡浓度一般在 100 到 $1000 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ，天然氡的浓度一般随天气、季节、昼夜而变化。 ^{222}Rn 自身只是一个纯的 α 源，它的子体可以放出 β ， γ ，从而对探测器造成本底污染。

氡气在水中的溶解度很高，在有机液体中的溶解度更高，对于大体积的液体闪烁体，一定要注意防氡。氡气在塑料中的穿透性也很强，当用塑料材料的袋子隔绝空气时，要考虑氡的渗透性。用水做屏蔽或者探测器的实验，可以用通氮气的方法减少水中的氡含量。

低本底探测器有时候还需要隔绝空气，通过连续通氮气的方法，使氡含量降低到一定水平。氮气中也含有少量的氡气，要求很严格的情况下，可以通过对氮气的多次蒸馏使其纯化。

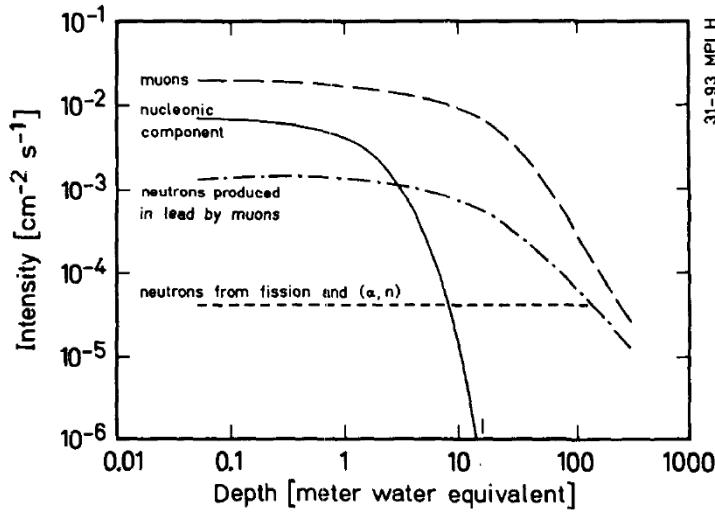


图 1.8: 不同来源的中子通量随岩石深度增加的变化趋势。

1.2.4 宇宙线

未进入大气层前的宇宙线的成分为: 90% 的质子, 9% 的 α , 9% 的重核。经过和大气层的作用生成一系列的次级粒子。在海平面上, 次级粒子 $\pi^\pm : p : e^\pm : n : \mu^\pm$ 的强度之比为: 1: 13: 340: 480: 1420 [48]。产生的次级粒子在穿过一定厚度的建筑物或者屏蔽体时, 除了 μ 子和中子, 其他粒子都会被吸收。中子在岩石中主要通过非弹性散射损失, μ 子在岩石中通过电离、对产生、光核作用等过程损失能量。随着地下深度的增加, μ 子的微分能谱往高能端移动。当 μ 子停下来时, 可以衰变, μ^- 还可能被原子核俘获。前一种情况会产生高能电子, 也叫米歇尔电子。后一种情况有一个或者多个中子释放出来。

图 1.8 定量的表示了 μ 子的通量, 和 μ 子一起产生的中子通量, μ 子在 Pb 中产生的中子通量, 来自天然核素裂变和 (α, n) 反应导致的中子通量随着岩石深度的变化趋势 [47]。 (α, n) 反应的 α 来自地壳中的 ^{238}U 和 ^{232}Th 。在高 Z 材料中, 宇宙线产生中子的过程有: μ^- 被原子核俘获后产生、光核作用(photonuclear reaction)、 μ 子散裂, 即 μ 子通过交换虚光子的相互作用使物质中的原子核解体。

从图 1.8 也可以看出, 要压低宇宙线引入的本底, 探测器上方岩石的覆盖层越厚, 本底越小。当岩石覆盖层不够时, 主动的宇宙线 veto 系统可以用来进一步减小宇宙线

的本底。宇宙线还会和探测器中核素发生反应，生成长寿命的核素，这些长寿命的核素可以在 veto 窗口后发生衰变，形成本底。另外，在周围岩石产生的中子也会漂移到探测器中形成本底，它和宇宙线 veto 系统由于探测效率不是 100% 引入的本底是不能被标记的，所以也会在探测器中形成本底。

另外宇宙线对材料的活化作用对某些低本底实验也是一种威胁，如 Ge 晶体被用于做暗物质实验或 $0\nu\beta\beta$ 实验，应该避免空运，空运过程中，极强通量的宇宙线会使 Ge 晶体活化，产生 ^{57}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{65}Zn 、 ^{68}Ge 等放射性核素。宇宙线对中等 Z 材料活化最强，比如铜或者铁，还应注意这些材料的存储最好是在宇宙线通量很小的地下。

1.2.5 中子

中子是低本底实验中一项重要本底，它们可以通过以下四种方式产生：

- (1), 在海平面上, 中子是除了 μ 子外最多的宇宙线次级粒子。
- (2), 宇宙线中的 μ 子与探测器或者实验室的墙壁通过 spallation 产生的中子。
- (3), 高 Z 材料中, 通过对 μ^- 的俘获放出中子。
- (4), 天然放射性 U, Th 通过 (α, n) 反应产生的中子, 或者 ^{238}U 自发裂变产生的中子。

中子需要用富含氢的物质来屏蔽，比如水或者塑料，一般在塑料中掺入硼，硼对热中子的俘获截面很大。而且对中子的屏蔽层最好放在铅里面，用来吸收宇宙线在铅中产生的中子，但是这样会增加铅的尺寸，提高成本。一般是通过在铅的外面加上宇宙线的反符合探测器，把中子和它的母粒子关联起来。宇宙线反符合的时间窗口要足够大以保证中子的慢化过程，中子在铅中的慢化时间一般是 900 us。这样，反符合引入的死时间将会很大。因此把探测器往更深的地下放，减小 μ 子的通量是减少第(2)、第(3)本底的最有效方式。

1.3 论文的内容和结构

第一章为中微子物理与低本底技术。首先简单介绍了中微子物理在过去七十多年取得的巨大进步，包括中微子质量、味道混合、混合的物理机制—中微子振荡的确立。然而中微子物理仍然存在很多未解决的问题。其次介绍了低本底技术在低能量、低本底实

验的重要作用及应用。

第二章为液体闪烁体探测器技术概述。重点介绍了液体闪烁体的发光机制、光传播过程、淬灭效应，并从这些物理过程或机制中引申出描述液体闪烁体相关的重要概念或参数。

第三章是大亚湾液体闪烁体性能研究。首先通过紫外和电离激发的方式测量了 LAB 为溶剂的液体闪烁体的时间特性，给出了溶剂、发光物质、波长位移剂的时间，并通过模型描述了溶剂到发光物质之间的非辐射能量传递过程和时间。发光物质到波长位移剂之间的辐射传递过程也可以通过另外一个模型很好描述。两种模型给出的发光物质 PPO 的本征发光时间与用紫外单独激发 PPO 测到的发光时间自洽。而且通过单光子的方法同样证明了大亚湾液闪在小体积容器内具有波形分辨能力。大亚湾液闪各成分的发射光谱、吸收、荧光量子效率也都在荧光光谱仪和双光束紫外分光光度计上得到，并与其他实验给出的结果非常近似。最后通过对大量样品，通氮或者不通氮的测量，比较和总结了它们发光时间和光产额的差别，得到氧气对大亚湾液闪的淬灭主要是由溶剂 LAB 引入的。同时给出了大亚湾液闪的光产额随温度的降低而升高，对保持大亚湾中心探测器各模块的全同性和提高能量分辨具有指导意义。

第四章是大亚湾实验天然放射性本底研究。用 Geant4 模拟了大亚湾探测器自身和屏蔽材料的天然放射性对单事例率本底的贡献，由于事例率高会与中子偶然符合形成本底。因此，需要严格控制探测器材料的低本底。同时估算了处于液体闪烁体中的天然放射性核素放出的 α 与液闪中的 ^{13}C 发生反应形成关联本底的事例率。进行了大量大亚湾中心探测器天然放射性本底的模拟研究，提出了钢罐、支撑平台、液体闪烁体、自动刻度装置、光电信增管等关键部件的天然放射性指标，为合作组采用，为大亚湾探测器的设计和建造提供了重要依据。并特别讨论了 GdLS 和液闪生产和存储过程中引入的氡子体在液闪中引入的 (α, n) 关联本底大小，并提出对氡含量的要求。

第五章是低本底反康普顿伽马谱仪的研制。它的研制是对低本底探测器研究的进一步发展，提出了完整的设计方案，基于 Geant4 写了伽马谱仪的模拟软件包 **HPGe**，细致地优化和验证了探测器设计。进行探测器材料的放射性来源调研，寻找购买低本底的屏蔽材料和探测器材料。设计探测器的电子学读出，并购买读出所需要的电子学插件、机箱等。通过对探测器的安装调试，使前期研究的积分本底到达设计指标： $\leq 0.5 \text{ cps}/100 \text{ cm}^3 \text{ Ge}$ (30cpm)。

第二章 液体闪烁体探测器技术概述

液体闪烁体以其较高的光产额，长的衰减长度，良好的兼容性，长期的稳定性，低毒性，低成本被广泛用于过去，现在，以及未来的大体积探测器中。大体积的液体闪烁体探测器通常由液体闪烁体和光电倍增管(PMT)组成，液体闪烁体是靶物质，光电倍增管则负责收集闪烁光的的电荷和时间信息，经过数字化，触发判选后记录下来以供离线处理。触发条件通常是根据在一定时间窗口内 PMT 被击中的个数来判断，这个时间窗口和闪烁光的发光时间和光子在探测器中的飞行时间和是可比的。如果光电覆盖面达到 20%-40%，则能量分辨可达 $7\%/\sqrt{E}$ ，位置分辨可达 $10\text{cm} @ 1\text{MeV}$ [49]。液体闪烁体非常适用于低能量物理事例的探测，比如反应堆中微子实验，太阳 ^{7}Be 中微子探测，但是在几个 MeV 的能区，放射性本底是非常重要的本底，所以为了使探测器达到一定的信噪比，实现物理目标，有时，对液体闪烁体原材料的选择和纯化显得至关重要。

液体闪烁体的工作原理是：当入射粒子进入液体闪烁体时，损失部分或者全部能量，使液体闪烁体的分子电离或者激发，受激的分子在退激过程中发出一定波长的紫外或者可见光。这些荧光光子在传播过程中要经历吸收重发射，瑞利散射，折射反射效应，才能到达光电倍增管的光阴极上。本章的内容主要是液体闪烁体的发光机制，闪烁光的传播过程及其淬灭效应。

2.1 液体闪烁体的发光机制

2.1.1 π 电子的能级结构

芳香族化合物之所以在退激时放出紫外或者可见光子，和芳香族化合物分子的能级结构有很大关系。不像大多数的非有机化合物，有机物的分子间依靠范德华力松散的结

合在一起，它们保持各自的特性，电子结构和荧光特性。

有机分子的电子结构是由碳原子的电子结构决定的 [50]。碳原子中有 6 个核外电子，碳原子的存在状态和能量高低取决于这些电子的运动状态和能量大小。当碳原子处于能量最低的基态时，内层有 2 个 $1s$ 电子，外层有 2 个 $2s$ 电子和 2 个 $2p$ 电子。碳原子的基态可以表示为： $1s^2 2s^2 2p^2$ ，右上角的数字表示相应的轨道中的电子数目。4 个外层电子称为碳的价电子。碳原子本身之间，以及碳原子和其他原子之间的互相化合，就是原子间价电子运动状态的重新取向和互相叠合的过程。这个问题也是泡利在 1931 年提出的杂化轨道理论。所谓杂化，是一个能量的均化过程，经过均化后的杂化轨道，其形状有利于形成共价键时的轨道间重叠，从而形成能量更低和更稳定的共价键。碳原子的杂化有 3 种： sp^3 杂化， sp^2 杂化， sp 杂化，右上角的数字表示参加杂化的 p 轨道的数目，碳原子有 3 个 $2p$ 轨道。其中 sp^2 和 sp 杂化，是形成 π 电子和有机分子发荧光的基础。 sp^2 杂化时，碳原子内的一个 $2s$ 轨道和 2 个 $2p$ 轨道发生杂化，形成 3 个等效的 sp^2 杂化轨道，2 个碳原子各以一个 sp^2 杂化轨道相互重叠形成 1 个 C-C 的 σ 键，其余的 2 个 sp^2 杂化轨道分别与氢原子的 $1s$ 轨道形成 4 个 C-H 的 σ 键，这样 2 个碳原子和 4 个氢原子处于同一平面上才会可能的远离各自，从而减少电子间的相互排斥作用。2 个碳原子剩下的 $2p$ 轨道上的电子则在键轴平行的方向上侧面重叠成键，这样形成的共价键，电子云分布在平面的上下两方，这种键不同于 σ 键，不是轴对称的，被称为 π 键。苯环就是碳原子 sp^2 杂交的例子。 σ 键的电子被紧紧地固定在成键的 2 个原子间， π 键的电子相反，它可以在分子中自由移动，因此很容易被外界激发到高能级上。比如多环芳烃的共轭 π 键已经延伸到整个分子。组成 π 键的电子被称为 π 电子。

在我们清楚了有机分子的电子结构后，我们再来看 π 电子的能级结构。有机分子的 π 电子的能级结构可以从理论和光谱学上得到验证，理论上比较成功的解释就是 Platt 在 1949 年提出的自由电子模型(Perimeter Free Electron Model) [51]，在 Platt 的理论中， π 电子被认为是自由电子，可以沿着分子周围的轨道运动，如果轨道的周长是 l ，电子的波函数满足

$$\psi(x) = \psi(x + l) \quad (2.1)$$

π 电子允许的能级为 $E_q = q^2 h^2 / 2m_0 l^2$ ， q 为轨道量子数。电子的自旋可以是 $1/2$ 也可以是 $-1/2$ ，每个态可以容纳两个电子。所有的能量本征值除了 E_0 ，其他能级都是双重简并的。当电子的自旋是配对时，总自旋为 0，称为电子的单重态，用 S_{mn} 表示，其

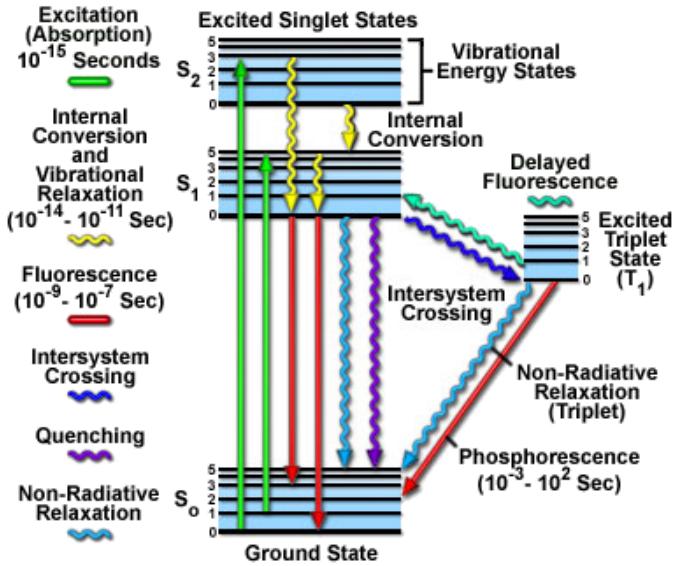


图 2.1: π 电子的能级结构。 S_0 为基态, S_1, S_2, S_3 为激发单重态, T_1 为激发三重态。

[52]

中 m 表示电子能级, n 表示振动能级。当电子的自旋不配对时(其中一对电子的自旋方向一样), 其总自旋为 1, 称为三重态, 并用 T_{mn} 表示, m, n 分别表示电子能级与振动能级。同时, 有机分子的吸收光谱和发射光谱也从实验上验证了 π 电子的能级结构。

图 2.1 是闪烁体分子的 π 电子的能级结构与跃迁示意图。其中不包括转动能级。处于基态的 π 电子被激发时, 容易激发到 π 电子的单重激发态, 而不容易激发到 π 电子的三重激发态, 这是因为不满足跃迁的选择定律。分子激发至的能级与吸收的能量有关。在常温下, 电子一般位于基态的最低能级, 受到外在电离和激发后, 向高能级跃迁, 由于分子的振动和转动能级之间的能量差异很小(振动能级能量间隔为 0.1 eV, 转动能级则为 0.001 eV), 再加上热运动, 所以我们看到的有机分子的吸收光谱是一个波带而不是一根根分立的线。分子被激发到某个能级 S_{mn} 上($m > 2$), 由于振动能级的寿命很短($10^{-14} - 10^{-12}$ s), 可以发生振动松弛 (Vibration Relaxation) 衰变到该电子态的最低振动能级 S_{m0} , 然后又经过内转化 (Internal Conversion) 衰变到第一激发态最低振动能级 S_{10} 上($10^{-13} - 10^{-10}$ s), 这些过程是不发射光子的, 退激发能以热能的方式耗散。荧光都是从 S_{10} 态向基态跃迁时候发出的 [53]。磷光是电子从 T_{10} 上向基态跃迁产生的。电

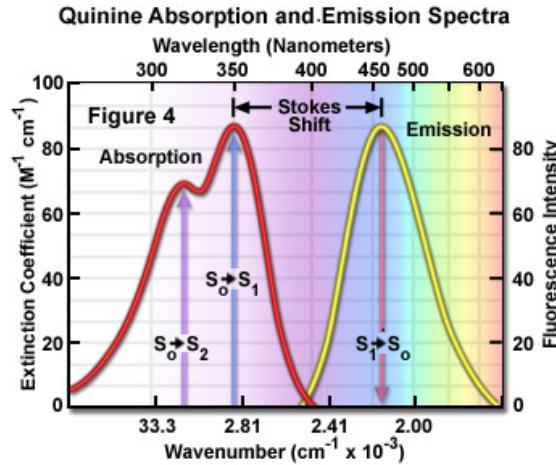


图 2.2: 斯托克斯位移。 [52]

子在 T_{10} 上的寿命很长($10^{-3} - 10^2$ s). S_{10} 有以下方式衰变到基态 [54]:

- (1) $S_{10} \rightarrow S_{0n}$ 的辐射跃迁。这就是我们平常所叫的荧光, n 是基态的振动能级, 电子处于 S_{10} 上的时间通常被称为荧光寿命, 或者叫发光衰减时间;
- (2) $S_{10} \rightarrow S_{0n}$ 的内转化。通过非辐射跃迁的方式退激发;
- (3) $S_{10} \rightarrow T_{0n}$ 的系间窜跃。

在液体闪烁体中, 所观察到的荧光的发射波长总比吸收波长长。斯托克斯在 1852 年首次观察到这种长波长移动的现象, 因而称为斯托克斯位移。斯托克斯位移说明了吸收和发射之间存在着一定的能量损失。如前所述, 激发态电子在向基态跃迁前, 经历了振动松弛或者内转换等过程损失能量到达 S_{10} 态, 这是造成斯托克斯位移的主要原因。正是有了斯托克斯位移, 闪烁体产生的荧光才可以在自身材料中传播。图 2.2 是奎宁的吸收光谱、发射光谱和斯托克斯位移。

由于非辐射跃迁和系间窜跃的存在, 分子吸收的光子数不能全部转换成荧光光子数放出来。所以我们把分子放出的光子数和吸收的光子数的比值叫做荧光量子效率。这个也是闪烁体性质的一个重要发光参数。振动松弛(VR)、内转换(IC)过程、系间窜跃(ISC)这些非辐射过程所需的时间要比荧光过程(一般为 1 ns – 10 ns 量级)小几个量级。因此在发生荧光退激发前就完成了从更高基态到 S_{10} 态的无辐射跃迁过程。实际上闪烁体的发光光子数随时间的变化可以用两个指数过程来描述 [55], 即光子数增加和光

子数衰减的过程，然而光子数随时间增长地很快(约为 10^{-12}s)，而衰减却很慢(不小于 10^{-9}s)。对光子数随时间的变化可以用下述方程表示：

$$N(t) = N_0(1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}})e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2.2)$$

其中 τ_1 为增长时间常数， τ 为衰减时间常数。设光子数达到最大值的时间为 T ，而且 $\tau \gg T > \tau_1$ 所以上式可写为：

$$N(t) = N_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2.3)$$

发光衰减时间 τ ，定义为光子数从最大值衰减到 $1/e$ 所需要的时间。 τ 和闪烁体的种类，溶质浓度，温度等有关。它决定了闪烁体的时间特性。不同闪烁体有不同的发光时间，也有快慢成分的差别。下面我们会讲到快慢成分的成因。

2.1.2 π 电子的电离激发和荧光慢成分

当带电粒子穿过液体闪烁体时，使闪烁体的分子激发或者电离，从而损失能量，但是损失的能量只有很少一部分大约 3% 用来产生闪烁光。发光效率或者光产额就是为了表征闪烁体将吸收的粒子能量转化为闪烁光的本领而引入的，是闪烁体非常重要的特性之一。通常用电子在液闪中沉积 1MeV 能量时，产生的光子数来表示，比如蒽晶体的光产额为 $1.5 \times 10^4/\text{MeV}$ 。之所以选择是电子，不是 α ，或者质子是由于重带电粒子的电离能损大，电离淬灭使得它们沉积相同的能量产生的闪烁光子数更少。淬灭效应将在后面提到。Birks 曾指出，带电粒子损失的能量可用于：

- (1) 使 π 电子处于激发单态。
- (2) 使 π 电子电离，形成电子-离子对。
- (3) 使其他电子，比如 σ 电子或者碳原子 $1s$ 轨道上的电子激发。
- (4) 使除了 π 电子以外的其他电子电离。

π 电子的三重态是不能直接被激发的，因为是自旋禁戒的。过程(1)是产生荧光快成分的主要原因。过程(2)在发生离子重组合后，将会使分子处于激发三重态和激发单态，据估计 75% 的分子将处于激发三重态。离子重组合使分子处于激发三重态对荧光慢成分的形成起着主导作用。三重态 T_1 的寿命是比较长的，因为它向 S_0 态跃迁是禁介

的。荧光慢成分的成因和 T_1 态有很大关系。根据 Ref. [50]，慢成分是由于两个处于三重态 T_1 的分子相互碰撞，碰撞后，使得一个分子回到 S_1 态，另外一个处于 S_0 态。这个过程可以用下式来表示：



返回到 S_1 态的分子退激过程中发出的荧光光子和快成分的光谱结构完全一样，只是在时间上落后了快成分的荧光光子。那么慢成分的时间常数取决于 T_1 态的寿命和两个处于 T_1 态的分子碰撞速率。慢成分的强度正比于处于 T_1 态的分子浓度的平方 $[T_1]^2$ 。当有机分子受到紫外激发的时候， T_1 态的产生只能通过系间窜跃的方式得到，因此慢成分正比于 $[S_1]^2$ 。当有机分子受到电离激发时， T_1 可以通过两个过程得到：一是通过系间窜跃从 S_1 态得到，二是通过电离后的离子重组合使电子从激发的三重态的高能级通过内转换回到 T_1 态。同时，由于重带电粒子，比如 α ，电离能损 dE/dx 很大，离子重组合后将会产生更多处于三重态的分子，因此慢成分的权重将会比电离能损低的电子和质子大。这也是闪烁体能进行波形分辨的原因。波形分辨在压低本底方面有着重要作用，这也是液体闪烁体探测器的一个重要优点。

2.1.3 液体闪烁体的组成和能量传递

液体闪烁体的组成

有机闪烁体一般由芳香族化合物组成，密度一般 1 g/cm^3 左右。溶剂占到溶液的 90% 以上。溶剂的荧光量子效率很低，发光时间很长，见表格 2.1。一个液体闪烁体如果只包含溶剂的话，那么很多的电子激发能将会以非辐射的方式释放掉，那么可供探测的闪烁光将会很少，闪烁体的能量分辨也会很差。溶剂的发光光谱一般集中在 300 nm 以前，光电倍增管在这个波段的量子效率很低。而且由于溶剂浓度很高，闪烁光的自吸收也将很严重。我们曾做实验比较过 LAB 以很稀的浓度溶解在环己烷中的发射光谱和纯 LAB 的发射光谱，发现纯 LAB 的自吸收很严重。纯 LAB 在短波段的分子几乎全部被吸收了。常用的溶剂有 Toluene, Pseudocumene, PXE，它们的分子结构见图 2.3。

发光物质被加入到溶剂中来提高闪烁体的发光效率，其中要求发光物质的 S_1 态能级要低于溶剂的 S_1 态能级，换句话说，发光物质的吸收光谱要落在溶剂的发射光谱内。这样才便于接收溶剂的激发能。发光物质的浓度一般在 $1 \text{ g/L} - 5 \text{ g/L}$ ，由于浓度

表 2.1: 一些有机溶剂的荧光时间和量子效率。

有机溶剂	发光时间 τ (ns)	荧光量子效率 q
	29	0.07
Benzene	33.6	0.1
Toluene	35.2	0.24
p-Xylene	33.3	0.22
Mesitylene	38.3	0.14
Pseudocumene	27.2	0.28

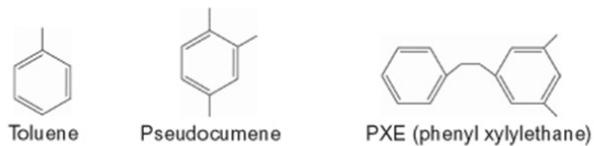


图 2.3: 常用溶剂的分子结构。

低, 所以自吸收小。发光物质的量子效率一般比较高(70%以上)。有时, 发光物质的发射光谱和光电倍增管的光响应曲线匹配的不是很好, 或者闪烁体体积太大, 发光物质的自吸收已经影响到闪烁光的探测效率和能量分辨, 这时, 一般加入第二发光物质, 也叫波长位移剂(Wave Length Shifter)来提高光电倍增管的光响应和进一步减少自吸收。波长位移剂的选择也必须满足它的吸收光谱落在第一发光物质的发射光谱内。第二发光物质的浓度一般在 $10\text{ mg/L} - 20\text{ mg/L}$ 。常用的第一, 第二发光物质的分子结构和发射光谱的最大值见图 2.4。

液体闪烁体的能量传递

值得说明的是前面所讲的都是指发生在分子内的物理过程。比如荧光的特性(发光时间, 发射光谱, 荧光量子效率), 内转换过程, 系间窜跃等。那么这部分所讲的闪烁体中的能量传递还有后面要讲到的浓度淬灭和杂质淬灭都是不同分子之间的相互作用。

Primary Scintillators		
Scintillator	Structure	Emission Wavelength
Butyl PBD 2-[4-biphenyl]-5-[4-(tert-butyl-phenyl)-1,3,4-oxadiazole] Order No. SFC-20		363nm
Naphthalene Order No. SFC-40		322nm
PPO 2,5-diphenyloxazole Order No. SFC-10		357nm
<i>p</i> -Terphenyl Order No. SFC-50		340nm
Secondary Scintillators		
Scintillator	Structure	Emission Wavelength
BBQ (7H-benzimidazo[2,1-e]benz [de]isoquinolino-7-one) Order No. SFC-13		477nm
Bis-MSB (1,4-bis[2-methylstyryl]-benzene) Order No. SFC-90		420nm
POPOP (1,4-bis[5-phenyloxazol-2-yl]benzene) Order No. SFC-60		410nm
TPB (1,1,4,4-tetraphenyl-1,3-butadiene) Order No. SFC-15		455nm

图 2.4: 常用第一, 第二发光物质的分子结构和发射光谱最大值对应的峰位。

当闪烁体处于电离辐射环境时，由于溶剂的大体积和大含量，一般先被电离激发的都是溶剂分子。这时，溶剂的激发能就需要从溶剂到发光物质和波长位移剂上传递。Birks [50] 的书上详细地解释了能量传递中的各种物理过程和它们之间的竞争。如果溶剂分子放出一个荧光光子，这个光子被发光物质的分子吸收，这种传递能量的方式叫做辐射传递能量。如果溶剂分子通过偶极子和偶极子间共振的方式把能量传递给发光物质的分子，而这个过程中没有光子的释放和吸收过程，这种传递能量的方式叫做非辐射传递能量。第一个研究非辐射传递能量方式的人是 Föerster [56]，他对溶剂和发光物质之间提出了很强的关联，包括共振能量转移和交换能量转移。第三章我们将详细介绍溶剂和发光物质之间的能量传递问题。

在设计液体闪烁体的时候，我们希望溶剂到发光物质的传递能量方式是非辐射的，因为发光物质的加入就是为了使液闪获得高的发光效率和短的发光时间。如果是辐射方式传递能量的话，溶剂长的发光时间和低的量子效率，将会使液体闪烁体丧失它的优点。因此有效的把能量从溶剂传递给发光物质必须依赖非辐射的能量传递方式，这样发光物质的荧光量子效率和发光时间才可以主导液体闪烁体的发光效率和发光时间。

第一发光物质可以通过辐射或者非辐射的方式把能量传递给第二发光物质，但是由于第二发光物质的浓度很低，一般不满足非辐射传递能量的要求。在液闪中加入第二发光物质不是为了提高发光效率和时间分辨的，而只是起波长移位的作用，所以二者之间辐射传递能量的方式是可以接受的。因此，我们可以简单地用图 2.5 来表示溶剂，发光物质和波长位移剂之间的能量传递方式，近似的发光物质浓度，发射光谱峰位和能量传递距离也在图 2.5 中表示出来。

2.2 闪烁光传播过程

在液体闪烁体中除了电离辐射会产生闪烁光，带电粒子的速度超过光在液闪中的速度 c/n (n 为液闪的折射系数)，将会产生一种定向的电磁辐射，即为切伦科夫辐射。光子的产生地点一般距离光电倍增管比较远，光子在到达光电倍增管前会经历光的吸收重发射过程，瑞利散射和边界效应。尤其是切伦科夫光效应，会影响能量响应的非线性。

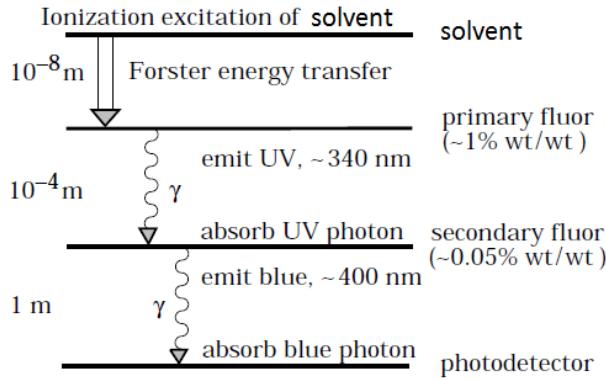


图 2.5: 溶剂, 发光物质和波长位移剂之间的能量传递方式, 还分别列出了近似的发光物质浓度, 发射光谱峰位和能量传递距离。

2.2.1 光的吸收重发射

当一束强度为 I_0 , 波长为 λ 的单色光通过长度为 $x \text{ cm}$ 的均匀溶液时, 透射光强度可以用 Lambert-Beer 定律来表示:

$$I(\lambda, x) = I_0(\lambda)10^{-c\varepsilon(\lambda)x} \quad (2.5)$$

其中 c 是溶液的浓度, 用 mol/L (摩尔/升) 表示时, ε 为摩尔吸光系数, 单位是 $\text{L}/(\text{mol} \times \text{cm})$ 。当 c 用 g/L (克/升) 表示时, ε 则为质量吸光系数, 单位是 $\text{L}/(\text{g} \times \text{cm})$ 。而溶液的本征衰减长度 L 定义是光强衰减到初始的 $1/e$ 时所通过的长度, 可以用下式来表示:

$$I(\lambda, x) = I_0(\lambda)e^{-x/L(\lambda)} \quad (2.6)$$

因此本征衰减长度和摩尔吸光系数之间的关系为:

$$L(\lambda) = \frac{1}{\varepsilon(\lambda)c \ln 10} \quad (2.7)$$

本征衰减长度或者摩尔吸光系数告诉我们, 不同波长的光在闪烁体中传播时, 有多大的概率被吸收。这里的衰减除了包括光子的吸收外, 还包括下面要讲的散射。衰减长度长的光子可以传播更长的距离, 有更大的几率到达光电倍增管。被闪烁体吸收的光子可以把闪烁体分子的电子激发到高的能级上, 从而有一定的概率再被重新释放出来。这

个光子被释放出来的概率和时间特性就由这个吸收它的分子的荧光量子效率和发光衰减时间决定。这样荧光光子并不是一旦被吸收，就完全损失，只是被分子吸收后，过段时间又会重新释放出来。

光在液体闪烁体中的吸收取决于闪烁体的浓度和摩尔吸光系数。溶剂的浓度一般是固定的，但是溶质的浓度是可以变化的。虽然低的浓度可以减少荧光光子的吸收，但是会降低溶剂到发光物质的能量传递效率。这部分内容将会在第三章进一步阐述。这里我们需要记住的是，光衰减长度或者摩尔吸光系数是衡量光在大体积液体闪烁体中传播的一个重要物理量。衰减长度可以在溶液的吸收光谱区域测量的非常准确，在吸收光谱区域外，其他的物理过程将会扰乱光吸收的测量。另外在小体积的容器中，长波长光的吸收或许很少，但是在大体积的液体闪烁体中，长波长的光子被吸收也很重要，因为会对能量的非线性产生影响。

2.2.2 瑞利散射

光子在液体闪烁体中传播时，可能会被闪烁体中的溶剂或者发光物质的分子吸收，然后重新发射出来，这个过程可以被认为是非弹性散射过程，因为它包含了光子波长的变化和发光时间的延迟。但是光子在传播过程和闪烁体的相互作用过程还可以是弹性碰撞的过程，碰撞完后，光子的波长(或者是频率)不发生变化，碰撞时间比有机分子的发光时间(10^{-9} s)小很多，只有 10^{-15} s。这个过程被称为瑞利散射。

Hirschfelder [57]曾提出了瑞利散射的理论公式来描述散射光强度和入射光强度的比值：

$$\frac{I}{I_0} \propto \frac{N\alpha^2(\varepsilon_d + 2)^2}{\lambda^4} (1 + \cos^2 \theta) \quad (2.8)$$

式中 N 代表发生散射的分子数， α 是分子的极性， ε_d 是介电常数， λ 是散射光的波长， θ 是入射光子和散射光子的夹角。我们可以看出散射强度和入射光波长的 4 次方成反比。波长越短的光子散射越厉害。实验上通过测量不同波长的散射光子在某些单位立体角范围的散射强度和入射强度的比值，得到瑞利散射的散射长度 [58]。该文献测量的某些溶剂的瑞利散射长度值见表格 2.2。

2.2.3 边界效应

当光子运动到不同介质的边界时，光子将会根据边界处两种不同材料的光学性质，

表 2.2: 一些有机溶剂的瑞利散射长度 @430 nm .

有机溶剂	瑞利散射长度 l_{ray} (m)
PXE	32
LAB	45
Pseudocumene	21
Dodecane	44

发生不同的物理过程。主要过程包括折射，反射和界面处的吸收。

2.3 荧光淬灭效应

荧光淬灭，广义上是指任何可使荧光量子效率降低也即荧光强度降低的作用。荧光的淬灭可以是发光物质的分子与溶剂或者溶质分子之间发生了物理或者化学的过程使得荧光强度下降，也可以是发光物质的分子与淬灭剂的分子发生相互作用，使得荧光减少。淬灭过程实际上是与发光过程相互竞争从而缩短发光分子的发光衰减时间和降低荧光量子效率的过程。

2.3.1 杂质淬灭

杂质就是指溶液中存在除了溶剂和发光物质以外的其他能使荧光发生淬灭的物质(也叫淬灭剂)。比如氧气是众所周知的淬灭剂 [54]，它能引起几乎所有的荧光物质发生淬灭。因此如果要获得可靠的荧光量子效率或者荧光寿命，往往对溶液通氮气 [67]，除去溶液中的溶解氧。氧气和一氧化氮分子的基态电子不是成对的，因此它们的基态是三重态，第一激发态是单态，处于基态的氧分子 T_0 与处于第一激发单态 S_{10} 的荧光物质的分子发生相互作用，导致荧光物质的分子从第一激发单态 S_{10} 窜跃到 T_1 上，氧气分子从基态跃迁到第一激发单态。因荧光物质三重态分子的寿命比较长，很容易把多余的能量消耗在它们与其他分子的碰撞中，从而导致荧光的淬灭。氧气还可以与发光物质的激发态分子发生碰撞，使其从激发态向基态跃迁而不放出光子。碰撞淬灭可以用 Stern-Volmer 方程来表示。

除了基态电子没成对的分子是淬灭剂外，分子中包含重的原子 Br, Cl, 比如卤素化合物、重金属离子等，也是著名的荧光淬灭剂。因为重原子有更大的自旋轨道耦合作用，这将增大激发态分子 S_{10} 到 T_1 的系间窜跃概率。

对杂质淬灭原理的研究，使我们意识到要想得到更多的荧光光子和更好的能量分辨率，对闪烁体除氧是很必要的。闪烁体的除氧方法通常有三种：超声波除氧，真空蒸馏除氧，通氮气或者氩气。对于大体积的液体闪烁体来说，通氮气除氧是最有效，成本最低的一种方式。

2.3.2 浓度淬灭

当荧光物质的浓度超过 1 g/L 时，常发生荧光的自淬灭现象。自淬灭现象主要包括两种：

(1) 荧光的自吸收。一般发光物质的发射光谱和吸收光谱之间存在重叠，发出的光子一部分会被自身吸收。随着浓度的增加，自吸收现象将会加剧。这种自吸收，实际上是辐射能量转移的过程，基态分子在吸收光子后，跃迁到激发态，但是由于荧光量子效率总是小于1的，所以自吸收的结果导致了荧光的减少。

(2) 荧光物质的激发态分子与基态分子形成二聚体。二聚体一般不发荧光，有的虽发光，但是其发光特性与单体的发光特性不同，因此会引起荧光的淬灭。对液体闪烁体来说，由于溶剂到发光物质之间是非辐射的方式传递能量，这个过程很快，所以溶剂分子之间形成二聚体的概率很低，可忽略。对于发光物质来说，如果浓度过高，就会形成二聚体。对于大亚湾液体闪烁体来说，溶剂 LAB 分子形成的二聚体是可忽略的。曾有人专门对发光物质 PPO 进行过研究，Berlman [60] 测量了 PPO 在 100 g/L 时，二聚体荧光的发光时间是 14 ns，而且 PPO 在 1 g/L 时，不会形成二聚体。Birks也曾发现 PPO 在 20 g/L 时会形成二聚体，但是在 2 g/L 时不会形成二聚体。大亚湾液闪的 PPO 在 3 g/L 时，从我们后面的测量来看，也没发现二聚体。

2.3.3 温度淬灭

当溶液中不存在淬灭剂时，荧光量子效率的大小与辐射过程及非辐射过程的相对速率有关。辐射过程的速率被认为不随温度变化，因此，荧光量子效率的变化反映了非辐射跃迁过程中速率的变化。随着温度的增加，介质的黏度变小，从而增大了荧光分子

与溶剂分子碰撞淬灭的机会。

溶液中有淬灭剂存在时，温度对于荧光强度的影响将更为复杂，这是由于温度对于分子的扩散、活化、分子内部能量转化及其溶液中各种平衡有一定的影响。如果荧光淬灭作用是由于荧光物质的分子和淬灭剂分子之间的碰撞引起的，则荧光强度将随温度升高而降低；如果荧光淬灭作用是由于荧光物质的分子与淬灭剂分子组成化合物，则荧光强度可能随温度的升高而增强。

2.3.4 电离淬灭

早期的闪烁体实验中就发现，重带电离子在闪烁体中单位路径产生的光子数与单位路径的沉积能量并非线性关系，粒子的电离密度越大，偏离线性程度越大，这种现象称为电离淬灭。它既和入射粒子的种类(电荷和质量)有关，也和入射粒子的能量有关。带电粒子在闪烁介质的单位路径上沉积的能量 dE/dr 和在液闪中产生的光子数 dL/dr 可以用 J.B. Birks 的半经验公式来表示 [50]：

$$\frac{dL}{dr} = \frac{SdE/dr}{1 + kBdE/dr}. \quad (2.9)$$

其中 S 是绝对闪烁效率， B 是一个常数，在 Birks 的公式里， BdE/dr 认为是单位能损产生的被电离与被激发分子密度， k 定义为电离淬灭系数。通常把 kB 一起当作一个参数，它是液体闪烁体的一个重要参数，不同液闪的 kB 常数是不一样的。当淬灭中心密度很小时，即 $kBdE/dr \ll 1$ ，公式 2.9 变成

$$\frac{dL}{dr} = S \frac{dE}{dr}. \quad (2.10)$$

将该式两边对 r 积分，并根据初始条件，取积分常数为 0，于是有：

$$L(E) = SE. \quad (2.11)$$

即产生的荧光光子数与沉积的能量呈线性关系。对于低能的重离子(比如 α 粒子能量 $E < 6$ MeV 时)， $kBdE/dr$ 是很大的，公式 2.9 变成 [50]：

$$\frac{dL}{dr} = \frac{S}{kB} = \text{const}. \quad (2.12)$$

将该式两边对 r 积分，则有

$$L(E) = \frac{S}{kB} R(E). \quad (2.13)$$

其中 $R(E)$ 为入射粒子的射程。由此可见, 对于低能的重带电粒子, 产生的荧光光子数是与径迹长度成正比。大亚湾液闪的 kB 常数测量是在原子能院, 利用 ${}^9Be(d, n)$ 反应产生的中子测量得到的 [63]。普通液体闪烁体的 kB 常数为 $8.205 \times 10^{-3} g/(MeV \cdot cm^2)$, 掺 Gd 液体闪烁体的 kB 常数为 $6.489 \times 10^{-3} g/(MeV \cdot cm^2)$ 。

2.4 大亚湾实验的液体闪烁体

大亚湾实验对液体闪烁体最基本的要求是发光效率高、透明度好(即衰减长度长), 保持长期稳定性。这是因为液体闪烁体的光产额和衰减长度直接决定了大亚湾中心探测器的能量分辨率。长期的稳定性才能保证大亚湾实验三年的取数时间, 从而达到 $\sin^2 2 \theta_{13}$ 到 0.01 的精度。

中心探测器的靶物质是掺有稀土元素 Gd 的液体闪烁体。相对于普通液体闪烁体, 掺 Gd 的液体闪烁体要达到上述要求更是困难重重。液体闪烁体都是有机溶液, 因此首先面临的困难是怎样把非有机物的金属 Gd 均匀地溶进闪烁溶液之中且不析出。化学家提出的解决办法是将非有机相的 Gd 盐与有机配体发生反应, 生成 Gd 的络合物, 然后将 Gd 的络合物溶于闪烁溶液之中。由于不同的配体生成的 Gd 的络合物在不同溶剂中的溶解度是不同的, 所以问题和核心就转变为溶剂的选择和配体的选择。

在液体闪烁计数的早期, 闪烁溶液的配制体积一般都不大, 那时使用的溶剂是苯或甲苯。但之后人们发现苯或甲苯的毒性对人体的健康危害太大, 且会导致癌症, 所以在需要大量液体闪烁体的反应堆中微子实验或者太阳中微子实验中, 人们不可能再用苯和甲苯作为液体闪烁体的溶剂。近年来, 由于偏三甲苯在工业上有着广泛应用且它的光产额高, 所以之前的 CHOOZ 及 Palo Verde 都用偏三甲苯作溶剂。考虑均三甲苯和偏三甲苯的性质相似, 而且在国内的化工生产中, 均三甲苯的生产比偏三甲苯要多, 价格更优, 所以大亚湾在液体闪烁体的研制初期选择用均三甲苯做溶剂。无论均三甲苯还是偏三甲苯都对有机罐材料亚克力 (Acrylic) 玻璃有腐蚀性, 因此需要加入第二溶剂作为稀释剂。矿物油(mineral oil)首先被选择作稀释剂是因为它在工业上的广泛应用并且它的闪点高, 且在以往的反应堆中微子实验中已有广泛应用。中心探测器模型建造完成的时候, 正值液体闪烁体的研究初期对溶剂的选择阶段, 所以中心探测器模型第一阶段的靶物质是不掺Gd的普通液闪。溶剂是 30% 的均三甲苯和 70% 的矿物油。第一溶质是 $5g/L$ 的 PPO, 第二溶质是 $10mg/L$ 的 bis-MSB [63]。

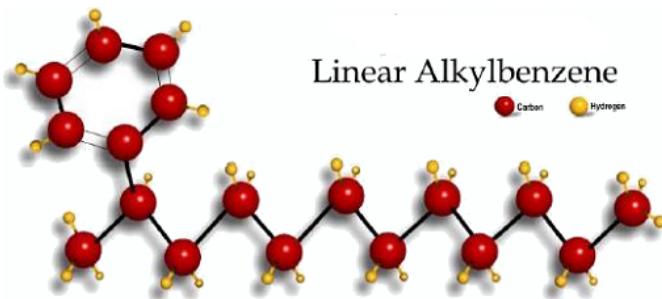


图 2.6: 线性烷基苯(LAB)的结构式。

但是矿物油是不同烷烃的混合物，不同时间、不同批次生产出的矿物油的化学组分和质量会有所不同。像大亚湾这样的高精度实验需要精确控制近远点探测器每个模块内液体闪烁体的化学组分，保证每个模块“完全”相同。考虑到矿物油的这个缺点之后，十二烷(dodecane)进入了大亚湾的视野。十二烷的透明度比矿物油还要好，闪点高、不易发生化学反应且产品纯度高，我们可以完全掌握它的化学组分，所以十二烷成为代替矿物油的稀释剂。

选定均三甲苯作为溶剂，白油和十二烷作为可能的稀释剂之后，研制的重心就转为配体的选择。以往的中微子实验及相应的研制单位主要尝试过的配体有 [61]: 羧酸(BNL, Palo Verde, Bicron, Double CHOOZ), β -二酮(MPI-K, Double CHOOZ), 有机磷化合物(Sheffield大学, LENS)。大亚湾的化学家前后选择了几种 β -二酮(Acac, DBM, BTFA, HPMBP), 几种有机磷的化合物(TOPO, D2EHP, TEP)和几种羧酸(EHA, TMHA)分别与 Gd 盐反应生成不同种类的 Gd 络合物 [62]。然后将这些络合物溶解于不同体积配比的均三甲苯与矿物油或是十二烷的溶剂中。由 β -二酮生成的 Gd 络合物要么溶解度太差，要么有颜色，透明度太差，所以 β -二酮被排除掉。有机磷化合物生成的 Gd 络合物的溶解度很好但溶液的透明度比较差。配体的选择最后集中在羧酸上。

这期间，线性烷基苯(Linear alkylbenzene, 简称 LAB, 分子结构式见图 2.6)的出现使得配体的选择最终得以确定。LAB 无毒、闪点高、透明度好、与亚克力材料兼容，成本低，并代替均三甲苯成为理想的溶剂。实验发现羧酸 TMHA 与 Gd 盐反应后生成的 $Gd(TMHA)_3$ 可直接溶于 LAB，无需添加稀释剂来助溶，且不会水解。加入第一溶质 PPO 和波长位移剂 bis-MSB 之后，就完成了掺 Gd 液体闪烁体的配置。光产额、衰减

第二章 液体闪烁体探测器技术概述

长度及老化实验的测量结果均显示用 100% LAB 作做溶剂、用 TMHA 做配体、用 $3g/L$ PPO 和 $15mg/L$ bis-MSB 做溶质的配方配制的 0.1% Gd 液体闪烁体符合大亚湾实验要求。中心探测器模型第二阶段的靶物质 [63] 是在此配方之前生产的掺 Gd 液体闪烁体，其化学构成除 bis-MSB 仍为 $10mg/L$ 外，与大亚湾实验的最终配方完全一致。第二阶段长期运行的结果同时验证了掺 Gd 液体闪烁体的长期稳定性。

液体闪烁体是大亚湾实验中心探测器的重要组成部分。下一章我们将以大亚湾液体闪烁体的物理性质测量为例，深刻理解液体闪烁体的发光机制，光传播过程，淬灭效应等。

第三章 大亚湾液体闪烁体性能研究

大亚湾实验采用了新型的 LAB 为溶剂，不同于以往中微子实验采用的偏三甲苯，甲苯等，所以要研究这种新型溶剂组成的液体闪烁体的物理性质才能理解探测器的时间和能量响应。

大亚湾液闪组成成分复杂，是以 LAB 为溶剂，3 g/L PPO 为发光物质，15 mg/L bis-MSB 为波长位移剂的三元液闪，不同于以往实验比如 Borexino 采用的二元液闪(PC 为溶剂，1.5 g/L PPO 为发光物质)。液体闪烁体是探测带电粒子产生的闪烁光，要深刻理解和描述闪烁光的产生机制及其光传播过程，我们需要知道液闪中各成分的发光光谱，发光时间，荧光量子效率，衰减长度，还有各成分之间的能量传递方式和能量传递时间。这种研究对于预测和理解大体积液体闪烁体的行为具有重要作用。

大亚湾反应堆产生的反电子中微子在中心探测器内的掺钆液闪中发生反 β 衰变产生正电子和中子。正电子损失动能后和电子湮灭产生 2 个 0.511 MeV 的伽马被探测器探测到后形成快信号，中子经过碰撞，俘获后的产生大约 8 个 MeV 的几个伽马被探测器探测到后形成慢信号，中子在掺钆液闪中的俘获时间常数为 28 us。通过快慢信号在 1 us 到 200 us 内符合来标记中微子，由于符合时间窗口短，所以可以压低偶然符合本底。快中子本底是大亚湾实验一项很重要的本底，它的形成是由于快中子和液闪中主要是 H 核的碰撞产生的快信号，及快中子经过碰撞变成热中子后被 GdLS 俘获形成的慢信号，它们形成了类似中微子信号特征的关联本底。如果大亚湾液闪能够做 (n, γ) 分辨，那我们就可以通过快信号的脉冲波形差异，进行粒子鉴别，从而减少这类关联本底。为了鉴别和压低大亚湾实验的关联本底，比如快中子本底和第四章要介绍的 (α, n) 本底，特别研究了大亚湾液闪的波形分辨能力。

同时，研究了大亚湾液闪的淬灭机制，比如氧气淬灭和温度效应，为保证大亚湾各

中心探测器模块的全同性具有指导意义。

3.1 LAB 为溶剂的液闪的时间特性

这部分是以 LAB 为溶剂的液闪的发光衰减时间测量结果。发光时间是闪烁体一个非常重要的参数，它不光在荧光产生的时候，决定每个光子的发射时间，更和光传播过程密切相关，如果一个光子在传播过程中被闪烁体中的某个分子吸收，那么这个光子重新被发射出来的概率和时间就由吸收它的分子的荧光量子效率和发光衰减时间决定。

测量闪烁体发光衰减时间的经典方法是时间关联的单光子计数方法 [64, 65, 66, 67, 68]。这个方法精度和信噪比都很高，并可以进行多组分发光衰减测试 [69]。实验利用一个同时放出两个 γ 的放射源，比如 ^{60}Co ，级联衰变产生的两个 γ 的时间间隔小于 1 ps ，或者 ^{22}Na ，正电子源，湮灭后同时放出两个 0.511 MeV 的 γ 。每个事例中相关的一个 γ 入射到一个快时间探测器(一般是一个快塑料闪烁体和一个快响应的光电倍增管耦合在一起组成)中作为激发闪烁体样品的时间零点，送到 TDC 的开始(Start)信号里。另外一个 γ 和待测闪烁体样品发生反应，产生闪烁光。一个对单光电子灵敏的光电倍增管(PMT)用来收集闪烁光。通过设置光电倍增管前的孔径大小和调节光电倍增管接收荧光的立体角，达到一个 γ 激发只接收到一个光子，最大可能输出一个单光电子信号，这个单光电子信号的时间分布，将随机的来自于闪烁体发光过程的时间内，某时刻接收到的几率正比于发光强度的衰减变化。这个单光电子的信号就作为 TDC 的结束(Stop)信号。这样，开始和结束信号的时间差就代表了闪烁体发光时间的概率密度分布。

3.1.1 紫外激发的实验装置

紫外激发时，用单光子方法测量液体闪烁体的发光时间的实验示意图如图 3.1。PDL 800-B 是专门的激光驱动器，可外接从紫外到红外的皮秒脉冲二极管激光头。激光的频率和发光强度都可以调节，当内置的频率不满足要求时候，该驱动器也可以使用外部触发来控制频率。同时它还有一个和激光同步的输出信号，可作为时间测量的 Start 信号。紫外激光头的发光光谱可以通过 Ocean Optics 生产的 QE65000 光谱仪测量得到的，如图 3.2 所示。它的峰位在 282 nm 附近，宽度 10 nm 。待测的液体闪烁体装在一个 $1\text{ cm} \times 1\text{ cm} \times 3\text{ cm}$ 的石英比色皿内。激光光子通过光纤送到石英比色

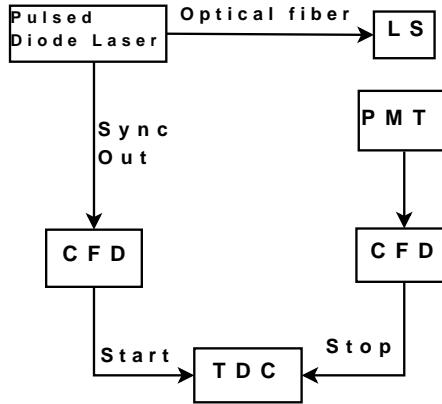


图 3.1: 紫外激发时, 单光子方法测量液体闪烁体发光时间的实验装置图。

皿外, 比色皿对 280 nm 的光子透过率达 90% 以上。大部分的紫外光子可以不被比色皿吸收而直接入射到液体闪烁体内, 闪烁体内的分子吸收紫外光子后, 电子将从基态向激发态跃迁, 退激时, 将会各向同性的发射荧光。一个对单光电子灵敏的光倍增管(XP 2020) 放置在与激光垂直的方向上测量闪烁体放出的荧光。通过调整激光的光强和 PMT 离石英比色皿的距离, 保证 PMT 测到的 95% 以上都是单光电子事例, 多光子事例可以忽略。每次把 PMT 的信号送到恒比定时甄别器(CFD)之前, 都要测量下 PMT 的电荷分布以确保是单光电子事例。测量方法如下: 激光的同步信号作为 ADC 的门信号, 对 PMT 的信号进行电荷测量, PMT 的 ADC 谱分布如图 3.3 所示, 第一个峰是台阶, 第二个峰是 PMT 的单光电子峰。可见双光电子和多光电子的事例可以忽略。激光同步输出的信号和 PMT 的信号分别经过 CFD 后送给 TDC(CEAN C414)的 Start 和 Stop。为了把 TDC 道数转成时间单位 ns, ORTEC 462 的 Time Calibrator 可以用来刻度 TDC。如图 3.4 是 TDC 的刻度结果, 每道是 49.9 ps。

为了获得除液闪样品以外的测试系统的时间响应, 我们可以将装液闪的比色皿移开, 同时把 PMT 放置在激光的正前方, 通过调整激光的光强使 PMT 测到的是单光电子事例, 这样得到的 TDC 分布就是仪器的时间响应, 如图 3.5。仪器响应的半高全宽(FWHM) 是 750 ps, 主要是 PMT 的单光电子渡越时间展宽和激光的时间晃动造成的。其中在 1550 道和 1900 道的小峰是由 PMT 的快后脉冲引入的。因为在同样的测试条件下, 提高 PMT 的高压, 发现这些小峰会向左移动, 离主峰的距离越来越近。

该实验装置的本底来源是 PMT 的暗噪声或者是液闪被周围环境或者宇宙线的辐射

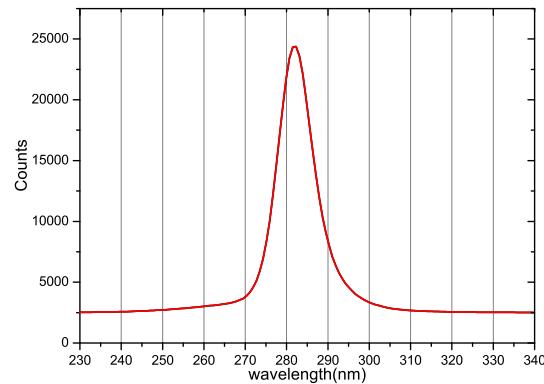


图 3.2: 入射到液体闪烁体中的紫外光的光谱分布

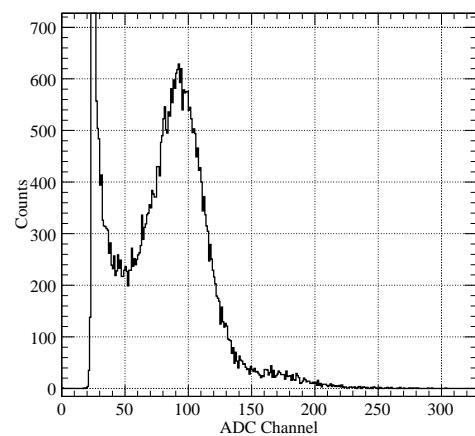


图 3.3: PMT 的电荷分布, 双光子和多光子事例都可以忽略。

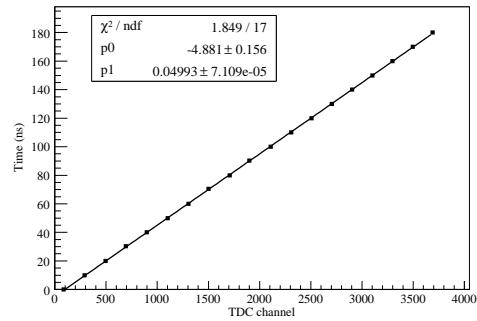


图 3.4: TDC 的刻度结果, 49.9 ps /channel。

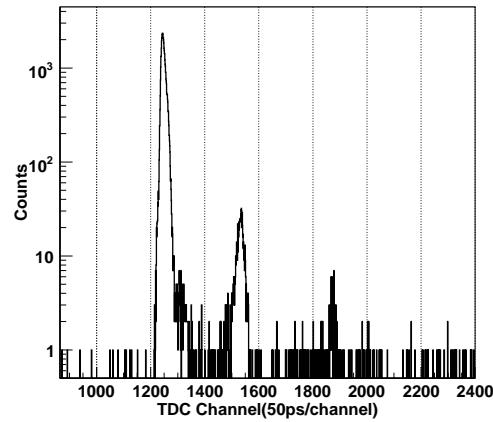


图 3.5: 仪器的时间响应, 半高全宽是 750 ps, 其中在 1550 道和 1900 道的小峰是由 PMT 的快后脉冲引入的。

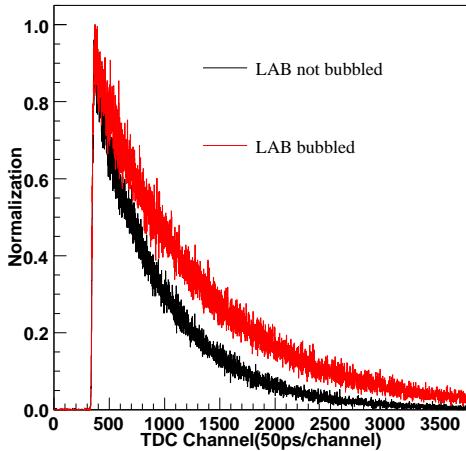


图 3.6: 氧气对 LAB 发光时间的淬灭效应。

击中后产生的闪烁光被 PMT 探测到后的 Stop 信号与激光 Start 信号的偶然符合。这种偶然符合形成的非关联本底事例率是: Start 路的事例率 f_1 , Stop 路的事例率 f_2 与 TDC 的量程 T 三者的乘积。这类本底在 TDC 谱上是均匀分布, 可以从下面的测量结果上看到。

3.1.2 LAB 的时间常数及氧气淬灭

第二章中我们讲到了氧气对有机分子的淬灭机制。这里我们来比较下 LAB 分子在有氧气存在情况下和充分通氮气时, 发光时间的差异。从图 3.6 中可以看到 LAB 的光脉冲形状发生了改变, 在通氮气情况下, 脉冲尾部的权重开始变大。

测量到的闪烁体的发光时间的概率密度函数 $I(t)$ 是闪烁体荧光光强的时间函数 $N(t)$ 和测试系统(仪器)的时间响应函数 $R(t)$ 的卷积 [70]。

$$I(t) = N(t) * R(t) \quad (3.1)$$

由于闪烁体的发光时间常数有快慢成分的差别, 可以用带权重的双指数函数来表示荧光光强的时间函数 $N(t)$, 有一点需要说明的是闪烁体的快成分才有意义, 慢成分通常比较复杂, 不能像快成分那样用一个单指数就可以很好的描述 [50]。因此本章所讲的闪

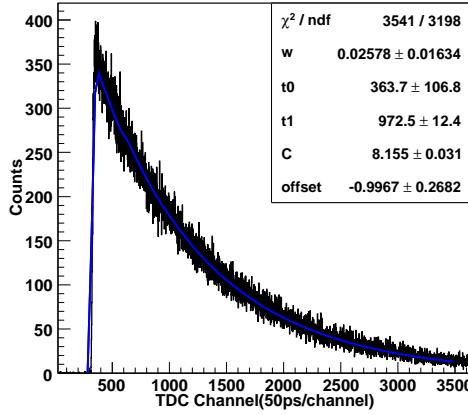


图 3.7: LAB 在通氮情况下的时间常数为 48.6 ns。

闪烁体的发光时间主要是指快成分的时间常数。函数 3.1 可以表示成:

$$I(t) = C \int_0^t R(t-t') \left(\frac{\omega}{\tau_0} e^{-\frac{t'}{\tau_0}} + \frac{1-\omega}{\tau_1} e^{-\frac{t'}{\tau_1}} \right) dt'. \quad (3.2)$$

当仪器的响应是高斯分布时, 函数 3.2 可以写成:

$$I(t) = \int_0^t \frac{C}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(t-T-t')^2}{2\sigma^2}} \left(\frac{\omega}{\tau_0} e^{-\frac{t'}{\tau_0}} + \frac{1-\omega}{\tau_1} e^{-\frac{t'}{\tau_1}} \right) dt'. \quad (3.3)$$

其中 C 是代表统计量的一个系数。 τ_0 和 τ_1 分别是闪烁体荧光快成分和慢成分的衰减时间常数; ω 是快成分的权重。仪器响应函数 $R(t)$ 经常被当做高斯函数来处理 [71, 65], 然而我们的仪器响应函数不是理想的高斯分布, 还有 PMT 后脉冲的影响, 如图 3.5 所示。因此我们用图 3.5 中的响应曲线来代表函数 3.2 中的 $R(t)$ 来拟合 LAB 的光脉冲形状。LAB 在充分通氮情况下的拟合参数如图 3.7 所示。时间常数是 48.6 ns, LAB 在氧气存在时的时间常数为 30 ns。正是由于 LAB 的发光时间很长, 才使得氧气分子有足够的时间和 LAB 分子发生相互作用, 使得荧光发生淬灭。

3.1.3 PPO 的时间常数

PPO 的三个样品, LAB+3 g/L PPO 通氮和不通氮各一个, LAB+15 g/L PPO 不通氮一个, 分别在上述一样的条件下测量, 它们的结果如图 3.8。从图中我们可以得知:

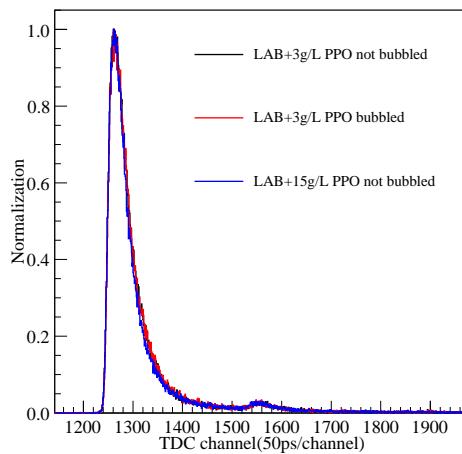


图 3.8: LAB+PPO 在紫外激发时的荧光衰减曲线。

1. 当 PPO 浓度达到 3 g/L 时, LAB 分子对激光光子(波长在270nm到300nm之间)的吸收可以忽略。换句话说, LAB 在该波段的衰减长度远大于 3g/L PPO 的衰减长度, 因为荧光衰减曲线在 PPO 为 3 g/L 和 15 g/L 时, 没有任何差异。
2. 由于不存在 LAB 和 PPO 之间的能量传递问题, 仅仅是 PPO 自身在吸收紫外光子, 然后放出荧光, 因此衰减曲线代表了 PPO 的本征发光时间。如果用函数 3.2 来拟合, 可以得到 PPO 的发光时间为 1.55 ns, 如图 3.9 所示。当仪器响应函数用高斯来描述时, PPO 的发光时间拟合结果为 1.69 ns, 同样也在图 3.9 中表示出来。
3. LAB+3 g/L PPO 在通氮和不通氮时, 衰减时间曲线没有差别。可见短的 PPO 的发光时间使得氧气和 PPO 分子相互作用的概率大大降低。因此氧气对短发光时间的有机分子的淬灭效应可以忽略。

3.1.4 bis-MSB 的时间常数及 PPO 到 bis-MSB 的能量传递

环己烷(Cyclohexane)对 280 nm 左右的光子基本是透明的, 含有 bis-MSB 的荧光衰减时间如图 3.10 的左图所示。bis-MSB 的本征发光时间可以从 Cyclohexane+bis-MSB 的衰减曲线上拟合得到。它的本征时间是 1.5 ns, 因此氧气对 bis-MSB 的淬灭也可以忽

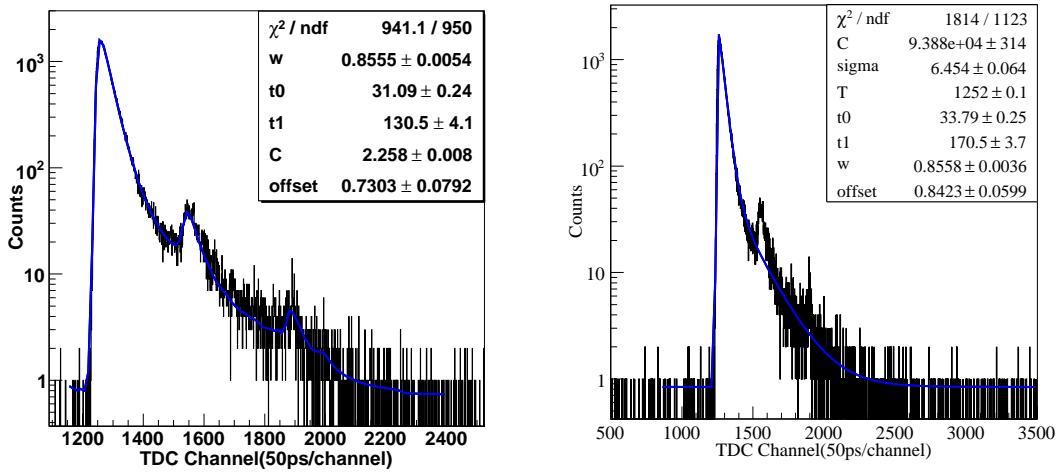


图 3.9: PPO 的荧光衰减时间拟合结果。(横轴单位及拟合结果中的参数 τ_0 , τ_1 的单位都是 TDC 道数。) 左图中的 $R(t)$ 是仪器响应函数, 右图中的 $R(t)$ 是高斯函数。左图的时间常数是 1.55 ns, 右图的时间常数是 1.69 ns。

略。

对于 LAB+3 g/L PPO+15 mg/L bis-MSB 的溶液来说, PPO 在 280 nm 处的摩尔吸光系数是 bis-MSB 的 3 倍, 浓度又是 bis-MSB 的 200 倍, 因此根据公式 2.7 可以知道, PPO 在 280 nm 处的吸收是 bis-MSB 的 600 倍, 因此 bis-MSB 对紫外光子的吸收和 PPO 比起来可忽略。那么进入液闪中的紫外光子会先被 PPO 吸收, 又由于 bis-MSB 浓度很低, PPO 到 bis-MSB 不满足非辐射传递能量的方式。因此, 被吸收的光子会按照 PPO 的荧光量子效率、本征发光时间和发射光谱释放出来, PPO 放出的荧光在传播过程中有一部分光子又会被 bis-MSB 的分子吸收重新释放出来。那么被 PMT 探测到的光子将取决于很多因素, 比如: PPO 发出的光子在液闪中的衰减长度, 比色皿的尺寸, bis-MSB 的吸收重发射几率, PMT 的量子效率等。因此我们可以用函数 3.4 来描述该溶液的光衰减曲线。其中 ω 代表了 PMT 探测的光子数中由 bis-MSB 放出的权重, τ_1 和 τ_2 分别表示 PPO 的快慢时间常数, ω_1 代表 PPO 发出的荧光中的快成分权重, τ_3 是 bis-MSB 的发光时间常数, $R(t)$ 是仪器的响应函数, 如图 3.5。拟合结果如图 3.10。PPO 的 τ_1 和 ω_1 的拟合值与 PPO 的本征发光时间拟合出来的结果(图 3.9)基本一

致。

$$I(x) = C \int_0^x \left[\int_0^t \omega \left(\frac{\omega_1}{\tau_1} e^{-\frac{t'}{\tau_1}} + \frac{1-\omega_1}{\tau_2} e^{-\frac{t'}{\tau_2}} \right) \frac{1}{\tau_3} e^{-\frac{t-t'}{\tau_3}} dt' \right. \\ \left. + (1-\omega) \left(\frac{\omega_1}{\tau_1} e^{-\frac{t}{\tau_1}} + \frac{1-\omega_1}{\tau_2} e^{-\frac{t}{\tau_2}} \right) \right] R(x-t) dt. \quad (3.4)$$

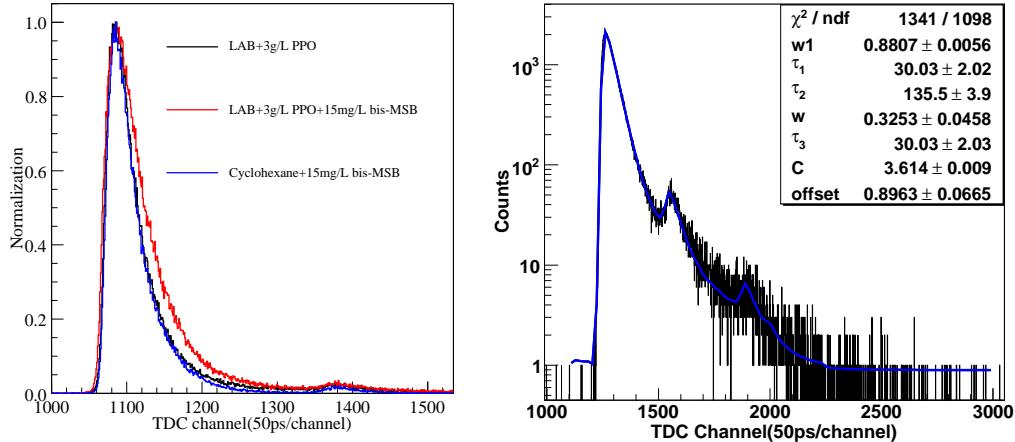


图 3.10: 含有 bis-MSB 的荧光衰减曲线和溶液(LAB +3 g/L PPO +15 mg/L bis-MSB)的时间拟合结果。(横轴单位及拟合结果中的参数 τ_0 , τ_1 , τ_2 的单位都是 TDC 道数。) 左图是含有 bis-MSB 的荧光衰减曲线, 右图是溶液(LAB+3 g/L PPO+15 mg/L bis-MSB)的衰减时间拟合结果。

3.1.5 电离激发及 LAB 到 PPO 的能量传递时间

为了研究 LAB 到 PPO 的能量传递过程, 我们采用了电离粒子来激发闪烁体发光。根据第二章电离激发的机制可以知道, 溶剂 LAB 分子由于含量远大于发光物质会被先激发或者电离, 激发能以非辐射的方式从 LAB 传递到 PPO。用一个快的 PMT 和比色皿紧密耦合在一起代替图 3.1 中的激光, 作为 TDC 的 Start 信号。当一个带电粒子在比色皿中的液闪中沉积能量并产生闪烁光时, 会有很多的光子击中在这个 PMT 的光阴极上, 产生光电信号。因此可以用来作为激发液闪发光的时间零点。

^{60}Co 或者 ^{137}Cs 可以用来作为激发液闪发光的电子源，因为它们放出的 γ 会和液闪发生康普顿散射，散射的电子损失能量，激发或者电离液闪发光。电离激发和紫外激发不一样，紫外激发的时候，本底只有非关联本底，但是电离激发的时候，本底既有关联本底，也有非关联本底。其中关联本底有：

1. 周围环境的中子或者宇宙线入射到液闪中产生的信号，会和用 γ 放射源的信号特征一样。这类本底的降低，只能通过提高放射源活度或者减小周围环境的辐射来压低。
2. 切伦科夫光本底。 γ 入射到液闪内发生康普顿散射，散射的电子在液闪内产生闪烁光，被快 PMT 探测到，形成 Start 信号，被散射的 γ 有一定的概率击中测单光电子的 PMT 玻璃，这样它就会和 PMT 的玻璃发生光电效应或者康普顿散射产生光电子或者散射的电子。如果产生的次级电子的能量大于 200 keV ($n = 1.458$, $n\beta > 1$)，则会产生切伦科夫光。一般切伦科夫光的光子数很小，可以认为大部分测到的都是单光电子事例，这样，Start 和 Stop 信号之间就成为关联的本底。由于切伦科夫光发光很快，可以认为和液闪的闪烁光同时产生。所以就会在液闪发光时间的主峰左侧形成一个小峰。这类本底的降低可以通过提高 Start 路的信号阈值来减少散射到测单光电子 PMT 玻璃上的 γ 能量，使其达不到切伦科夫光的阈值。也可以通过把测单光子的 PMT 尽量远离装液闪的比色皿，以减少 PMT 玻璃对散射 γ 的接收立体角。

非关联本底主要是：Start 信号来自放射源产生的闪烁光，Stop 信号来自测单光电子 PMT 的暗噪音。其他非关联本底有：Start 信号来快 PMT 的暗噪音，Stop 信号来自测单光电子 PMT 的暗噪音；Start 或 Stop 信号一个来自 PMT 的暗噪音，一个来自周围辐射产生的闪烁光信号。

知道了本底的来源，我们在测量过程中就会尽量减少本底，达到最好的信噪比。图 3.11 是不同浓度的 PPO 溶解在 LAB 中，且在 ^{60}Co 的辐射下得到的荧光衰减曲线。我们可以用函数 3.5 来拟合荧光衰减曲线。

$$I(x) = C \int_0^x \left[\int_0^t \left(\frac{\omega_1}{\tau_1} e^{-\frac{t'}{\tau_1}} + \frac{1-\omega_1}{\tau_2} e^{-\frac{t'}{\tau_2}} \right) \frac{1}{\tau_3} e^{-\frac{t-t'}{\tau_3}} dt' \right] R(x-t) dt. \quad (3.5)$$

其中 τ_1 和 τ_2 分别表示 LAB 到 PPO 能量传递的快慢时间常数， ω_1 代表快传递时间的权重， τ_3 是 PPO 的发光时间常数，即是 PPO 在 S_{10} 态的寿命。该拟合函数的选取可

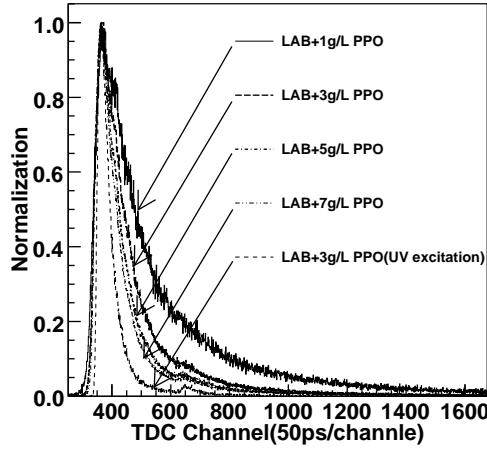
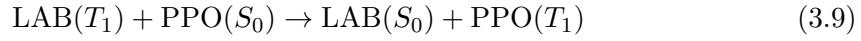
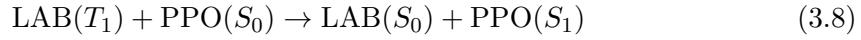
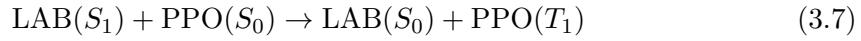
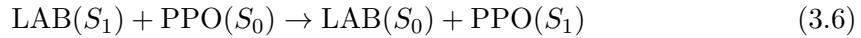


图 3.11: 不同浓度的 PPO 溶解在 LAB 中的荧光衰减曲线与 LAB+3 g/L PPO 紫外激发的比较(在 ^{60}Co 的辐射下)。

以从电子跃迁时的选择定则来理解。电离激发的时候，大量的 LAB 分子处于激发单重态，还有一部分会由于离子的重组合而处于激发三重态，当处于激发态的 LAB 分子和处于基态的 PPO 分子相距于某一距离时，共振能量从 LAB 的电子激发单态 LAB(S_1)或者激发三重态 LAB(T_1)向 PPO 的激发单态 PPO(S_1)或者三重态 PPO(T_1)转移。一共有以下四种转移方式：



式子 3.6 中 LAB 从激发单重态向基态和 PPO 从基态向激发单重态各自的跃迁概率都比较高，因此形成观测荧光中的快成分。式子 3.7 和式子 3.9 中 PPO 发生单态到三

重态的跃迁是禁戒的，因此跃迁概率低。式子 3.8 中 LAB 的跃迁是自旋禁戒的，跃迁概率低，但是 LAB 激发三重态的长寿命可以弥补这个缺陷，虽然发生的慢，但可以有效发生，形成荧光的慢成分。能量传递后的结果，就会使很多的 PPO 分子处于激发单重态，处于激发单重态的 PPO 分子，以很大的概率从激发单态向基态跃迁，这个过程可以用单指数来表示，也就是电子处于 PPO 分子 S_{10} 态的寿命，以很小的概率通过系间窜跃到 T_1 态，通过慢成分来发光。图 3.12 显示了 PPO 在 1g/L 和 3g/L 时的拟合结果。表 3.1 列出了 PPO 在不同浓度下从 LAB 到 PPO 的快时间传递常数 τ_1 (ns) 及其权重 ω_1 ，PPO 的本征发光时间 τ_3 (ns)。

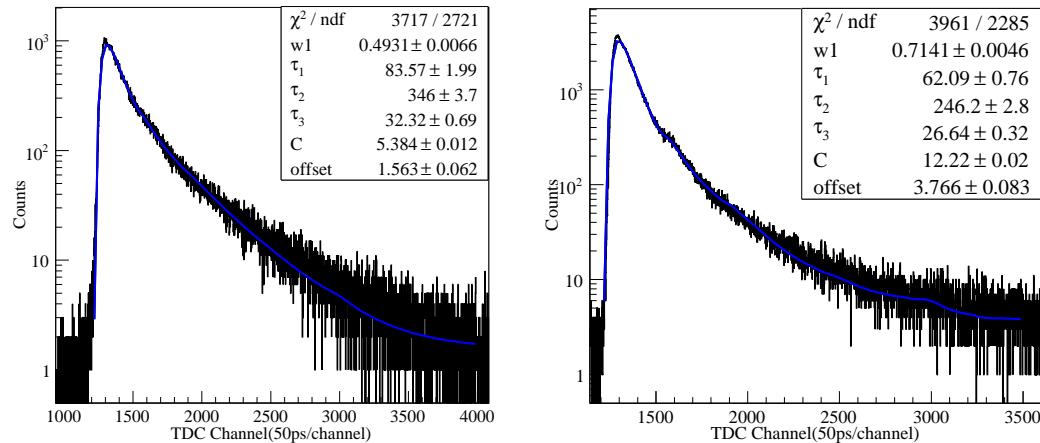


图 3.12: 左图是 LAB+1 g/L PPO 的拟合结果，右图是 LAB+3 g/L PPO 的拟合结果。

从表 3.1 可以看出，随着 PPO 浓度的增加，LAB 到 PPO 的能量传递时间越来越短。当 PPO 浓度达到一定水平时，PPO 的增加只能微小地减少能量传递时间。对大亚湾实验的模拟程序来说，电离激发的时候，快成分的时间常数可以从表 3.1 中的 LAB + 3g/L PPO 中读出，大小为 $3.1+1.33=4.43$ ns，权重为 71.4%，慢成分大小是 136.4 ns。发光光谱是 PPO 的发射光谱。

从上面的测量结果来看，我们用三种方法得到的 PPO 的本征发光时间都在 1.5 ns 左右，说明我们的模型可以正确解释溶剂到发光物质，发光物质到波长位移剂之间的能量传递过程。

表 3.1: LAB 到 PPO 的快时间传递常数 τ_1 (ns) 及其权重 ω_1 , PPO 的本征发光时间 τ_3 (ns)。

Sample	τ_1 (ns)	ω_1	τ_3 (ns)
LAB + 1g/L PPO	4.18	49.3%	1.6
LAB + 3g/L PPO	3.1	71.4%	1.33
LAB + 5g/L PPO	2.33	76.2%	1.42
LAB + 7g/L PPO	2.08	77.6%	1.3

3.2 波形分辨(Pulse Shape Discrimination)

有时候我们对粒子的鉴别，需要决定它们的质量和电荷，有时鉴别粒子，只是从几种不同的粒子中鉴别出所需要的粒子类型，波形分辨主要用于后者。不同类型的粒子入射到探测器中，探测器输出的脉冲波形不同。在气体电离室和正比计数器中，脉冲的上升时间与粒子在其中的射程有关；在闪烁探测器中，荧光脉冲的快慢成分比例与入射粒子的电离密度有关；在半导体探测器中，所产生的脉冲上升时间与粒子在耗尽层内的行为有关。这里，我们主要介绍液体闪烁体探测器中的波形分辨。

3.2.1 波形分辨的原理和方法

在液体闪烁体中，带电粒子的电离能损越大，激发液闪时，产生的慢成分的荧光权重越大。利用闪烁体的这一特性，我们可以进行粒子鉴别。为了简单，我们通常可以用指数衰减的两个快、慢成分来描述闪烁体的发光持续过程。忽略发光上升过程后，闪烁体的发光光子数随时间的变化可以表示为 [69]:

$$N(t) \approx \frac{N_f(\rho)}{\tau_f} e^{-\frac{t}{\tau_f}} + \frac{N_s(\rho)}{\tau_s} e^{-\frac{t}{\tau_s}}. \quad (3.10)$$

式中 $N_f(\rho)$, $N_s(\rho)$ 分别表示具有某种电离密度 ρ 的粒子一次激发闪烁体发光中快、慢成分所包含的光子数； τ_f , τ_s 分别为快、慢成分的发光衰减时间。

闪烁体的光子被 PMT 收集，当 PMT 工作在线性范围内时，从它的打拿级引出的电流脉冲形状，是反映液闪发射的光脉冲形状的。一次闪烁脉冲在打拿级上形成的电流

脉冲可以表示为：

$$I(t) \approx I_f(\rho)e^{-\frac{t}{\tau_f}} + I_s(\rho)e^{-\frac{t}{\tau_s}}. \quad (3.11)$$

$I_f(\rho)$, $I_s(\rho)$ 分别表示电流脉冲中快慢成分的最大值。因此，与 PMT 相连的回路上的电荷脉冲和电压脉冲的快、慢成分也相对应于荧光的快、慢成分，它们也和粒子种类有关。所以利用电流脉冲、电压脉冲或电荷脉冲，都可以进行波形分辨。

常用的波形分辨方法有积分电荷比较法 [67]、双微分过零定时法 [72]、电压上升时间法、Flash ADC 方法 [73]，还有我们下面采用的单光子方法。

3.2.2 (n, γ) 分辨

大亚湾液闪对快中子的时间响应是在中国原子能研究院，利用 $D(T, n)\alpha$ 反应的脉冲中子源测量的。250 keV 的氘束流打在 T 靶上，产生的中子能量几乎是单能的，14 MeV。脉冲中子源的频率是 1.5 MHz，脉冲宽度 2 ns。液体闪烁体位于离 T 靶 3.7 m 的地方，方向与入射氘束流成 45 度的方向上。距离的选择，除了考虑事例率外，还考虑了 3.7 m 的飞行距离里中子和 γ 的飞行时间差异是否在飞行时间谱上可以鉴别出来。由于中子辐射经常伴随 γ ，因此通过飞行时间可以扣除 γ 的影响。实验装置如图 3.13 所示。

大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)装在一个圆柱形的有机玻璃瓶内，高 4 cm，直径 5 cm。作为时间零点的 PMT1 的信号在经过 CFD 后被分成两路。一路做 TAC 的 Start 信号，另外该 TAC 的 Stop 输入来自脉冲中子源的拾起信号 (pick up)，这种 Start 和 Stop 反向的设置方式是为了防止 pick up 信号的过高事例率而 Stop 端无信号读出而造成的死时间的增加。TAC 的输出被送到一个寻峰 ADC，从而得到粒子的飞行时间谱。中子和 γ 的飞行时间谱如图 3.14。第一个高峰是中子的飞行时间。第二个小峰在 2200 道附近是 γ 的飞行时间造成的。另外一路信号和 PMT2 的信号的时间差异通过另外一个 TAC 和 ADC 得到。它们就是液闪的荧光衰减曲线。PMT2 的电荷量也被记录下来用于挑选单光子事例如图 3.14。粒子飞行时间，液闪的荧光衰减曲线，PMT2 的电荷被同时记录下来作为一个事例。当 QADC 在工作时候，会有一路信号从 QADC 的 Busy 端输入到门产生器的 veto 端，给门产生器提供 18 us 的死时间。换句话说，当 QADC 在进行模数转换的时候，门产生器即使有一个信号来到，门产生器也不会处理该信号，避免新事例的到来影响 QADC 正常的模数转换。由 SPARROW 公

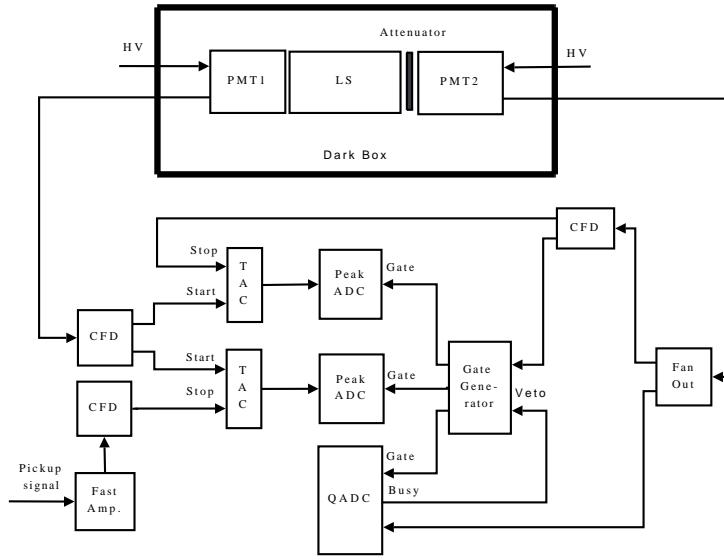


图 3.13: 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对快中子的时间响应的实验装置图

司生产的 Kmax CAMAC 系统用来取数。对于测荧光衰减时间的那路 TAC 和 ADC 的刻度结果为: 49.7 ps/channel。

入射到液闪中的 14 MeV 的快中子将会和液闪中的原子核如碳、氢、氧等发生弹性或者非弹性碰撞。反冲的原子核将会电离和激发液闪发光, 由于中子和 H 核弹性碰撞的截面最大, 因此大部分的闪烁光都是反冲质子电离和激发产生的。快中子和 γ 对大亚湾液闪的时间响应如图 3.15 所示。图中液闪对 γ 的时间响应曲线是通过 ^{60}Co 的辐射得到的。从图中我们可以看到大亚湾液闪在 5 cm 尺寸的液闪中具有 (n, γ) 分辨能力。

3.2.3 (α, γ) 分辨

电子对液闪的激发可以使用 ^{60}Co 的辐射得到, ^{239}Pu 释放出来的 5.15 MeV 的 α 也可以用来激发液闪发光。在对大亚湾液闪充分地通氮气后, 我们分别测量了液闪对 α 和 γ 的荧光衰减曲线如图 3.16。大亚湾液闪同样具有 (α, γ) 分辨能力。

对于大体积的液体闪烁体, 波形分辨能力还受到其他物理过程的影响, 诸如: 吸收重发射, 瑞利散射, 电子学的展宽。对于大亚湾中心探测器而言, 还会受到上下反射板的影响。

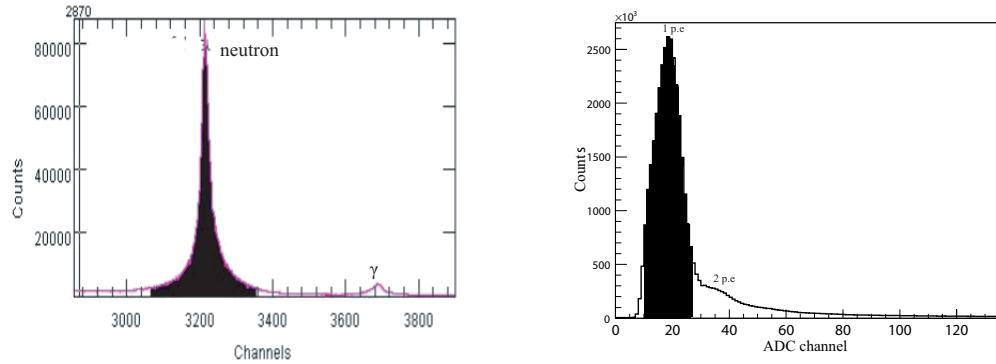


图 3.14: 左图是中子和 γ 的飞行时间谱, 右图是 PMT2 的电荷分布。

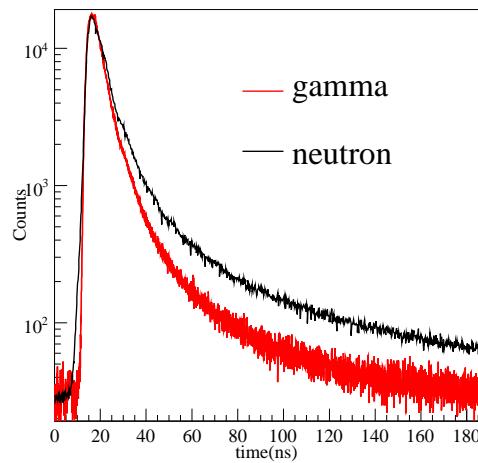


图 3.15: 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对快中子和 γ 的时间响应曲线。

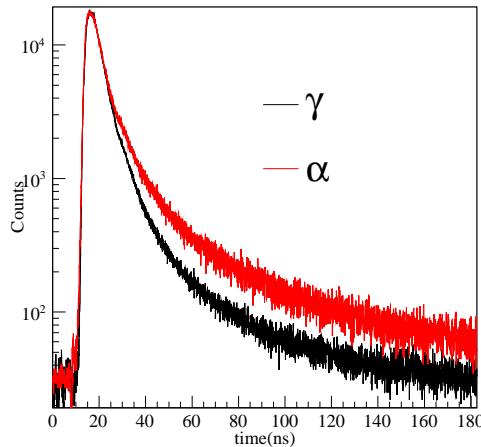


图 3.16: 大亚湾液闪(LAB+3 g/L PPO + 15 mg/L bis-MSB)对 α 和 γ 的时间响应曲线。

3.3 波长相关的物理性质测量

荧光光子的产生和传播过程中很多性质与光子的波长有关。比如衰减长度, 发射光谱, 荧光量子效率, 反射率, 折射率等。这部分我们主要介绍液体闪烁体的吸收, 发射光谱及荧光量子效率的测量。

3.3.1 液体闪烁体的吸收

在第二章的 2.2.1 部分, 我们已经提到光的吸收可以用衰减长度这个物理量来描述。溶液的衰减长度 $L(\lambda)$ 定义是光强衰减到初始的 $1/e$ 时所通过的长度, 可以用下式来表示:

$$I(\lambda, x) = I_0(\lambda) e^{-x/L(\lambda)} \quad (3.12)$$

其中 $I_0(\lambda)$ 是原始光强, $I(\lambda, x)$ 是经过光程 x 后的光强。吸收的测量我们采用了双光束的紫外可见分光光度计 (岛津UV-2550), 它的测量原理如图 3.17。测量各个波长下待测样品和参比样品的光强度比值, 比值的测量是在同样的光学仪器和条件下进行的, 因此, 仪器的非理想化特征被抵消了。

为了研究大亚湾液闪中, 溶剂 LAB, 发光物质 3 g/L PPO, 波长位移剂 15 mg/L

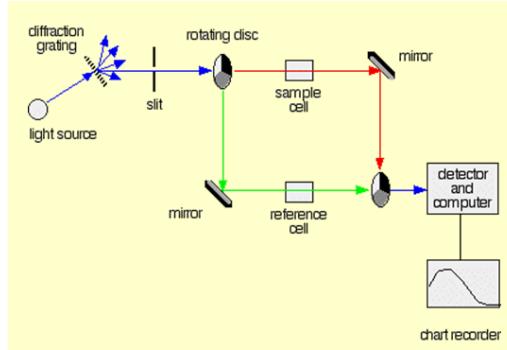


图 3.17: 双光束紫外可见分光光度计的工作原理。

bis-MSB 各自的吸收能力, 我们准备了4个样品, 它们的编号和组成成分见表格 3.2 所示。将它们分别放置于光程为 2 mm 的比色皿中, 并将比色皿放置于双光束光度计的样品室内, 对各个待测样品在不同波长下的透过率进行了测量。通过公式 3.12 可以得到待测样品在不同波长下的衰减长度, 结果见图 3.18。

表 3.2: 待测样品的编号和组成成分。

样品编号	溶剂	PPO	bis-MSB
1	LAB	0	0
2	LAB	3 g/L	0
3	LAB	0	15 mg/L
4	LAB	3 g/L	15 mg/L

为了避免长波段透过率为 100%, 短波段透过率为 0, 使得到的衰减长度的误差太大, 图 3.18 中只列出各样品在透过率大于 0, 小于 1 时的衰减长度。从图中我们可以看出:

- (a) 当入射波长大于 340 nm 时, 2 mm 厚的 LAB 对入射光子基本不吸收。衰减长度已经远大于样品尺寸。
- (b) 在 LAB 中加入 3 g/L PPO 后, 样品对 300 nm–349 nm 波段的光子吸收变的很强。即使与第 3 个样品 (LAB+15 mg/L bis-MSB) 相比, 我们也可以看出 3 g/L PPO 在

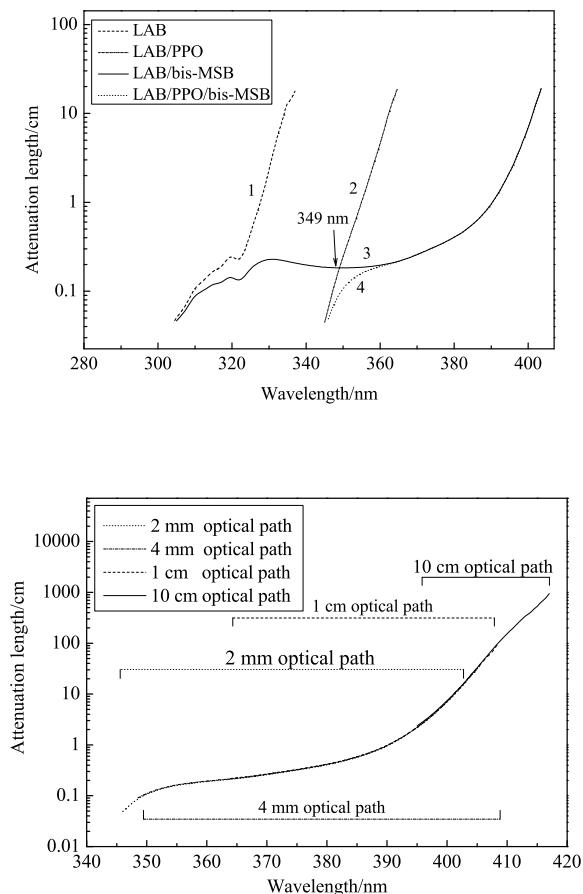


图 3.18: 上图是各编号的样品对应的衰减长度, 下图是大亚湾液闪用不同光程的比色皿测到的衰减长度。

300 nm–349 nm 的吸收能力要好于 LAB 和 15 mg/L bis-MSB。

(c) 当样品中包含 15 mg/L bis-MSB, 比如第 3 和第 4 个样品, 并且入射波长大于 340 nm 时, 样品的吸收也会突然变强, 当波长大于 360 nm 时, 第 3 和第 4 个样品的衰减曲线基本重合, 说明在该波段 15 mg/L bis-MSB 的吸收占主导地位。当波长在 349 nm 和 360 nm 之间时, 3 g/L PPO 和 15 mg/L bis-MSB 都有贡献。

(d) 分别用光程为 2 mm, 4 mm, 1 cm, 10 cm 的比色皿测量了大亚湾液闪 (样品 4) 的衰减长度。用不同光程得到的液闪衰减长度都重合, 互相验证了测量的准确性。对于波长大于 420 nm 的光子的衰减长度, 需要用更长的光程才能观测到光的吸收。测量方法和结果在文献 [74] 中进行了详细的介绍。

3.3.2 液体闪烁体的发射光谱

发光物质的分子在吸收了入射光子后, 电子将从基态向激发态跃迁, 退激的过程将会发出某一波段的闪烁光。我们知道发光物质的发射光谱与物质的分子结构有很大关系, 不同物质的发射谱带有很大差异。发光物质的发射光谱可以用荧光光谱仪进行测量。所有样品的发射光谱都是在北京师范大学分析测试中心的 Fluorolog Tau-3 荧光光谱仪上完成的。该光谱仪的光路图如图 3.19 所示。光源的光经过由光栅组成的单色仪后, 成为一束单束光, 单色光的波长可以由计算机通过光栅的偏转方向来改变 [75], 在样品的前方和直角方向各有一个凹面镜用来收集样品放出的荧光。图中样品室右上方的黑色粗线是可以旋转的反射镜, 通过调整反射镜的角度可以选择前向或者直角方向过来的荧光进入后面的发射单色仪, 从而被 PMT 探测到。在前向测量的时候, 入射光与接收荧光的凹面镜的夹角约为 22 度, 溶液的自吸收相对直角测量的时候小。因此, 测量过程中都是采用前向测量的方式。装液闪的比色皿宽度 1 cm, 光程厚度为 0.5 cm, 高度为 3 cm。

环己烷对 200 nm 以上的光子基本是透明的, 因此把其他发光物质溶入环己烷中可以得到该发光物质的发光光谱。图 3.20 中的左图表示少量的 LAB 溶解在环己烷 (Cyclohexane) 中的吸收和发射光谱, 及纯 LAB 分子的吸收曲线。右图中的样品 1 表示纯 LAB 分子的发射光谱, 可见它在短波段的自吸收很严重。样品 2, 3, 4 分别表示少量的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 3 g/L 的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 以及将大亚湾液闪(LAB +3 g/L PPO +15 mg/L bis-MSB)涂在很薄的石英玻璃片上测到

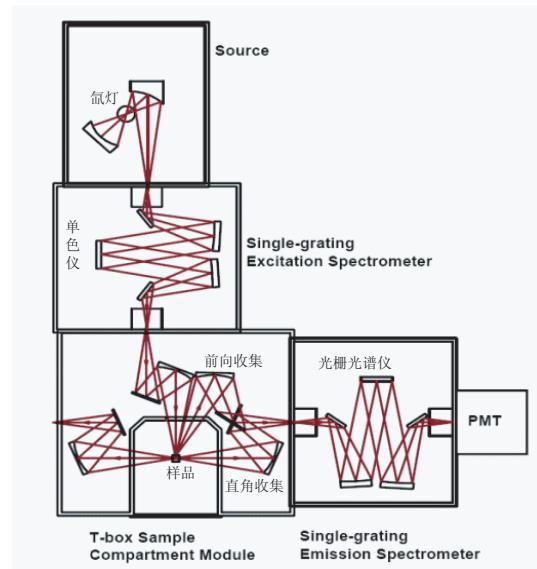


图 3.19: Fluorolog Tau-3 荧光光谱仪的光路图。

的发射光谱。这三个样品的发射光谱曲线基本是重合的，说明 3 g/L PPO 在前向测量时，自吸收可忽略不计。另外，从薄比色皿片的测量结果也可看出 3 g/L PPO 在 310 nm 处的吸收远大于 LAB 和 15 mg/L bis-MSB。仅是 PPO 在吸收入射的 310 nm 的光子，然后放出荧光的过程，不存在 PPO 和 bis-MSB 之间的能量传递过程。样品 5 表示把少量的 bis-MSB 溶解在环己烷中测到的发射光谱。右图中测量的 5 个样品都在发射光谱最大值处进行了归一。

3.3.3 荧光量子效率

发光物质的荧光量子效率又被称为吸收重发射几率，它代表荧光物质发射光子数与吸收光子数的比值。闪烁光子在传播过程中有吸收重发射现象，切伦科夫光短波段的光子也会被液闪中的某些成分吸收而有一定的概率发射出来，所以吸收重发射过程对液闪的能量响应有重要影响。这里，我们采用了简单可靠的相对测量发光物质 PPO 和 bis-MSB 的荧光量子效率的方法。该方法需要使用一个已知量子效率的标准样品，测量它的吸收和荧光光强，并与待测样品的吸收和荧光光强进行比较，从而得到待测样品

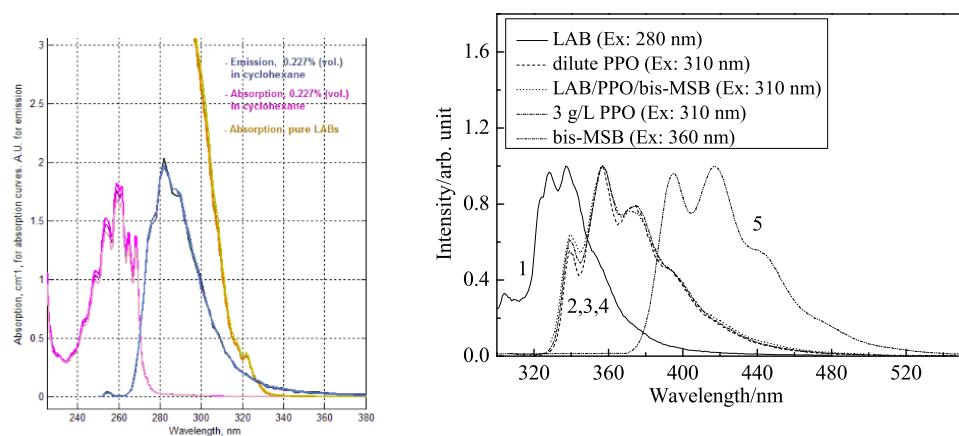


图 3.20: 左图表示少量的 LAB 溶解在环己烷中的吸收和发射光谱, 及纯 LAB 分子的吸收曲线, 右图样品 1 表示纯 LAB 分子的发射光谱, 样品 2, 3, 4 分别表示少量的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 3 g/L 的 PPO 溶解在环己烷中的发射光谱; 以及将大亚湾液闪(LAB +3 g/L PPO +15 mg/L bis-MSB) 涂在很薄的石英玻璃片上测到的发射光谱, 样品 5 表示把少量的 bis-MSB 溶解在环己烷中测到的发射光谱。

的荧光量子效率。待测样品的荧光量子效率计算公式为 [76]:

$$\Phi_x = \Phi_r \frac{B_r}{B_x} \frac{\int s_x(\lambda) d\lambda}{\int s_r(\lambda) d\lambda} \frac{n_x^2}{n_r^2}, \quad (3.13)$$

其中下标 r 和 x 分别表示荧光量子效率已知的标准样品和待测样品, Φ 是量子效率, $s(\lambda)$ 是荧光的发射光谱, n 是样品的折射率, $(n_x/n_r)^2$ 项是折射率的修正(参见文献 [77]), B 是入射光被样品吸收的比例, 它可以由样品的透过率 T 计算得到,

$$B = 1 - T, \quad (3.14)$$

透过率可以使用双光束的紫外分光光度计测量得到。

用相对测量的方法时, 一定要注意待测样品和标准样品的发光中心的一致性。图 3.21 是把尺寸为 $1cm \times 2mm$ 的比色皿放在样品室正中间和把比色皿往入射单色仪方向移动 1 mm 时测到的发射光谱光强度的比较。测量样品是 LAB + 3 g/L PPO, 所有其他测量条件保持一样, 包括入射光波长都是 300 nm, 出射狭缝宽度, 前向测量等。从前面的吸收测量可知, 3 g/L PPO 对 300 nm 的光子吸收很强, 当入射光子一进入比色皿, 就会很快被 PPO 吸收。相当于吸收和荧光发射点都在比色皿的内表面处。因此可以认为比色皿移动 1 mm 后, 发光点变化了 1 mm。而 PPO 发出的荧光需要经过前向位置的凹面镜进行收集, 收集的荧光通过反射镜后汇聚到发射单色仪的狭缝处, 被光栅分光后从而被 PMT 探测到。当发光点的位置偏移 1 mm 后, 聚集到发射单色仪狭缝处的光斑中心也会发生 1 mm 的偏移, 导致进入发射单色仪的光强发生了约 3 倍的变化如图 3.21。图 3.22 正是入射到狭缝处的光斑位置的变化。假设发光点对应的光斑比狭缝小, 且中间光强强, 周围光强弱。即使样品的吸收和发射完全一样, 如果光斑的中心发生了偏移, 进入后面单色仪的光子数就会减少很多。从而影响待测样品的光强变化, 使得待测样品的荧光量子效率带来很大的偏差。

上面是对于吸收很强的溶液, 吸收和发光的位置都可以做一个点。当待测样品对入射光子吸收不是很强的时候, 而且还有光子透过待测溶液时, 不同的溶液, 透射率或者吸收百分比不同, 那么吸收的平均位置 \bar{x} 就会不同。 \bar{x} 可以用公式 3.15 来表示。其中 l 是溶液的厚度, Λ 是入射光子在溶液中的衰减长度, 可由溶液的吸收百分比来确定。如果待测溶液和标准溶液在比色皿中的吸收百分比不同, 那么吸收的平均位置 \bar{x} 或者荧光发射的平均位置就会不同, 在狭缝处的光斑中心也会不同。因此, 当二者吸收的

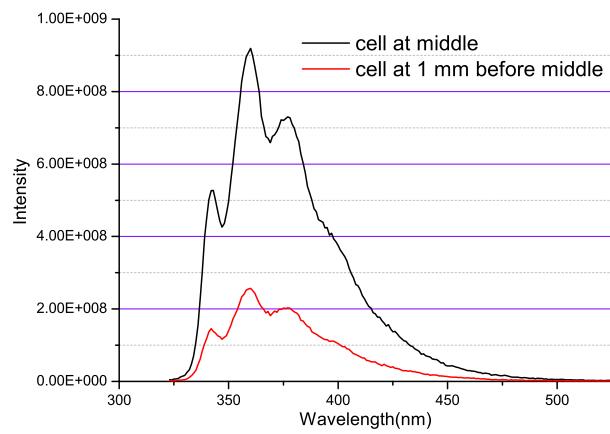


图 3.21: 比色皿放在样品室正中间和把比色皿往入射单色仪方向移动 1 mm 时测到的发射光谱光强度的比较。

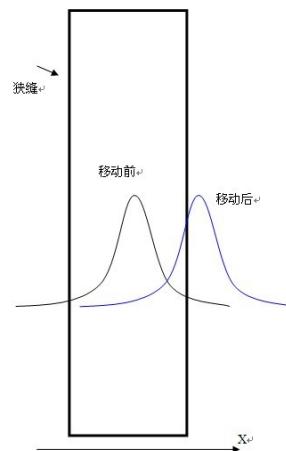


图 3.22: 入射到狭缝处光斑中心随荧光发射点的移动。

平均位置变化不大时，光强度的比值才是可信的。

$$\bar{x} = \frac{\int_0^l x \exp(-x/\Lambda) dx}{\int_0^l \exp(-x/\Lambda) dx} \quad (3.15)$$

在荧光量子效率的相对测量中，选择一个可靠的标准样品是至关重要的。硫酸奎宁的 0.1 mol/L 硫酸溶液在 200 nm–390 nm 的范围内，荧光量子效率与波长无关 [78]，大小都为 0.55。硫酸奎宁对氧气的淬灭不敏感，发射谱与吸收谱重叠也很少，是一种理想的标准样品。另外还准备了一个生物碱(harmane)的标准样品，溶于 0.1 mol/L 硫酸中，在 330 nm–360 nm 波长范围内，harmane 的平均荧光量子效率是 0.83 [79]。它可以与硫酸奎宁溶液相互检验，验证系统的稳定和可靠性。

从前面测量 LAB + 3 g/L PPO 的发光时间和发射光谱，和稀浓度的 PPO 相比，基本没有任何变化，因此可以认为 3 g/L PPO 溶解在 LAB 中并没有形成二聚体。因此 3 g/L PPO 的荧光量子效率与稀浓度的 PPO (溶解在环己烷中)测到的荧光量子效率是一样的。配置几种不同浓度的 PPO，溶解在环己烷中，使其在 310 nm–350 nm 之间的吸收均小于 0.5。同时，配置几种不同浓度的 bis-MSB，溶解在 LAB 中，使其在 360 nm 以上的吸收也小于 0.5。它们的吸收与标准溶液差别不大，吸收的平均位置可以用公式 3.15 计算出来，差别很小。所有的样品都通氮除氧，并盛放在 2 mm 光程的比色皿中。

在使用 Fluorolog-Tau-3 的荧光光谱仪做测量时，我们做了入射光强随时间变化的修正，入射光栅随波长变化的修正，发射光栅随波长变化的修正，PMT 对不同波长响应的修正，这些修正都可以通过光谱仪得到。做完修正后，得到的两个标准样品在不同波长下单位吸收发射荧光的光强分布如图 3.23 所示。硫酸奎宁与 harmane 单位吸收的荧光光强分别为 2.44×10^{10} 与 3.83×10^{10} ，而它们均是溶解在 0.1 mol/L H_2SO_4 溶液中，因此溶液的折射率可认为相等。由公式 3.13 可知它们荧光量子效率的比值为 1.56。文献上记录的二者的量子效率比为 0.83/0.55(1.51)，两者相差 3%。说明实验仪器和方案都是可信的。

图 3.24 中表示了 PPO 与 bis-MSB 的溶液在不同吸收时的荧光光强。测量时使用了多个激发波长，PPO 的激发波长在 300 nm–340 nm 之间；bis-MSB 的激发波长在 360 nm–380 nm 之间，横坐标指的是溶液吸收百分比。拟合直线的斜率代表了发光物质单位吸收放出的荧光光强。考虑荧光光子在不同溶液中的折射率影响 [75]，可以得到 PPO 的荧光量子效率为 0.77。bis-MSB 的荧光量子效率为 0.96。

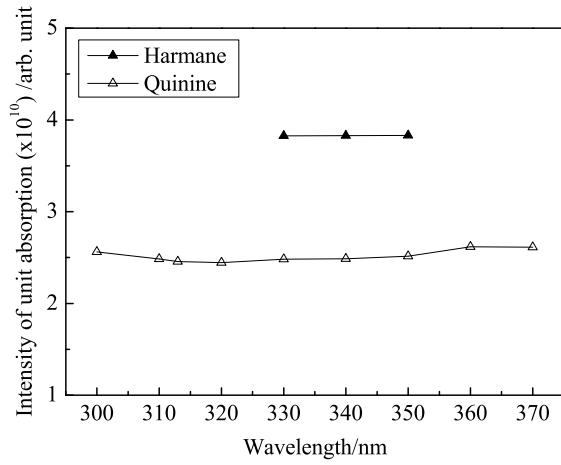


图 3.23: 硫酸奎宁与 harmane 单位吸收的荧光光强(即 $\int s(\lambda)d\lambda/B$)随入射波长的变化。单位吸收的荧光光强正比于其量子效率。测量发射光谱是使用前向测量的方式。

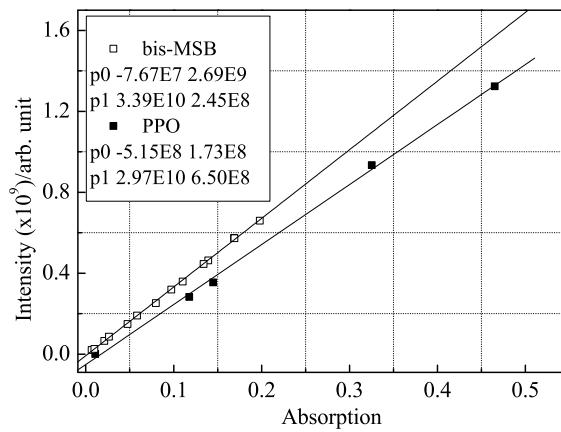


图 3.24: PPO 与 bis-MSB 的溶液在不同吸收时的荧光光强。测量时使用了多个激发波长, PPO 的激发波长在 300 nm-340 nm 之间; bis-MSB 的激发波长在 360 nm-380 nm 之间。横坐标指的是溶液吸收百分比。

3.4 大亚湾液闪的淬灭效应

3.4.1 温度淬灭

为了研究大亚湾液闪在不同温度下的光产额差异，我们采用了如图 3.25 中的光产额测试系统。液闪(LAB +3 g/L PPO +15 mg/L bis-MSB)装在直径 5 cm，高 2 cm 的有机玻璃容器内，有机玻璃容器外包 ESR 反射膜以提高光收集效率，并与 2 英寸的 PMT 用硅油耦合在一起，放置在一个低温交变试验箱中，该试验箱可提供稳定的温度，范围在-77°C 和 150°C 之间可调。为了监控测试系统在不同温度下的稳定性，我们用光纤把激光器 PDL800-B 的 404nm 的光子送入到液闪正上方，2 cm 厚的液闪对 404 nm 的光子的吸收可以忽略。用脉冲产生器调节入射激光的频率，使测到的激光的能谱峰位高度与 ^{137}Cs 的康普顿坪高度是可比的，通过激光光强的调节，使激光能谱的峰位位于 ^{137}Cs 的 compton 边沿的右边，在每一个温度点时，保持激光光强和频率不变，以此来监控系统稳定性。如图 3.25 所示，是在同一温度、同样测试时间和后端电子学不变的情况下得到的激光的能谱和 ^{137}Cs 的能谱。

从 30°C 到-70°C，我们每隔 10°C 时，测试了液闪对 ^{137}Cs 的沉积能量响应和激光能谱，高斯拟合激光的峰位，然后减去对应温度下的台阶的峰位，并规定 30°C 时候，激光峰位为 1，可以得到不同温度下系统的稳定性，如图 3.26 左图所示。可见系统在不同温度下基本是稳定的，晃动较小。右图是有无修正系统稳定性得到的不同温度下液闪光产额的相对值。可见随着液闪所处的周围环境的温度降低，液闪光产额也逐渐变高。由温度淬灭的机制可知，温度同样会影响闪烁体的发光时间，荧光量子效率。因此以后大亚湾实验在运行过程中，为了保持每个中心探测器的全同性，各个实验厅的温度最好保持一致。

3.4.2 氧气淬灭

从 3.1 节的测量结果，我们知道 PPO 和 bis-MSB 之间是通过辐射方式传递能量的，而且 bis-MSB 的发光时间(1.5 ns)很短，不受氧气淬灭的影响。LAB 通过非辐射方式把能量传递给 PPO，处于激发单态的 PPO 通过释放荧光光子回到基态，PPO 的发光时间(1.55 ns)或者处于激发态的寿命也很短，因此氧气也来不及淬灭处于激发态的 PPO 分子，它已经释放出荧光光子。这样氧气的淬灭效应只能发生在 LAB 到 PPO 的

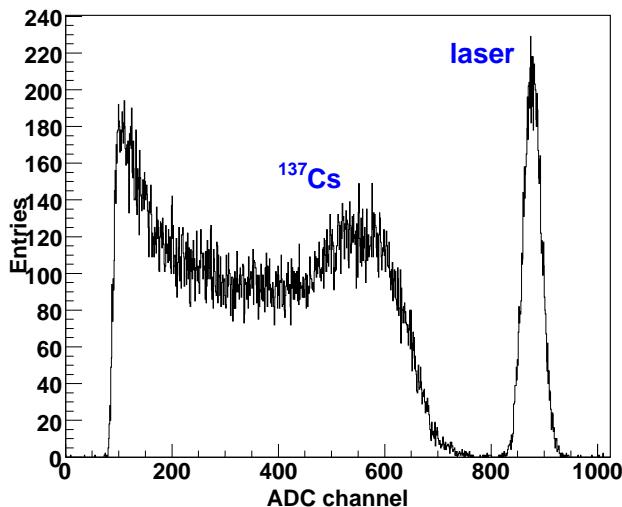
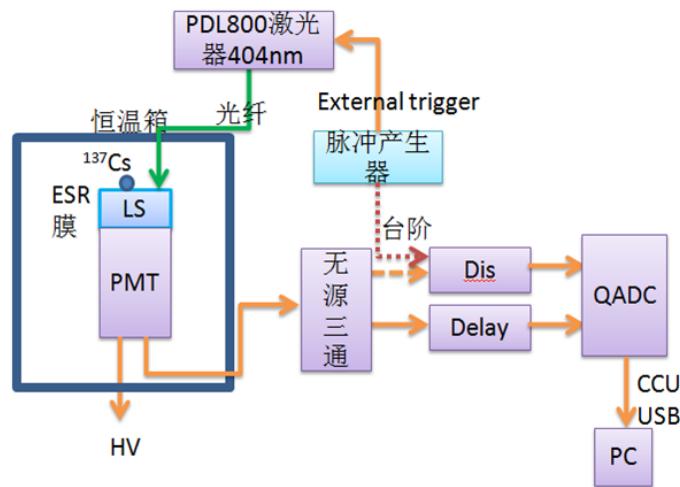


图 3.25: 上图是光产额温度效应的测试系统示意图, 下图是在完全一样的条件下得到的某一温度下 ^{137}Cs 的能谱和激光能谱。

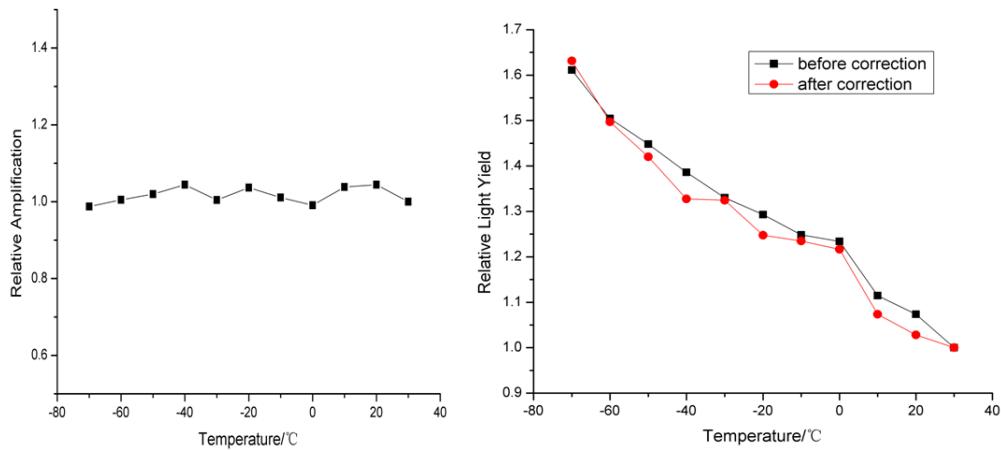


图 3.26: 左图是不同温度下通过激光峰位得到的系统稳定性, 右图是有无修正系统稳定性时得到的液闪光产额在不同温度下的相对值。

能量传递过程中, 本质上也就是氧气与处于激发态的 LAB 分子发生碰撞, 由于 LAB 处于激发态的寿命很长(48.6 ns), 氧气有足够的时间使其返回到基态, 既不让 LAB 分子放出荧光, 也使得向 PPO 传递能量的 LAB 分子减少, 表现出来的结果就是液闪光产额的减小和能量传递时间的变短。可见, 只要有 LAB 参与的过程, 液闪都会受到氧气淬灭的影响。如图 3.27 所示, 左图是 LAB + 3g/L PPO 在通氮和不通氮情况下, ^{137}Cs 的 compton 边沿所在的 ADC 道数的差异, 减去台阶后, 二者的差异有 10%, 与文献 [80] 中测量的大亚湾液闪的光产额在 5 cm 容器尺寸内通氮和不通氮的差异基本一样。右图是 LAB + 1g/L PPO 在通氮和不通氮情况下, 并在 ^{60}Co 的辐射下, 用和 3.1 节一样的单光子方法测到的, 氧气对能量传递时间的影响。

从上面的测量结果, 可以看出氧气淬灭和温度淬灭一样, 都会影响液体闪烁体的光产额、时间特性和荧光量子效率。虽然光产额, 可以通过对探测器的能量刻度修正回来, 但是在灌装液闪之前对液闪充分通氮, 可以提高 10% 的光产额, 这对提高探测器的能量分辨是很重要的。另外, 如果运行成本允许, 可以让所有探测器模块工作在更低温度下, 对提高能量分辨也是有帮助的。

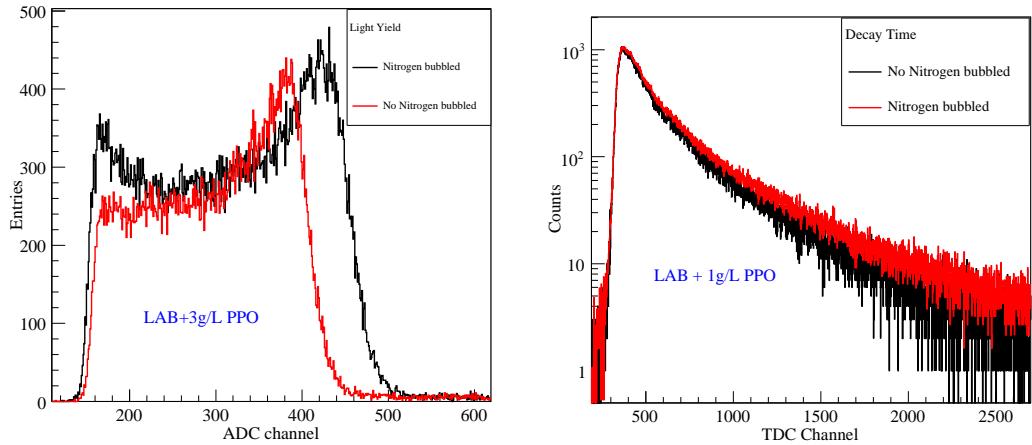


图 3.27: 左图是氧气对 LAB + 3g/L PPO 的光产额影响, 右图是氧气对 LAB + 1g/L PPO 的能量传递时间影响。

3.5 液闪的相对光产额测量

为了比较不同批次的 PPO 带来的光产额差异及 4 吨液闪 (一个批次) 生产完后, 光产额随通氮时间的变化, 我们只需要对液闪的光产额做相对测量。大亚湾实验在选择 LAB 为溶剂时, 测量了很多溶剂与 5 g/L PPO 和 10 mg/L bis-MSB 组成的液闪的相对光产额 [74]。方法是通过拟合 ^{137}Cs 的康普顿边沿所在的 ADC 道数, 比较不同液闪的相对光产额值。在拟合康普顿边沿时, 由于拟合范围或者拟合函数的选择不一样, 会造成约 5%–10% 的误差 [81]。

为了减少拟合带来的误差, 我们使用了 α 电离激发液闪发光, 测试示意图如图 3.28 所示。放射源 ^{239}Pu 放置在液闪容器开口的正上方, ^{239}Pu 衰变一次, 有 73.3% 的概率放出一个能量为 5.155 MeV 的 α , 15.1% 的概率放出一个能量为 5.143 MeV 的 α , 11.5% 的概率放出一个能量为 5.104 MeV 的 α , α 的平均能量为 5.14 MeV。大亚湾液闪的能量分辨不能区分 3 个不同能量的 α 。因此看到的能谱上只有一个高斯分布, 如图 3.29 所示。第一个峰位是电子学台阶, 中间指数衰减的小峰, 是阈值选择造成的。可见在 α 的峰位处, 指数的本底已经变的很平, 不会对峰位拟合造成影响。

需要指出的是, ^{239}Pu 在衰变过程中还有 25% 的概率会放出不同能量的电子, 这些

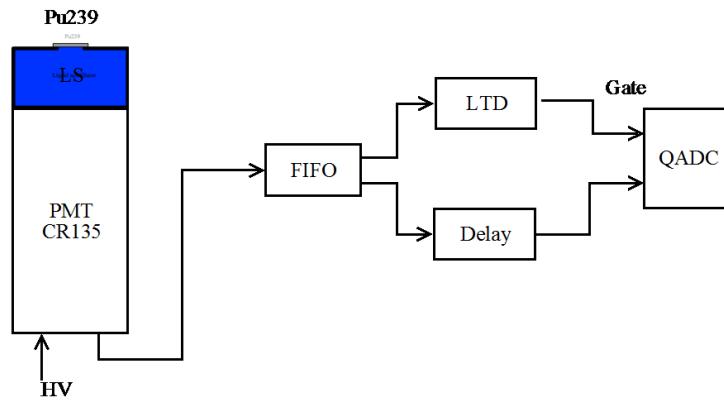


图 3.28: ^{239}Pu 电离激发液闪发光时, 测量光差额的示意图。

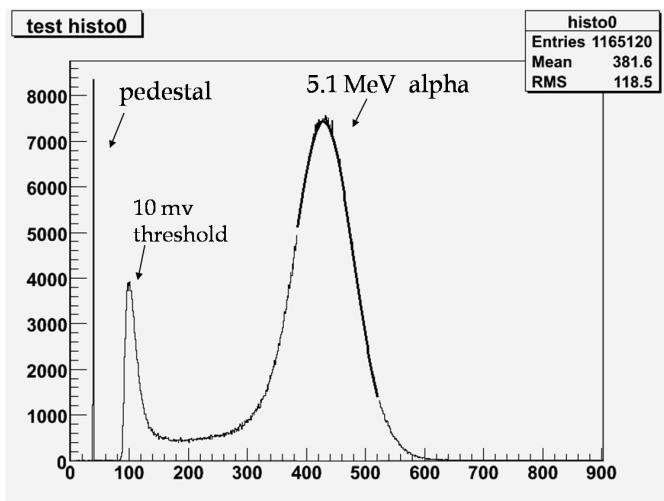


图 3.29: ^{239}Pu 电离激发液闪发光时的能谱分布。

电子的最大能量为 29 keV，即使考虑液闪对 α 的电离淬灭效应，这些电子的沉积能量也远小于 5.14 MeV 的 α 。另外， ^{239}Pu 还有 0.048% 的概率放出一个能量为 0.113 MeV 的伽马，不管从概率还是从伽马的能量来说，对 5.14 MeV 的 α 峰位都不会带来影响。从图 3.29 可以看出，高斯峰位的两边不是很对称，呈现出左边胖，右边瘦的趋势，这个原因是 ^{239}Pu 的生产工艺造成的，由于 ^{239}Pu 在封装在一个很薄的膜中，膜的厚薄不一样，就会造成进入液闪的 α 能量不一样。

我们测量了 5 种不同样品的光产额差异，它们的组成成分如表 3.3。其中样品 1 和 2 的 PPO 是武汉纯化后的 PPO，样品 3, 4, 5 表示从乌克兰直接寄过来的 PPO。可见，PPO 的纯化可以提高约 2.5% 的光产额。

	PPO(g/L)	bis-MSB(mg/L)	Gd(%)	Peak channel
Sample 1	3	15	0	387.1
Sample 2	5	15	0	411.0
Sample 3	5	15	0	415.1
Sample 4	3	15	0	397.0
Sample 5	3	15	0.1	389.3

表 3.3: 不同样品的光产额差异。

此外，我们还用这种方法测量了掺钆液闪和普通液闪的光产额差异，假设掺钆液闪和普通液闪对 α 的电离淬灭效应一样，得到掺钆液闪和普通液闪对 ^{239}Pu 的 α 峰位分别为：404.9 channel 和 410.4 channel。二者的差异为 1.5%。如果掺钆液闪和液闪的光产额有差别，那么对于发生在掺钆液闪中的 IBD 事例，正电子湮灭后产生的 2 个 0.511 MeV 的伽马一个在掺钆液闪中沉积能量，一个在普通液闪中沉积能量，或者两个伽马都在液闪或掺钆液闪中沉积能量，除非可以很好地刻度能量随位置的变化及重建粒子沉积能量的重心，否则必然会带来正电子能谱的畸变，也就是中微子能谱的变形。另外，对于 spill-in 的 IBD 事例，正电子湮灭后产生的 2 个伽马也可能在任何地方沉积能量，

同样会造成能谱的变形。这里，从我们的测量结果来看，即使掺钆液闪和液闪的光产额有 1.5% 的差异，中子在 GdLS 中俘获后放出的几个伽马全进入液闪，也能满足慢信号 6–10 MeV 的 cut 条件。

我们在原子能研究院测量的普通液体闪烁体的 kB 常数为 $8.205 \times 10^{-3} g/(MeV \cdot cm^2)$ ，掺 Gd 液体闪烁体的 kB 常数为 $6.489 \times 10^{-3} g/(MeV \cdot cm^2)$ 。掺钆液闪和普通液闪的电离淬灭常数或许是一样的，但是由于测量误差，导致二者出现了差异。考虑到电子的电离淬灭较小，我们又比较了掺钆液闪和普通液闪对相同沉积能量的电子产生的光子数差异。实验上通过选择某一方向散射的康普顿电子产生的高斯峰来测量二者光产额的差异，测试示意图如图 3.30。准直的 ^{137}Cs 入射到液闪内，选择被散射的伽马在 45 度出射时，康普顿电子的能谱分布。为了减少 NaI 周围环境本底引入的偶然符合本底，NaI 晶体的侧面和顶上用铅砖挡住，其中 NaI 到 LS 的距离为 1 m。GdLS 和 LS 的康普顿电子能谱分布如图 3.31，高斯拟合减去台阶后，GdLS 的康普顿电子峰位在 123.9 channel，LS 的康普顿电子峰位在 129.6 channel，二者的差异为 4.3%。

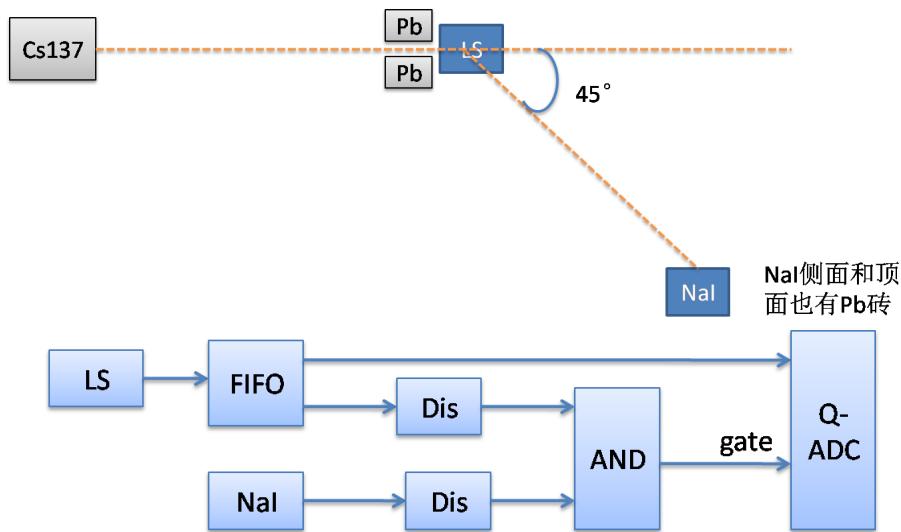


图 3.30: 上图是 LS 和 NaI 的位置，用于测量被散射的伽马在 45 度出射时，对应的康普顿电子能谱。下图是探测器后端电子学示意图。

当散射伽马在 45 度出射时，能量为 0.48 MeV，康普顿电子的能量为 0.182 MeV。用计数器可以得到液闪的事例率为 2992 Hz，NaI 的事例率为 137 Hz，甄别器门宽都为

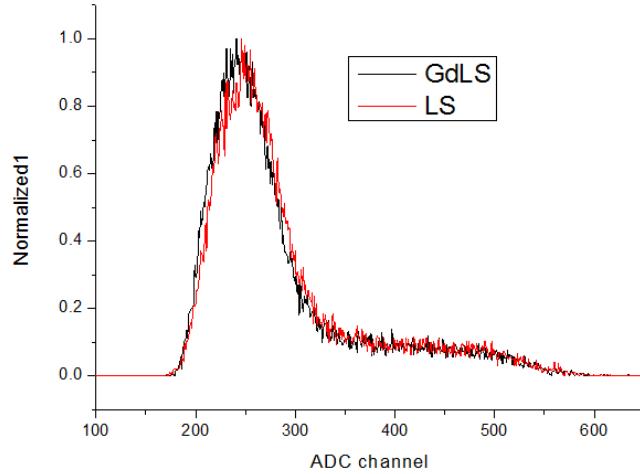


图 3.31: 被散射的伽马在 45 度出射时, GdLS 和 LS 对应的康普顿电子的高斯峰差异。

50 ns, 二者偶然符合的事例率为: $2992*137*100=0.04$ Hz, 二者符合 (AND) 的计数率为 0.65 Hz, 因此我们可以得到信噪比大约是: 16:1。当把 NaI 放置在与入射伽马成 90 度的方向上, 信噪比大约是 1:1。随着散射伽马的角度减小, 信噪比会升高, 因为康普顿散射时, 前向散射的伽马截面大, 但是康普顿电子的能量太低, 与阈值一个水平, 或者比阈值还低。所以我们把 NaI 的角度选择在 45 度方向上。

另外, 还要解释下为什么 GdLS 和 LS 的光产额差异在用电子激发的时候比 α 大了约 2%。由于事例率低, 二者的光产额测量时间分别用了 18 个小时。测量 GdLS 的当天平均气温为 11°C, 测量 LS 的当天平均气温为 8°C。从图 3.26 可以看出, 液闪的光产额在两个不同温度下的差异也有 1.8%。而 α 电离激发液闪发光时, 由于事例率很高, 半个小时就可以测完, 温度的影响可以忽略。因此在做相对光产额测量时, 一定要注意外界条件的一致性, 比如温度, 氧气含量等。

3.6 本章小结

大亚湾实验的液体闪烁体采用烷基苯作为溶剂, 是一种新型的液体闪烁体。本章对该种液体闪烁体及其各组分的性质经行了大量研究。

通过对液闪发光时间的研究, 得到了一系列非常有意义的结论, 使我们充分理解了

大亚湾液闪不同成分之间的能量传递机制，并从理论和实验上得到了很好的解释。这些结论包括：

- LAB、PPO、bis-MSB 的本征发光时间分别为 48.6 ns、1.55 ns、1.5 ns。
- LAB 和 PPO 之间是非辐射传递能量的，且能量传递所需的时间随 PPO 浓度的增加而减小。电离激发时，原始的发光光谱应该是 PPO 发射出来的。
- 由于 bis-MSB 的浓度太低，PPO 和 bis-MSB 之间不满足非辐射传递能量的条件，二者是靠辐射传递能量。因此 bis-MSB 需要有高的吸收重发射几率。
- LAB 的发光时间长，受到氧气淬灭的影响。
- PPO 和 bis-MSB 的发光不受氧气淬灭的影响。
- 氧气会淬灭处于激发态的 LAB 分子，从而使得液闪光产额降低及 LAB 到 PPO 的能量传递时间变短。
- 大亚湾液闪在 5 cm 尺寸的容器内，具有波形分辨能力。

分别测量了大亚湾各组成成分的吸收、发射光谱，PPO 对 280 nm 到 340 nm 的光子的吸收重发射几率为 0.77，bis-MSB 对 360 nm 到 380 nm 之间的光子的吸收重发射几率为 0.96。对于更短波长的光子由于吸收太厉害，无法和标准样品的发光中心比较，对于更长波长的光子由于在 2 mm 的光程内吸收太少，已经超过仪器的灵敏度，所以没有给出这些波段的吸收重发射几率。

测量了 GdLS 和 LS 的相对光产额差异，用 α 电离激发液闪发光时，二者差异为 1.5%。用电子电离激发液闪发光时，由于受到温度的影响，使二者差异为 4.3%。因此，需要在保持实验室温度不变和对二者充分通氮气的情况下，对 GdLS 和 LS 的光产额差异做重新测量。

第四章 大亚湾天然放射性本底研究

我们生活的周围环境按照放射性的来源可分为三类：原生的，宇宙线引入的，人造的。这一章，我们主要讨论原生的放射性对大亚湾中心探测器的影响。

地球的年龄已经有 46 亿年(10^9)，经历这么长时间仍然存在于地球上的物质都包含有长寿命放射性核素及其衰变子体。地球上生来就有的放射性核素被称为原生放射性核素，这里，我们也称为天然放射性核素。这些核素包括有衰变系列的核素，比如 ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U 。也包括单次衰变的放射性核素，比如 ^{40}K , ^{87}Rb 等。原生放射性核素广泛存在于地球的岩石、土壤、江河、湖海中。这些核素的活度和分布随着岩石构造的类型不同而变化，尤其以花岗岩中的含量最高。

探测器材料及其屏蔽体在开采、冶炼、加工、生产过程中或多或少会引入各种不同活度的放射性，放射性核素及其子体在衰变过程中会放出几个 MeV 的 α , β 和 γ ，对于低能的大亚湾中心探测器来说，这些本底事例处于大亚湾实验快信号的能量选择区间内，由于事例率高会与中子偶然符合形成本底。同时处于液体闪烁体中的天然放射性核素放出的 α 会与液闪中的 ^{13}C 发生反应形成关联本底。因而如何控制和保证探测器的低本底是实现大亚湾灵敏度的重要条件。

4.1 天然放射性产生子

4.1.1 ^{238}U 和 ^{232}Th 的产生子

地壳中存在三个级联衰变系 ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U ，半衰期分别是 4.5×10^9 年, 1.4×10^{10} 年, 7.0×10^8 年，和地球年龄相当或者更长，因而经过漫长的地质年代后还能保存下来。它们的成员大多具有 α 衰变，少数具有 β^- 衰变，一般都伴随 γ 辐射，没有 β^+

衰变或者轨道电子俘获(EC)过程。每个放射系从母体开始，都经过至少十次连续衰变，最后达到稳定的铅同位素。从²³⁸U开始，经过14次衰变，最后到稳定的²⁰⁶Pb，如图4.1所示。从²³²Th开始，经过10次衰变，最后到稳定的²⁰⁸Pb，如图4.1所示。²³⁵U在自然界的丰度只有0.72%，而²³⁸U的丰度为99.27%，加上²³⁵U的半衰期是²³⁸U的0.16倍。所以²³⁵U形成的放射性本底相对于²³⁸U来说，可以忽略不计。

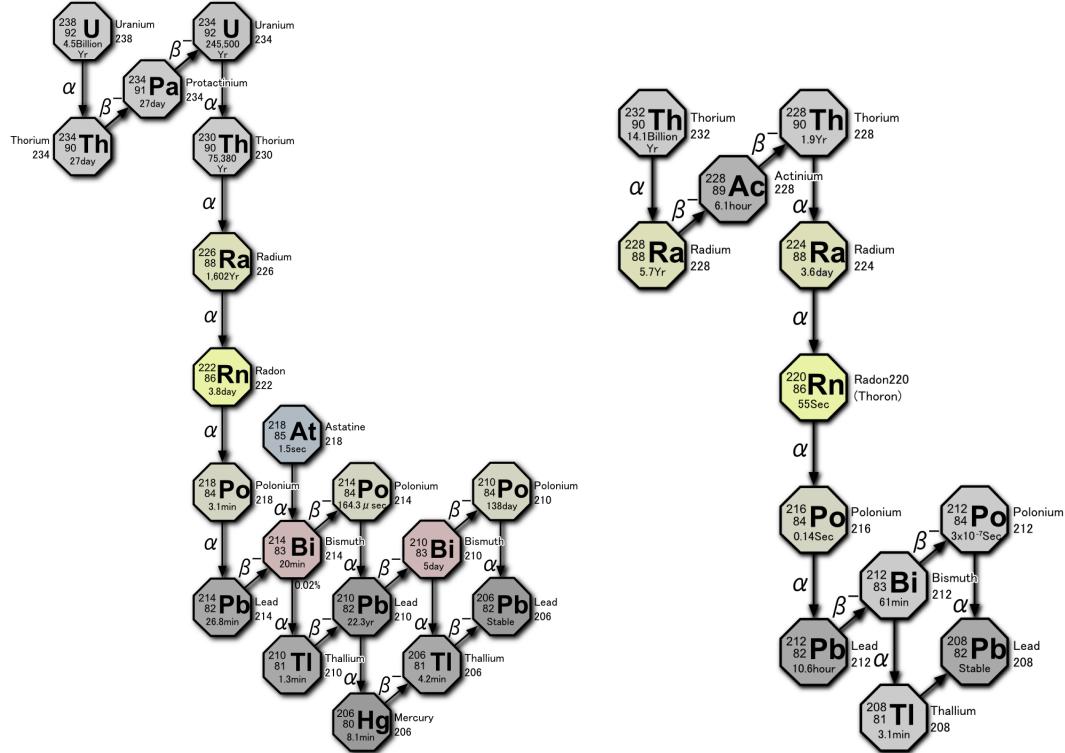


图4.1：左图是²³⁸U的衰变系，右图是²³²Th的衰变系[82]。

如不是人工破坏，这三种核素都处于衰变平衡状态。这样它们和它们的子核的衰变率是一样的。大亚湾离线软件G4dyb移植了Andreas Pieke用Fortran写的放射性²³⁸U和²³²Th的产生子。为了简单起见，我们把它叫AP产生子。产生子包含了²³⁸U、²³²Th衰变链上所有子核的衰变。由于某些子核的衰变很复杂，考虑到探测器实际探测的能量区间，产生子只包含了衰变分支比大于0.5%和衰变粒子产生的可见能量大于100 keV的。这样，为了保证每个子核在母核衰变一次的时候，子核的总分支比为100%，某些衰变分支比会与实际的不符合。如²³⁸U链中的²³⁸U的50 keV X射线实

际的衰变分支比是 0.06%，但是在 AP 的产生子中的分支比被提高到 21%。由于它和 4.151 MeV 的 α 一起产生，总的可见能量也就在 0.4 MeV 附近，对大亚湾实验的影响可以忽略。还有 ^{234}U 中 53 keV 的 X 射线和 ^{230}Th 中 68 keV 的 X 射线的分支比都被提高了 100 倍。如论文后面的附录所示。

在 AP 产生子中，假设了衰变链处于长期平衡状态，所有子核的衰变率和母核一样且由母核的浓度决定。相邻的短寿命的核素被组合在一起作为一个产生子事例，它们各自衰变产生的粒子时间间隔按照核素的半衰期指数抽样。然而，这种所谓的短寿命的核素有从几秒到几天的，相对于探测器的成形时间来说(几百 ns)，产生子事例中某些核素的衰变应该是独立的，和它的上一个母核衰变是无时间关联的。因此，我们应该从产生子事例的时间结构中挑选出不同的触发单事例来。 ^{238}U 有 14 个级联衰变的核素，在 AP 产生子它们被分成了如图 4.2 所示的 9 个 branch。每一个 branch 被当做一个独立的产生子事例，以相同的概率产生。 ^{238}U 的一次衰变对应 9 个产生子事例。因此在计算放射性引入的单事例率时，要乘上一个常数 9。同理，对 ^{232}Th 有 10 个级联衰变的核素，在 AP 产生子它们被分成了如图 4.3 所示的 4 个 branch。 ^{232}Th 的一次衰变对应 4 个产生子事例。因此在计算放射性引入的单事例率时，要乘上一个常数 4。

4.1.2 ^{40}K 的产生子

^{40}K 有 2 个衰变分支如图 4.4 所示。89.3% 的分支比发生 β^- 衰变，放出一个末态能量为 1.31 MeV 的电子。10.7% 的分支比发生 γ 衰变，放出一个能量为 1.461 MeV 的 γ 。大亚湾离线软件中原来不包含 89.3% 的 β^- 衰变，但是大亚湾液体闪烁体对 β^- 衰变会引入大于 1 MeV 的能量沉积， ^{40}K 的 β 能谱可以从 LBNL 的核数据库上得到 [83] 并加入到 ^{40}K 的产生子中。

4.2 大亚湾中心探测器不同材料引入的单事例率及能谱

中心探测器除了能探测到中微子的反 β 衰变和宇宙线 μ 子及次级粒子的信号外，还可以探测到各种天然放射性本底信号。放射性本底主要来源于材料中的放射性元素 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 和 ^{60}Co ，空气和水中的氡气也可能进入到探测器内形成本底。放射性单事例的能量不会产生 6 MeV 以上的信号，因此不会误判为反 β 衰变的慢信号。放

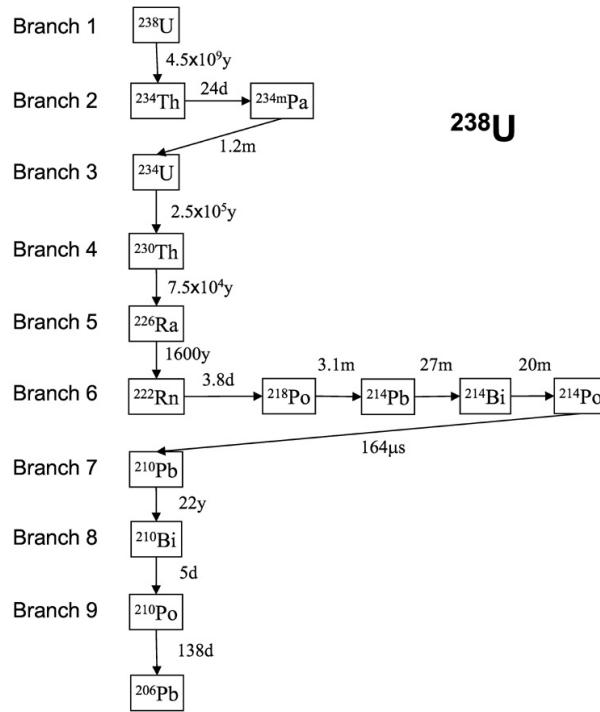


图 4.2: 在 AP 产生子中的 ^{238}U 衰变链, 被分成 9 个独立的产生子事例。

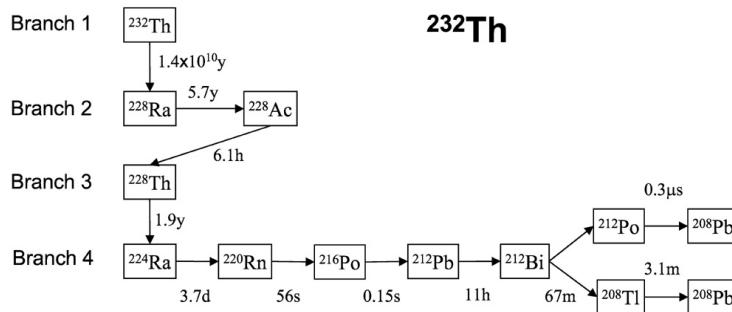


图 4.3: 在 AP 产生子中的 ^{232}Th 衰变链, 被分成 4 个独立的产生子事例。

^{40}K (1.3×10^9 y)	E_{β^-} Endpoint	E_{γ}	per ^{40}K decays
↓ 89.3%	1311	-	0.893
^{40}Ca (∞)			
^{40}K (1.3×10^9 y)		E_{γ}	per ^{40}K decays
↓ 10.7%		1461	0.105
		-	0.002
^{40}Ar (∞)			

图 4.4: ^{40}K 的衰变分支。

射性本底事例只可能被误判为快信号, 与宇宙线产生的中子或其它 6-10 MeV 的假信号进行符合, 产生一个假的中微子信号。计算表明, 只要放射性本底事例率 < 50 Hz, 其造成的事例率跟信号比值 $< 0.1\%$, 即可满足探测器设计的要求。

放射性本底主要来源有:

- 实验大厅岩石中的 U/Th/K。
- 水池中的 U/Th/K/Radon。
- 中心探测器支撑结构中的 U/Th/K/Co。
- 探测器钢罐中的 U/Th/K/Co。
- 焊缝处焊锡中的 U/Th/K/Co。
- PMT 玻璃中的 U/Th/K。
- 液闪和掺钆液闪中的 U/Th/K。
- 灰尘及空气中的放射性元素。
- 宇宙线、中子活化带来的放射性元素。
- 液闪在生产、存储、灌装过程中引入的氡气本底。

下面是对探测器中的各部分的放射性进行模拟, 得到它们的事例率和能谱。从而对探测器各部分材料纯度和对屏蔽体厚度提出满足物理需求的条件。

4.2.1 掺 **Gd** 液闪中的放射性事例率及能谱

假设掺钆液闪 (GdLS) 中 ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K 中的浓度都是 10^{-3} ppb, 即 10^{-12} g/g。根据下面的转换关系:

$$\begin{aligned} 1 \text{ ppb } ^{40}\text{K} &= 258.4 \text{ mBq/kg}, \\ 1 \text{ ppb } ^{238}\text{U} &= 12.4 \text{ mBq/kg}, \\ 1 \text{ ppb } ^{232}\text{Th} &= 4.0 \text{ mBq/kg}, \end{aligned} \quad (4.1)$$

我们可以得到 20 吨 GdLS 中的 ^{238}U 为 0.25 Bq, ^{232}Th 为 0.08 Bq, ^{40}K 为 5.2 Bq。在 GdLS 中分别模拟 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 的产生子事例 10000 个。它们在 GdLS 中均匀产生。对 ^{238}U 链来说, 每个 branch 有 11.1% 的概率产生。对 ^{232}Th 链来说, 每个 branch 有 25% 的概率产生。

大亚湾电子学的成形时间为 300 ns, 一个事例如果紧跟上一个触发事例, 则在 300 ns 内不会被触发。因此我们可以把一个产生子事例中产生的光电子先按照光子击中 PMT 的时间排序。如果相邻光子的击中时间大于 300 ns, 则划分成不同的子事例。如果一个子事例的总光电子个数超过阈值, 则该子事例会被当做独立的触发事例。从 U, Th 的衰变链上我们将会看到相邻的两个级联衰变由于半衰期只有 299 ns 和 164 us 而发生事例的堆积。比如 $^{214}\text{Po} \rightarrow ^{210}\text{Pb}$ 和 $^{212}\text{Po} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ 。

为了将光电子个数转换成产生可见光的能量, ^{40}K 的 1.461 MeV 的 γ 被用来做能量的刻度, 如图 4.5, 1.461 MeV 的能量对应 178 个光电子数。假设探测器的响应是线性的, 则 1 MeV 的能量对应 122 个光电子数。这样可以得到 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 在 GdLS 中的能量沉积分布如图 4.6, 图 4.7, 图 4.8 所示。

如果 U, Th 衰变链上的子核根据前面按照 300 ns 划分子事例后都可以作为一个独立的子事例, 没有事例的堆积, 则 U 链上将有 $10000 \times 14/9 = 15555$ 个子事例, Th 链上有 $10000 \times 10/4 = 25000$ 个子事例。从图 4.7 和图 4.8 可以看出, 它们划分后的子事例个数分别为 14954 和 23757 个, 则说明 U, Th 衰变链上都有相邻子核的事例堆积。

假定一个能量阈值, 我们可以定义 ϵ 为:

$$\epsilon = N_{\text{triggered}}/N_{\text{generated}}, \quad (4.2)$$

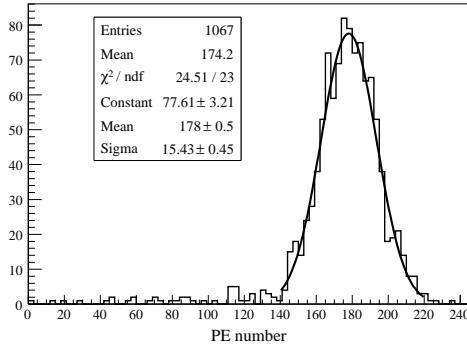


图 4.5: 高斯函数拟合 1.46 MeV 的 γ 产生的光电子数分布。

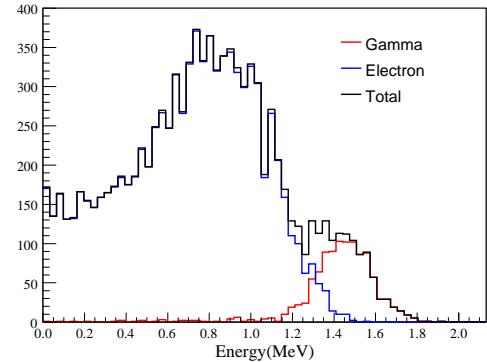


图 4.6: ^{40}K 在 GdLS 中的能谱分布。

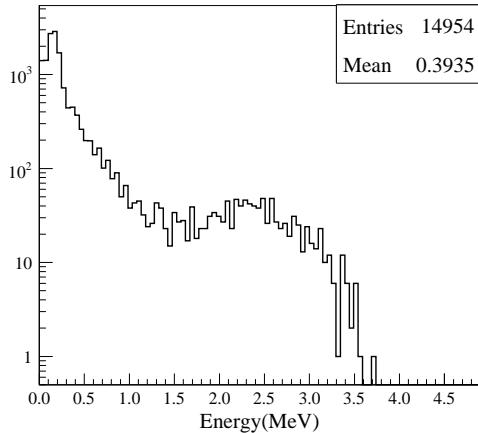


图 4.7: ^{238}U 在 GdLS 中的能谱分布。

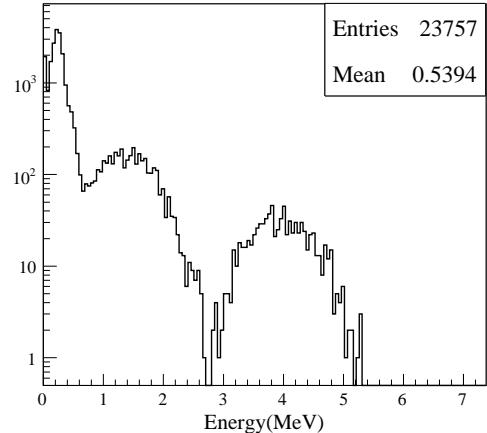


图 4.8: ^{232}Th 在 GdLS 中的能谱分布。

$N_{\text{triggered}}$ 超过能量阈值的子事例个数, $N_{\text{generated}}$ 是模拟的产生子事例个数, 这里都是 10000. 则单事例率可以表示为:

$$\text{Rate} = \epsilon \times R \times M, \quad (4.3)$$

R 是 20 吨 GdLS 的放射性活度, M 对 ^{232}Th 来说是 4, 对 ^{238}U 来说是 9。表 4.1 列出了当能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时, 10^{-3} ppb 的 U, Th, K 在 GdLS 中的单事例率。如果我们不分析产生子事例的时间结构, 那么一个 branch 里所有的衰变都会被堆积在一起, 作为一个事例。如图 4.9 所示, ^{232}Th 的高能部分已经延伸到 6.8 MeV, 它是 ^{232}Th 的第 4 个 branch 产生的所有粒子的沉积能量和。这明显是错误的。

	1 MeV		0.5 MeV	
	ϵ	Rate (Hz)	ϵ	Rate (Hz)
10^{-3} ppb ^{40}K	27.9%	1.44	74.8%	3.87
10^{-3} ppb ^{238}U	13.8%	0.31	25.7%	0.57
10^{-3} ppb ^{232}Th	38.9%	0.12	50.2%	0.16

表 4.1: 能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时, 10^{-3} ppb 的 U, Th, K 在 20 吨 GdLS 中产生的单事例率。

4.2.2 普通液闪中的放射性事例率及能谱

与 GdLS 中的放射性模拟一样, 在普通液闪(LS)中也均匀产生 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 的产生子事例各 10000 个。它们在液闪中的能谱如图 4.10, 与 GdLS 中的能谱很像, 能谱稍向高能端移动, 主要原因是我们在 GdLS 中的光电子数和能量的对应关系, 而 PMT 对发光顶点在普通液闪中的立体角要大于在 GdLS 中的立体角, 因此在液闪中沉积相同的能量, PMT 接收到的光子数要大于在 GdLS 里的。如果能量刻度可以很好的修正顶点的依赖关系, 那么在 LS 中的能谱还会向低能端移动。同样有些伽马会逃离液闪, 由于伽马逃逸造成能量展宽已经在图 4.10 中的(c)可以看出, 3 MeV 附近已经不是像图 4.8 中的那样清晰的谷, 而是被展宽。

普通液闪由于不会含钆, 所以天然放射性含量会比 GdLS 低, 这里, 我们同样假设普通液闪中的 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 浓度都是 10^{-3} ppb, 则 20 吨普通液闪的放射性事例率能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时如表 4.2 所示。

4.2.3 AD 中其他部分的放射性事例率

大亚湾内部资料 [84] 中对 PMT 的放射性提出了如下要求:

- ^{40}K 含量小于等于 2.7 Bq/PMT
- ^{238}U 含量小于等于 0.64 Bq/PMT

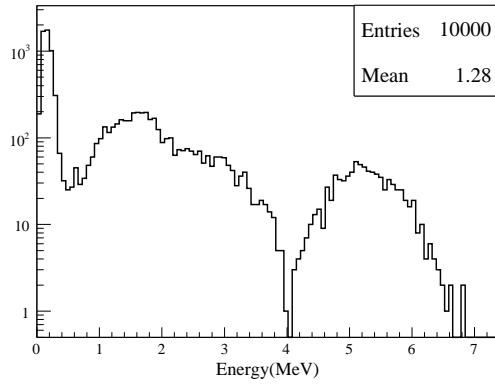


图 4.9: ^{232}Th 在未划分子事例时的能谱分布, 一个 branch 产生的可见光能量堆积在一起, 出现大于 6 MeV 的事例。

	1 MeV		0.5 MeV	
	ϵ	Rate (Hz)	ϵ	Rate (Hz)
10^{-3} ppb ^{40}K	33.6%	1.73	75.8%	3.92
10^{-3} ppb ^{238}U	14.0%	0.31	26.4%	0.59
10^{-3} ppb ^{232}Th	36.7%	0.12	51.4%	0.16

表 4.2: 能量阈值分别是 1 MeV 和 0.5 MeV 时, 10^{-3} ppb 的 U, Th, K 在 20 吨 LS 中的单事例率。

- ^{232}Th 含量小于等于 0.5 Bq/PMT

按照前面的计算, 大亚湾中心探测器内 192 个 PMT 的 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 放射性事例率分别为: 3 Hz, 5.9 Hz, 4.8 Hz。

大亚湾中心探测器内部的筋板均采用角焊, 母材焊透尺寸大于等于 $1/2$ 的焊缝高度。因此当一个筋板与另一个筋板接触时候, 二者之间需要焊接, 焊接的表面积为 $2.6 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ 。以中心探测器底部为例, 底部共有 64 个垂直焊棒, 2 个环形焊棒, 8 个水平焊棒, 它们的总质量为 219.8 千克。加上 AD 侧面和顶部的焊料, 总焊料质量

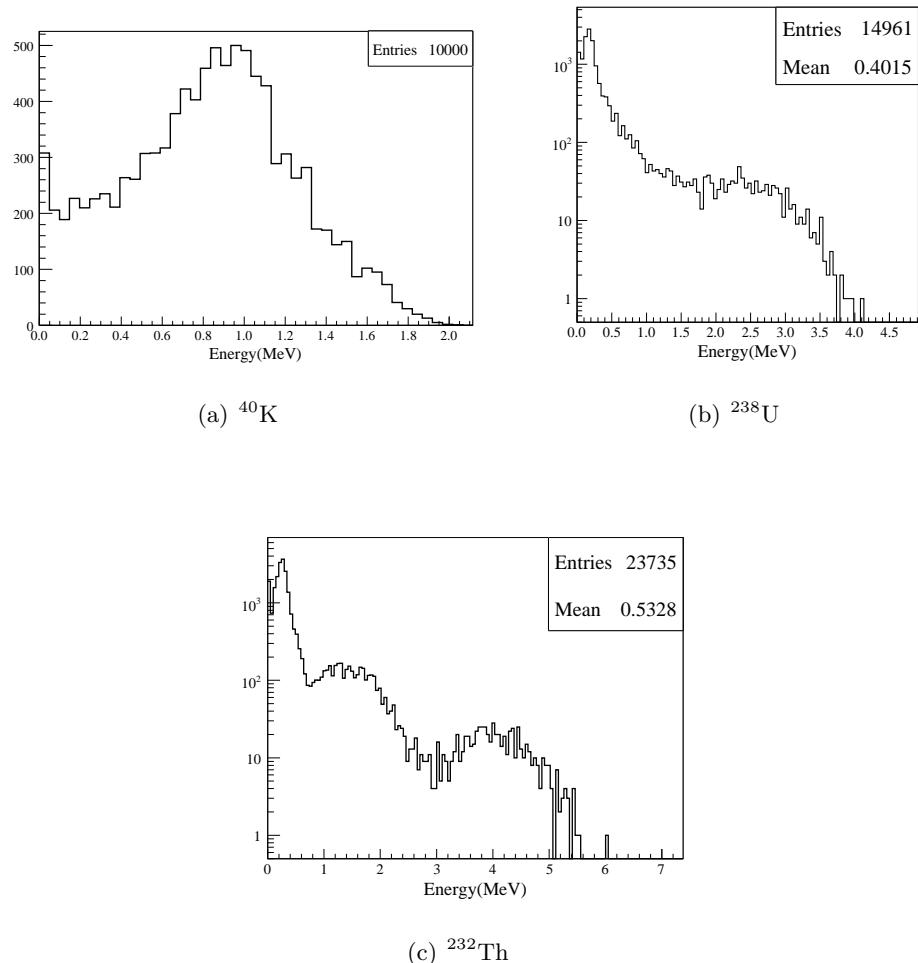


图 4.10: 天然放射性 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 在液闪中的能谱分布。

为 525 千克。当焊料中 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 和 ^{60}Co 的浓度分别为 50 ppb, 100 ppb, 10 ppb, 300 mBq/kg。则事例率分别为: 4.5 Hz, 2.68 Hz, 1.33 Hz, 1.27 Hz。

中心探测器支撑平面, 支撑腿, 支撑筋, 自动刻度装置及钢罐的天然放射性引入的本底事例率都可以忽略。上述部分均采用了不锈钢材。刚开始, 大量的钢材样品在清华大学、美国伯克利、台湾清华大学进行测量, 相当多的样品超标 50 倍以上。根据测量结果, 知道主要是 ^{60}Co 含量偏高。而 ^{60}Co 是人工放射性核素, 将丰度为 100% 金属 ^{59}Co , 放在反应堆孔道内, 利用中子辐射, 即可得到 ^{60}Co 。 ^{60}Co 除在工业上应用于食品和医疗器具的杀菌、消毒, 还在炼钢炉内衬中添加 ^{60}Co , 检测钢炉磨损, 泄漏。这样生产出的钢材就会引入放射性, 同时钢材回收, 又会导致放射性的进一步扩散。为了解决这一问题, 大亚湾的相关人员访问太原钢铁厂, 研究其生产流程, 要求专门生产 260 吨不锈钢, 并提出了如下改进措施:

1. 采用纯铁水和镍铁, 不添加废钢。
2. 采用新的耐火砖。
3. 不在内衬中添加 ^{60}Co 。
4. 炼钢后先把样品送去检测, 待合格后再轧成不同规格的钢板。

经过改进后的钢材放射性实测为 0.006 Bq/kg, 普通不锈钢的放射性水平为 1.5 Bq/kg, 降低 250 倍。

4.3 液闪中的(α , n)关联本底及探测器设计指标

液闪中 α 来源包括: GdLS 和 LS 中的天然放射性 ^{238}U , ^{232}Th 的衰变链上放出的 α , GdLS 和 LS 在生产、存储、灌装过程中引入的氡气, 它的子核 ^{210}Po 在衰变过程中会放出一个能量为 5.3 MeV 的 α 。这些 α 会和液闪中的 ^{13}C 发生如下反应:



反应后的 ^{16}O 如果处于基态, 则中子携带的动能会比较大, 那么中子会和液闪中的原子核, 主要是质子发生碰撞, 反冲核和慢化后被 GdLS 俘获的热中子将有一定概率形成和中微子信号特征一样的关联本底。如果 ^{16}O 处于激发态, 则中子携带的动能将会较小,

这样 ^{16}O 退激放出的 γ 将会和中子慢化后俘获的信号构成关联本底，这个过程可以用图 4.11 来表示，该反应的截面数据可以从日本核数据库 JENDL 上获得 [85]。截面大小如图 4.12 所示。

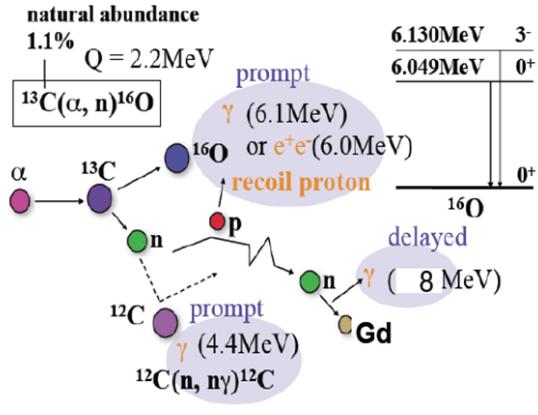


图 4.11: (α, n) 反应导致的关联本底示意

图。

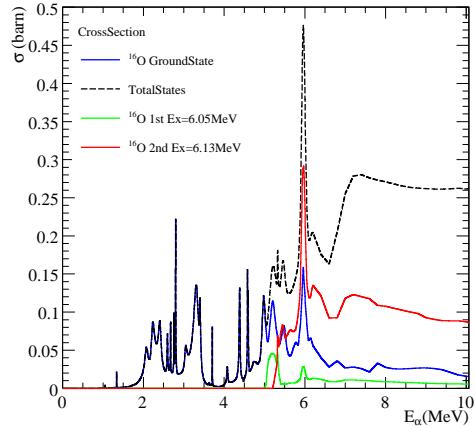


图 4.12: (α, n) 反应的截面大小。

4.3.1 氡气引入的 (α, n) 关联本底

氡的原子序数是 86，位于元素周期表第 VI 周期的零族元素，属于惰性气体族。氡共有 33 种同位素，从 ^{196}Rn 到 ^{228}Rn 。最重要的 2 个是天然放射系 ^{238}U , ^{232}Th 中的镭子体是 ^{222}Rn 和 ^{220}Rn 。 ^{220}Rn 及其子体的半衰期很短，通常我们所说的氡气指的是 ^{222}Rn 。它存在于人类的生活环境中，是自然界广泛存在的天然辐射源，人们无时无刻不受到氡及其子体的辐射。 ^{222}Rn 的半衰期只有 3.82 天，是铀系衰变的中间产物， ^{222}Rn 衰变又会产生一系列新生的放射性核素称为氡子体，如图 4.1 所示。

氡子体分为短寿命子体(从 ^{218}Po 到 ^{214}Po) 和长寿命子体(^{210}Pb 以后的衰变产物)。对大亚湾实验本底有影响的就是长寿命的子体，比如 ^{210}Bi 放出的末态能量为 1.16 MeV 的电子会贡献单事例本底， ^{210}Po 放出的 5.3 MeV 的 α 会提供关联本底。5.3 MeV 的 α 与 ^{13}C 发生反应后， ^{16}O 只能处于基态，第一激发态和第二激发态。要使 ^{16}O 处于第三激发态，则 α 的阈值为 6.4 MeV。

在 20 吨 GdLS 中均匀产生 5.3 MeV 的 α 。记录下 α 在 GdLS 中 step 的个数，step 的长度及每走一步后的动能。它们的分布如图 4.13 所示。

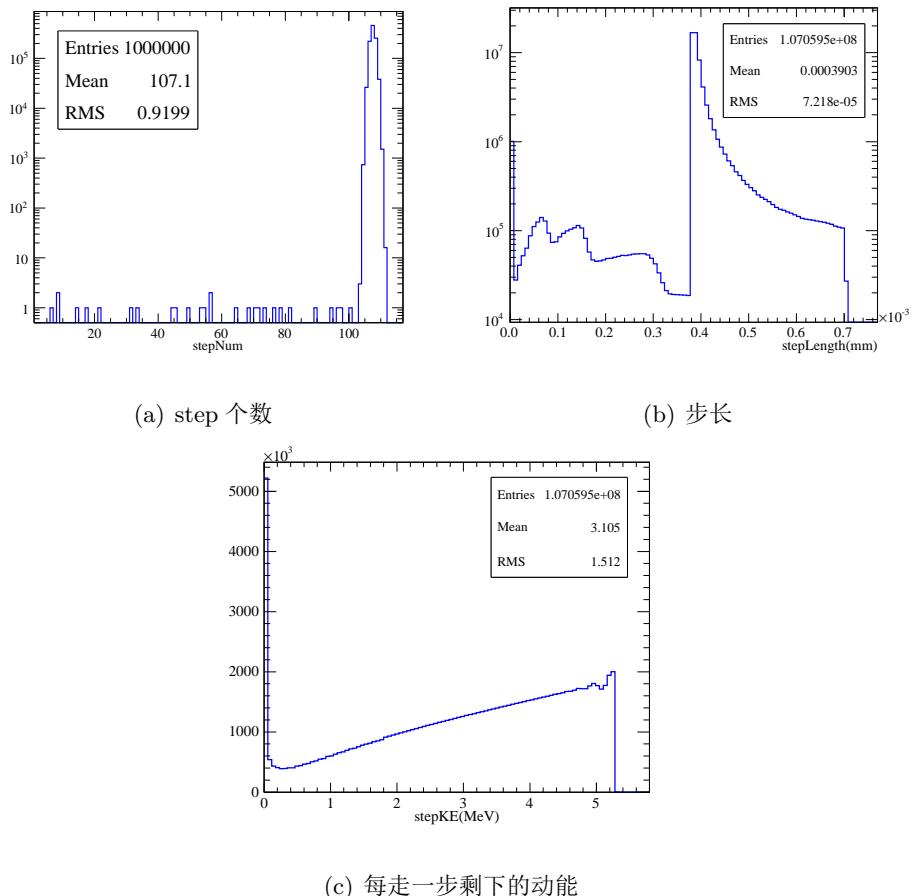


图 4.13: α 在 GdLS 中 step 的个数, step 的长度及每走一步后的动能的分布。

由于 α 的电离能损很大，因此 α 每经历一个 step 后，动能都会发生较大的改变，都会有不同的几率与 ^{13}C 发生反应。每走一步时，记录下 α 的动能，计算发生 (α, n) 反应后的中子动能，并把产生该动能的中子的权重记为 $\sigma(E_\alpha^{step}) \times d_{step}$ ，这样就得到反应后中子动能的分布。具体是这样计算 α 每经历一个 step 后产生的中子动能。根据反应前后四动量守恒有：

$$(T_{\alpha,lab} + m_1 + m_2)^2 - (\vec{p}_{\alpha,lab})^2 = (T_{n,cm} + m_3 + T_{O,cm} + m_4)^2 + (\vec{p}_{n,cm} + \vec{p}_{O,cm})^2, \quad (4.5)$$

其中， m_1, m_2, m_3, m_4 分别表示 $\alpha, ^{13}\text{C}$ ，中子， ^{16}O 的质量，值得注意的是当 ^{16}O 处于激发态时， m_4 还要加上 ^{16}O 的激发能。 T 代表动能， \vec{p} 代表动量， lab 代表实验室系， cm 代表质心系。如 $T_{O,cm}$ 代表 ^{16}O 在质心系中的动能。在质心系中，总动量为 0。所以可以算出中子在质心系中的动能 $T_{n,cm}$ 。

得到这一步中子在质心系中的动能后，根据公式 4.6 可以得到中子在实验室系中的动能 $T_{n,lab}$ 。但是中子在实验室系中的动能依赖于中子在质心系中的发射角 θ_c 。

$$T_{n,lab} = T_{n,cm} + \frac{m_1 m_3}{(m_1 + m_2)^2} T_{\alpha,lab} + \frac{2\sqrt{m_1 m_3 T_{\alpha,lab} T_{n,cm}}}{m_1 + m_2} \cos(\theta_c), \quad (4.6)$$

式中， $T_{\alpha,lab}$ 表示 α 在实验室系中的动能，也即 α 每走一步后的动能。

关于中子发射角的问题，实验有部分测量数据，理论上也有相关的模型计算。大致有以下几种做法：

(a) 中子在质心系中各向同性发射，这个也是 SOURCES 4A [86] 的代码采用的方法，很多暗物质实验 [87] 在估算裂变过程和 (α, n) 反应引入的中子产额和能谱时，就是使用 SOURCES 4A 进行模拟的。

(b) 从实验上得到勒让德多项式的系数 [88, 89]，根据下面的公式可以计算出在入射 α 能量为 E ，中子被散射后在质心系中发射角的余弦值为 μ 时的概率。

$$f(\mu, E) = \sum_{l=0}^{L_{max}} \frac{2l+1}{2} a_l(E) P_l(\mu), \quad (4.7)$$

其中， a_l 表示第 l 阶勒让德多项式的系数，实验上测到的有勒让德多项式系数的 α 能量范围在 1.06 MeV 到 5.96 MeV。从文献上测到的每个结果误差有大有小。

(c) 日本核数据库上也采用某些统计模型计算了中子在质心系中的发射角。

(d) 由于中子在质心系中发射角度的不确定性，比较了中子在质心系中的发射角在

$(0, \pi)$ 之间均匀分布时的结果。

图 4.14 比较了当 ^{16}O 处于基态时且中子在质心系中的发射角在 $(0, \pi)$ 之间均匀分布和各向同性发射时, 中子在实验室系下的动能分布, 二者的平均值大小相等。图 4.15 显示了当中子在质心系中的发射角为均匀分布时, 中子在 ^{16}O 处于基态、第一、第二激发态时的动能分布。

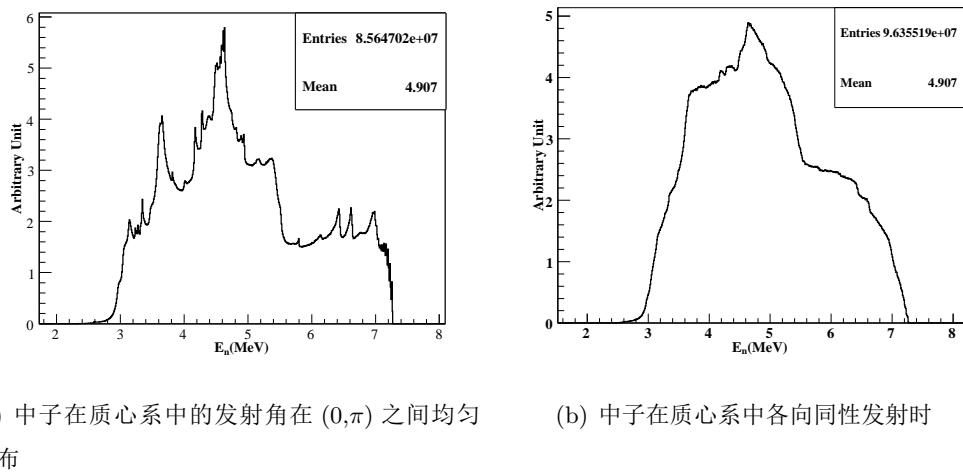


图 4.14: 当 ^{16}O 处于基态时, 中子在实验室里的动能分布。

分别模拟这两种动能分布的中子 100000 个在 20 吨 GdLS 中均匀分布, 发现产生的类似中微子信号特征的快、慢信号的比例分别为 52.98%, 53.7%。两者差别很小。下面我们以中子角分布为均匀分布为例, 挑出产生的类似中微子信号特征的快慢信号能谱分布, 如图 4.16。其中快信号能量分布中的第一个峰是中子和质子弹性碰撞产生的, 第二个峰是中子和 ^{12}C 非弹碰撞产生的 4.4 MeV 的 γ 。

因此, 我们可以根据公式 4.8 得到 ^{210}Po 每衰变一次产生的 (α, n) 的概率。

$$N_n(\text{per decay}) = \frac{\rho f_{^{13}\text{C}}}{13} N_A \sum_{\text{step}} \sigma(E_{\alpha}^{\text{step}}) d_{\text{step}} / N_{\text{decays}}, \quad (4.8)$$

其中 N_A 为阿伏伽德罗常数。对于 ^{16}O 处于基态、第一激发态、第二激发态时, 每一次 ^{210}Po 衰变产生的 (α, n) 的概率分别为: 3.8 e-8, 3.98 e-9, 3.7 e-10。然而也不是每发生一个 (α, n) 反应, 都能产生一个关联本底的信号, 对于反应后 ^{16}O 处于基态,

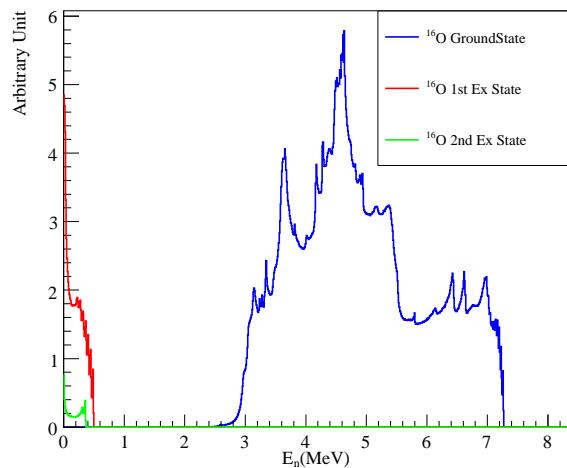


图 4.15: 在质心系中的发射角为均匀分布时, 中子在 ^{16}O 处于基态、第一、第二激发态时的动能分布。

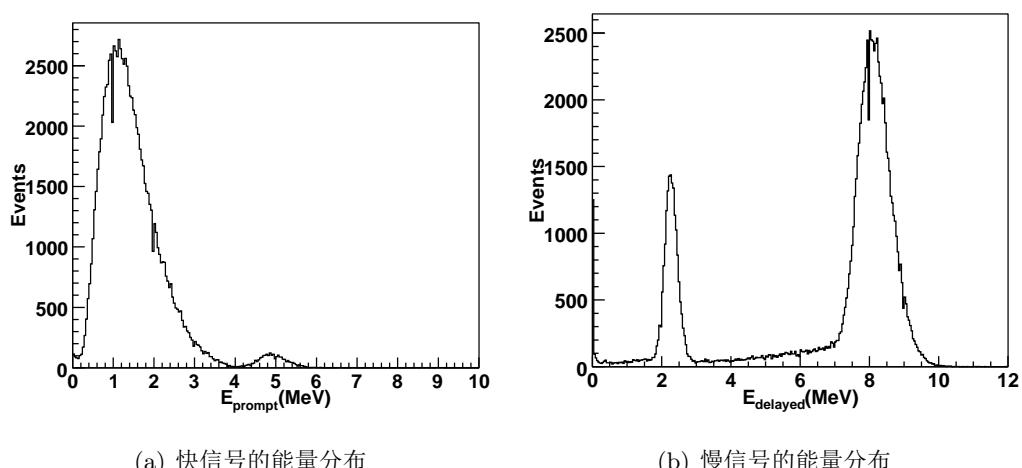


图 4.16: 动能分布为图 4.14 中(a)所示时, 快中子在 20 吨 GdLS 中产生的类似中微子信号特征的快慢信号能量分布。

产生关联本底的概率由前面可知为 53%，当 ^{16}O 处于激发态时，快信号 100% 满足快信号的时间特征，慢信号和俘获时间有 76% 的概率满足 [90]。因此每次 ^{210}Po 衰变产生的 (α, n) 反应的关联本底概率为 2.35 e-8 。同理，可以求出在普通液闪中每次 ^{210}Po 衰变产生的 (α, n) 反应的关联本底概率为 1.75 e-9 。

GdLS 和液闪中氡气含量要求

在 ^{210}Pb (半衰期为 22.3 年) 的衰变链上除了 ^{210}Po (半衰期为 138 天) 会放出一个 5.3 MeV 的 α ， ^{210}Bi (半衰期为 5.01 天) 也会放出一个末态能量为 1.16 MeV 的 β 。这个 β 会形成放射性单事例率，根据核数据库 [83] 可知，如果能量阈值在 1 MeV，则有 0.8% 的概率形成放射性单事例率。

大亚湾实验要求关联本底事例率小于 0.1%， ^{210}Bi 放射性单事例率本底小于 1 Hz。对于大亚湾远点的一个模块来说，每天每个模块的中微子事例数为 80 个，那么要求每天 (α, n) 反应产生的关联本底事例数小于 0.08 个。

如果 20 吨 GdLS 中， ^{210}Po 每天衰变 N 个原子，则有：

$$N * 2.35 \text{ e-8} < 0.08, \quad (4.9)$$

则 $N < 3.4 \text{ e6}$ ，即为 39 Bq。

如果 20 吨 GdLS 中， ^{210}Bi 每秒衰变 N 个原子，则有：

$$N * 0.8\% < 1, \quad (4.10)$$

则 $N < 125 \text{ Bq}$ 。

由于 ^{210}Pb 的半衰期为 22.3 年，可以认为在探测器运行的三年时间内， $^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ 的衰变是处于衰变平衡态的。因此根据上面的计算可知，该衰变链的衰变率应小于 39 Bq。在 20 吨 GdLS 中， ^{222}Rn 在很短的时间内全部衰变成 ^{210}Pb ，可以认为开始溶解在 GdLS 中的 ^{222}Rn 的原子数全部衰变成 ^{210}Pb 的原子数，二者数量相等。因此 ^{210}Pb 或者 ^{222}Rn 在 20 吨 GdLS 中的原子个数应小于 $3.4 \text{ e6} * 22.3 * 365 / \ln 2 = 3.9 \text{ e10}$ ，即每吨 GdLS 中的氡原子个数小于 1.95 e9 。

同理可得到 LS 中的氡气含量要求为：每吨氡原子个数应小于 6.35 e9 。

GdLS 和液闪生产和存储过程中引入的氡气含量估算

假设生产 GdLS 和 LS 的五号厅在通风换气后氡气浓度为 $25 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ，生产每一批次液闪的时间为 1 天，桶体积为 4300 L，桶部上方 30% 的体积是空气，假设桶部上方的氡原子全部衰变成 ^{210}Pb 在液闪中存储起来，则一批次的液闪在混制过程中会溶入的 ^{210}Pb 的原子个数(或者是 ^{222}Rn 的原子个数)为：

$$4.3 \text{ m}^3 * 30\% * (25 \text{ Bq}/\text{m}^3) * (3.82 * 24 * 3600 / \ln 2) * (1 - \exp(-1 * \ln 2 / 3.82)) = 2.57 \text{ e 6}, \quad (4.11)$$

每批次的液闪重为 2.6 吨，所以每吨氡原子个数为 1 e 6 ，小于 1.95 e 9 。

200 吨 GdLS 分别存在 5 个有机玻璃的存储罐中，中心探测器模块对漏率的要求为小于 4.2 e-2 cc/sec ，假设存储罐的漏率为 4.2 e-2 cc/sec ，且在 2 年的存储过程中漏进的氡气全部进入 GdLS 中，则 40 吨液闪的氡含量为：

$$4.2 \text{ e-2} * 1 \text{ e-6} \text{ m}^3 * (25 \text{ Bq}/\text{m}^3) * (3.82 * 24 * 3600 / \ln 2) * (2 * 365 * 24 * 3600) = 3.15 \text{ e 7}, \quad (4.12)$$

因此 GdLS 在存储过程中每吨引入的氡原子个数为 7.9 e 5 ，也小于 GdLS 要求的 1.95 e 9 。

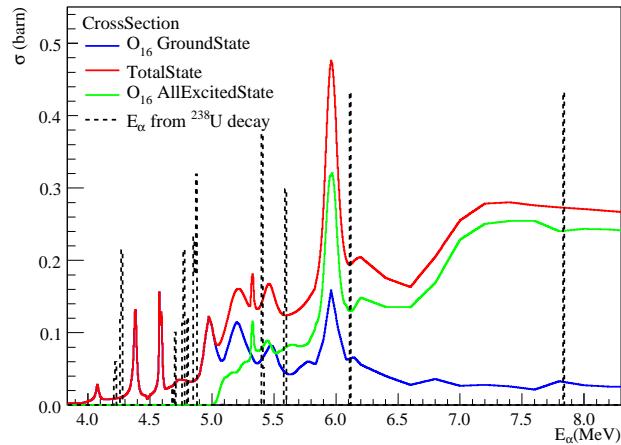
200 吨液闪是存储在约为 0.2 mm 厚的 PA 袋里，假设氡气在 PA 袋里的渗透率为 $9000 \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 * \text{d} * \text{bar})$ ，则可以估算出由于氡渗透引入的氡原子每吨含量为 2 e 8 ，小于液闪中要求的每吨 6.35 e 9 个氡原子个数。

综上可得，即使在最坏的情况下，液闪引入的氡气含量也能满足大亚湾物理需求。

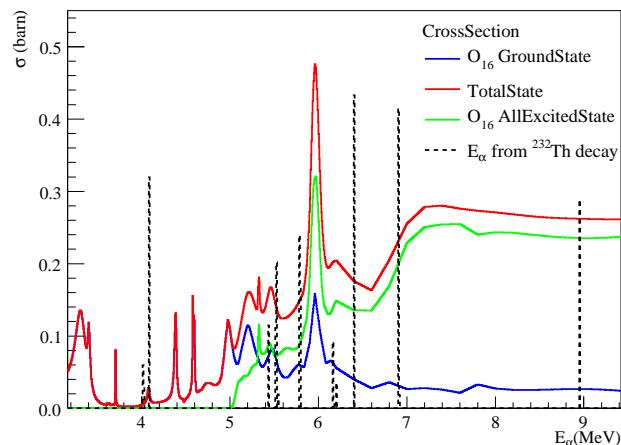
4.3.2 液闪中的天然放射系引入的 (α, n) 关联本底

液闪中的天然放射系 ^{238}U 、 ^{232}Th 在衰变过程中，自身及其子核也会放出不同能量的 α ，如图 4.17 所示，是 ^{238}U 、 ^{232}Th 在衰变过程中放出的 α 能量及其分支比，相应的还有 (α, n) 反应的截面。

假设 Gd 在生产过程中转换效率为 70%，含 0.1% Gd 浓度的 20 吨 GdLS 需要 68 ($20/0.42/0.7$) 千克 $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 。同时需要 70 千克的发光物质 PPO。在生产过程中，假设所有的 ^{238}U 、 ^{232}Th 都进入 GdLS 中，则 $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 中 1 ppb 的 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 在 20 吨 GdLS 中的浓度都是 3.4 e-3 ppb ，PPO 中 1 ppb 的



(a) ^{238}U



(b) ^{232}Th

图 4.17: ^{238}U 和 ^{232}Th 在衰变过程中放出的 α 能量及其分支比, 相应的还有 (α, n) 反应的截面。

^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 在 20 吨 GdLS 中的浓度也都是 3.5 e-3 ppb 。根据前面的计算可以得到，这些放射性引入的 AD 单事例率大小及其每年的关联本底大小。如表 4.3，列出了单位活度的放射性引入的本底个数。根据物理需求，可以对液闪中原材料放射性含量提出以下要求：

- $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 的铀、钍含量加起来要小于 4 ppb。
- PPO 中的铀、钍含量加起来也要小于 4 ppb。

Raw Material	Isotopes	Concentration	AD 单事例率 (Hz)	AD 每年的关联本底
$\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	^{238}U	1 ppb	1.05	8.5
	^{232}Th	1 ppb	0.4	4.6
	^{40}K	1 ppb	4.9	0
PPO	^{238}U	1 ppb	1.1	8.8
	^{232}Th	1 ppb	0.42	4.7
	^{40}K	1 ppb	5.0	0

表 4.3: 单位活度的液闪原材料的天然放射性在大亚湾 AD 单事例率和关联本底的贡献。

4.4 本章小结

本章经行了大量大亚湾中心探测器天然放射性本底的模拟研究，提出了掺钆液闪、液闪、PMT、自动刻度装置，支撑结构，焊料等关键部件的天然放射性设计指标，为合作组采用，为大亚湾探测器的设计和建造提供了重要依据。特别研究了 (α, n) 关联本底的贡献。

第五章 低本底反康普顿伽马谱仪的研制

伽马谱仪是一种核物理探测器，通过测量样品中放射性同位素衰变释放的伽马能量和计数，以确定材料中的痕量放射性种类及其活度。与其它痕量放射性测量方法相比，伽马谱仪适用范围广，分析周期短，对样品无破坏性，测量结果精确，应用最为广泛。

$\text{NaI}(\text{Tl}) \gamma$ 闪烁谱仪是伽马谱仪中相当成熟和普及的方法，制造容易，装置简单，使用方便，价格低廉而且探测效率高，但是能量分辨率太差，难于胜任分析核素较多、谱线较复杂的样品。随着半导体技术的发展，半导体探测器及伽玛能谱分析仪已经历了半个多世纪的不断发展，探测器种类不断丰富，性能不断提高，而信号处理则经历了 NIM 组合式、模拟化集成式谱仪直到当今先进的数字化谱仪。

高纯锗探测器实质上是一个工作介质是固体的电离室。带电粒子在半导体探测器内产生一对电子-空穴对所需要的能量，在锗中是 2.8 eV，在硅中是 3.6 eV，然而在气体中产生一对电子离子对所需要的能量为 30 eV，比半导体探测器高了一个数量级。因此，沉积相同的能量，产生的电荷数的相对统计涨落比气体小很多，所以它的能量分辨率很高。此外，它还具有好的位置分辨，宽的线性范围，快的响应时间，被广泛应用于世界各国的粒子物理与核物理实验、天体物理、宇宙线科学、核医学领域的 CT 及其他数字图像系统、数字成像技术领域。

伽马谱仪研制的目的主要有以下几个方面：

- 痕量放射性测量具有极为广泛的应用。探测水平的高低直接制约着相关领域的研究水平。国内测量水平与国际先进水平差距很大。
- 大亚湾中心探测器是国内第一个低放射性本底的大型探测器，研制过程中，关键材料的测量国内无能为力，大量样品寄往美国合作单位(伯克利)测量，且占用大

量机时。

- 暗物质实验、 $0\nu\beta\beta$ 实验、低能太阳中微子实验等的要求比大亚湾实验要严格 2 个数量级以上。

我们研制的低本底 Ge γ 谱仪，前期研究达到积分本底 $\leq 0.5 \text{ cps}/100 \text{ cm}^3 \text{ Ge}$ (30cpm)。后期设备完善后将达到 $\leq 0.01 \text{ cps}/100 \text{ cm}^3 \text{ Ge}$ 。本设备定位于通用的地面实验室，通过自行设计反康，被动屏蔽体，宇宙线 Veto 等达到设计指标。

5.1 伽马谱仪的工作原理及组成

Ge 晶体的纯度为 10^{10} 个原子/ cm^3 ，当 P, N 电极加上适当负偏压后，整块晶体都成了耗尽层。伽马入射到耗尽内时，根据光电效应，康普顿散射、正负电子对效应的截面，产生次级的电子。电子损失能量，产生大量的电子空穴对，电子和空穴在外电场作用下向两极漂移，一个电荷灵敏前放把收集到的电荷转成电压幅度输出来。输出的电压幅度正比于产生的电子空穴对的数目，也就是正比于伽马在 Ge 晶体内的沉积能量。这就是 Ge 晶体用于伽马能量测量的原理。

由于 Ge 晶体的禁带宽度仅有 0.67 eV ，Ge 晶体必须在低温下工作，才能减少热激发产生的本征载流子，它们是反向电流的主要组成部分。对反向电流要求越小越好，因为信号是叠加在反向电流上的，反向电流直接影响信噪比及能量分辨。反向电流的涨落是探测器噪声的主要来源，一般要求在工作电压下反向电流不超过 $1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ 。传统的 Ge 晶体的致冷方式都是采用液氮致冷，虽然可靠，但是存在一些固有的局限性：需要定期补充液氮，需要大体积的液氮存储罐和专门的液氮传输装置，存在一定的安全隐患，还会造成液氮的浪费。鉴于此，世界上两大高纯锗探测器的制造商 ORTEC 和 Canberra 都纷纷推出了电致冷技术。图 5.1 所示是 ORTEC 的第三代电致冷产品 [91]。致冷的压缩机和 Ge 晶体之间采用软管相连。重量轻，结构紧凑，避免了使用液氮的不便和可能的安全隐患。但是电致冷在 500 keV 以下时分辨率下降，只能保证在液氮情况下的 10% 内，在 500 keV 以上分辨率没有影响。由于我们研制的伽马谱仪主要用来测量材料的天然放射性的，在 500 keV 以下还有很多感兴趣的峰位，因此我们仍然采用传统的液氮致冷方式。



图 5.1: ORTEC 第三代电致冷产品。

入射 γ 和 Ge 晶体发生康普顿散射时，散射的 γ 有一定的概率逃逸出 Ge 晶体。由于入射 γ 只将部分能量传递给电子，因此不能在该 γ 的全能峰上产生计数，而是在全能峰的左侧产生一个连续的康普顿坪。峰康比的定义为全能峰中心道的最大计数与康普顿坪的平均计数之比。因为在测量较复杂的 γ 能谱时，较低能量的 γ 的全能峰往往会叠加在较高能量的 γ 的康普顿坪上，因此峰康比主要是表明一台伽玛谱仪在存在高能强峰的情况下，探测低能弱峰的能力。康普顿坪的平均计数是指在康普顿连续谱比较平坦的能量区内的平均计数。对 ^{137}Cs 的 0.662 MeV γ ，这个能区大约在 358 keV 到 382 keV 之间。对 ^{60}Co 的 1.33 MeV γ ，这个能区大约在 1.040 keV 到 1.096 keV 之间。通常定义伽马谱仪的峰康比都以 ^{60}Co 的 1.33 MeV 能量峰的指标为参照。

如果被散射的 γ 可以被 Ge 晶体周围的探测器探测到，并产生反符合信号，使 Ge 晶体这次探测到的信号不被记录下来，则可以起到抑制康普顿效应，提高峰康比的作用。这个周围的探测器被称为反康普顿探测器。反康普顿探测器一方面去除外部环境的伽马本底，另一方面将从主探测器上散射出来的康普顿伽马射线反符合掉。

根据第一章的低本底技术，我们知道还需要各种屏蔽材料才能减少外部环境引入的 γ 和中子本底。为了减少宇宙线引入的本底影响，可能还需要宇宙线的反符合探测器。伽马谱仪最开始的设计示意图如图 5.2。正中心的圆柱形为高纯锗探头。样品室为长方体，长宽为 140 mm，高 195 mm。厚度 9 cm 的 CsI 晶体做为反康普顿探测器包在锗探头周围。外面依次是 15 cm 厚的无氧铜屏蔽层、20 cm 厚的含硼塑料、5 cm 厚的不锈钢支架、20 cm 厚的铅屏蔽层、以及 5 cm 厚的塑料闪烁体做宇宙线反符合探测器。高纯

锗探头与下方的液氮罐相连，可以向下撤出屏蔽室，以放置样品。

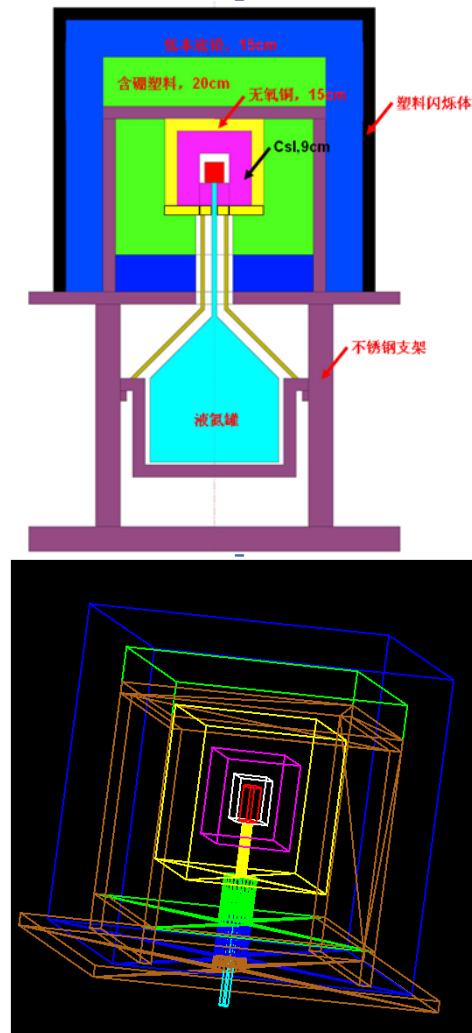


图 5.2: 上图为伽马谱仪的原始设计示意图，下图是用 Geant4 的图形软件 HepRepFile 显示的该谱仪的三维立体图。

现对各个部分的功能做简要介绍：

- (1)最里面的是 HPGe 探测器，是目前能量分辨最好的探测器，通过冷指使 Ge 晶体和液氮的温度保持一致。
- (2)反康普顿探测器通常采用探测效率高、本身具有极低放射性的 NaI (Tl) 闪烁晶体探测器。NaI 有很高的发光效率，为 38 光子/keV。通过光电倍增管 (PMT) 与 NaI 晶

体耦合，可以将光信号转化为电信号进行放大输出。为减小死区，一般采用环形（或称井形）NaI 探测器，由整块 NaI 单晶中间挖出高纯锗探头和被测样品占用的空间，整个结构比较紧凑。 γ 射线穿透力较强，反康普顿探测器需有一定厚度，以提高对 γ 的探测效率。一般常用的较大的 NaI 单晶为 9*9 英寸，扣去 Ge 探头的直径 8 cm，剩下的 NaI 晶体厚度为 7 cm，对 1 MeV 的伽马有 1.3 倍的吸收长度（1 MeV 伽马在水中的吸收长度为 20 cm，NaI 密度是水的 3.67 倍，所以 7 cm 厚的 NaI 对应 $7*3.67/20$ 倍的吸收长度）。

其它的闪烁晶体探测器中，CsI 与 NaI 比较，具有密度大，不宜潮解的优点，同时晶体尺寸也可以更大。NaI 的密度为 3.67 g/cm^3 ，CsI 为 4.51 g/cm^3 ，可以以较紧凑的结构得到较大的吸收长度。BES-III 探测器使用了约 1 万块 CsI 晶体做为量能器。CsI 一般不用于低本底探测器，因为它本身有 ^{137}Cs 放射性本底。 ^{137}Cs 是一种人工放射性，在 60 年代，频繁的核爆试验产生了大量 ^{137}Cs ，随高空灰尘散布到全球。其放射性虽然不足以对生物产生影响，但是对极低本底探测器影响很大。由于是同一种化学元素， ^{137}Cs 很难从 CsI 晶体中去除。近年来，通过严格控制生产流程，发展出了低本底的 CsI，根据台湾 TEXONO 中微子实验的测试结果，其 ^{137}Cs 放射性为 3.8 mBq/kg 。如采用同样的 CsI 晶体，将对 HPGe 探测器形成 0.3 cpm 的伽马本底，再考虑到 CsI 探测器对本身放射性中 β 成分的反符合，对谱仪的积分本底贡献将小于 0.1 cpm，可以满足我们的要求。因此，我们考虑采用低本底 CsI 晶体做反康探测器。低本底 CsI 晶体的单价大约为 35 元/cm^3 ，与采用 NaI 晶体相当。为增加光输出，晶体外贴反射率 99% 以上的 ESR 膜或铝膜。这样，我们可以将样品室从 $8*14 \text{ cm}$ 增大到 $14*14 \text{ cm}$ 或更大，反康晶体厚度从 7 cm 增加到 9 cm，加上 CsI 的密度大，为 2 倍的伽马吸收长度，可将伽马逃逸概率降低 1 倍，完全可以弥补拼装晶体带来的效率下降，并有可能进一步提高峰康比。

(3) 环境中有大量的天然放射性本底，来自灰尘、空气中的氡气、混凝土、岩石、玻璃、钢材等等。 α 和 β 的穿透力弱，主要本底来自 γ 射线。例如，北京地区的氡气年平均值约为 14 Bq/m^3 ，如不加任何屏蔽，仅氡气对高纯锗探头的本底贡献就超过 10 Hz ，或 600 cpm。天然放射性产生的伽马射线在 MeV 量级，这一能区的伽马在材料中主要通过康普顿散射衰减，因此衰减系数基本上正比于电子密度，或者说正比于材料的密度，与材料种类关系不大。通常采用密度高的铅或铜来屏蔽伽马本底，在相同吸收长度

下材料用量小。屏蔽材料本身应是低本底的。无氧铜的放射性本底很低，最好可以做到 $1 \mu \text{Bq/kg}$ ，价格约为 10 万元/吨。铅的价格相对便宜，一般好的伽马谱仪都采用 10 吨量级的铅作为屏蔽体。与大多数天然矿石一样，铅矿中一般也含有较高的铀放射性，其中 ^{238}U 衰变产生 ^{210}Pb 。铅矿冶炼提纯后可基本去除 ^{238}U ，但无法去除 ^{210}Pb ，它的子体会产生轫致辐射，必须经过几个半衰期才能衰减完 (^{210}Pb 的半衰期为 22 年)。因此高质量的屏蔽铅室都采用“老铅”。由于老铅资源少，价格贵，我们采用技术上可靠的无氧铜作为内屏蔽层，对铅本身的放射性要求并不太高。

宇宙线在物质中会产生大量中子，中子漂移到主探测器也会形成本底，或者在原子核上俘获将材料活化，形成放射性本底。中子较难屏蔽，大部分伽马谱仪没有专门的中子屏蔽，但是对我们要求的极低本底伽马谱仪，必须加以考虑。钆和镥的中子吸收截面非常大，但在吸收中子后放出能量较高的伽马，形成新的本底，因此不能采用。一般采用对中子吸收截面较大，辐射低的硼做为中子屏蔽材料。常见的有含硼石蜡或含硼塑料。石蜡含质子较多，对中子慢化能力强于塑料。塑料则机械较简单。散裂中子源研制的中子屏蔽板采用碳化硼掺入塑料，已完成样品制作，含硼量为 28%，可供借鉴。硼在吸收中子后放出的 480 keV 的伽马很容易被里层的 15 cm 厚的无氧铜屏蔽。

本装置将采用本底低的无氧铜为内层屏蔽，中间采用含硼塑料屏蔽中子，最外层用价格较低的铅屏蔽伽马射线。含硼塑料放在铅的里面是因为铅的用量较大，宇宙线在铅中也会产生大量中子。环境伽马放射性的总量很难估计，随不同环境甚至季节变化非常大。从后面我们的测量可知，未加任何屏蔽的 6*6 cm 高纯锗探头测到的在 0–3 MeV 范围内的积分本底为 280 Hz。我们要求的积分本底为小于 0.01 Hz。本装置设计采用 15 cm 的无氧铜，对应约 6.5 倍吸收长度，将伽马衰减约 600 倍。最外层的铅也为 15 cm，对应约 8.5 倍吸收长度，将伽马衰减约 5000 倍。这样基本上可以把外界环境的伽马完全屏蔽掉，装置的积分本底将主要来自屏蔽材料本身。为了支撑屏蔽材料，中间有不锈钢支撑系统。

(4) 宇宙线除产生中子外，还会产生大量其它本底信号，例如半衰期为微秒量级的同位素、伽马、强子等。为减少宇宙线产生的本底，还需要建立主动屏蔽，即宇宙线反符合探测器，安置在谱仪的最外层。反符合探测器对宇宙线的鉴别效率应接近 100%，但对分辨率要求不高，可以采用常见的塑料闪烁体探测器，用光电倍增管读出。塑料闪烁体是常见探测器，BES-III 飞行时间探测器、L3+Cosmic 等实验上有大量应用。宇宙线

还可以击中周围的物质，如实验室的墙壁，产生轫致光子和中子，轫致光子是瞬发的，能谱很多是分布在低能区的峰。因此屏蔽体外的轫致光子很难穿过屏蔽层。宇宙线在周围物质中产生的中子和宇宙线在铅中产生的中子一样会被含硼塑料吸收。目前由于经费限制，只做到无氧铜内，而且 CsI 晶体先用廉价的塑料闪烁体代替。

5.2 伽马谱仪的模拟软件包 **HPGe**

5.2.1 产生子

天然放射性 ^{238}U , ^{232}Th 产生子

在第四章中， ^{238}U 和 ^{232}Th 是把相邻的短寿命的核素组合在一起作为一个产生子事例，它们各自衰变产生的粒子时间间隔按照核素的半衰期指数抽样。然而，这种所谓的短寿命的核素有从几秒到几天的，相对于探测器的成形时间来说(几百 ns 或者几 us 来说)，产生子事例中某些核素的衰变应该是独立的，和它的上一个母核衰变是无时间关联的，对于大亚湾中心探测器来说，我们可以通过 PMT 的时间响应来划分子事例。对于 HPGe 探测器来说，前放的成形时间在 10 us 的量级，模拟不区分一个产生子事例中电子和空穴的产生时间，只记录下这次事例在 Ge 晶体中的沉积能量和，所以越靠近探头的部分，比如塑闪中的放射性本底，样品室中的氡气本底最好把子核拆开模拟。否则就会发生子事例的堆积，出现大于 3 MeV 以上的事例。

^{238}U 有 14 个级联衰变的核素，如图 5.3。每个子核被当做一个独立的产生子事例，以相同的概率产生。这样，一次 ^{238}U 衰变对应的产生子事例个数为 14。 ^{232}Th 有 10 个级联衰变的核素，如图 5.3。其中 ^{212}Bi 有 64% 的分支比发生 β 衰变生成 ^{212}Po ，而且 ^{212}Po 发生 α 衰变到稳定的 ^{208}Pb 的半衰期只有 300 ns。因此 ^{212}Po 和 ^{212}Bi 被组合成一个产生子事例，一次 ^{232}Th 衰变，有 64% 的概率产生。 ^{212}Po 和 ^{208}Tl 被组合成另外一个产生子事例，一次 ^{232}Th 衰变，有 36% 的概率产生。所以，一次 ^{232}Th 衰变对应的产生子事例个数为 9。

氡气产生子

分布在样品室中的氡气就在 Ge 晶体旁边，所以从 ^{222}Rn 开始，后续衰变链上每一个子核都做一个独立的产生子事例。一次 ^{222}Rn 衰变，对应的产生子事例为 8。

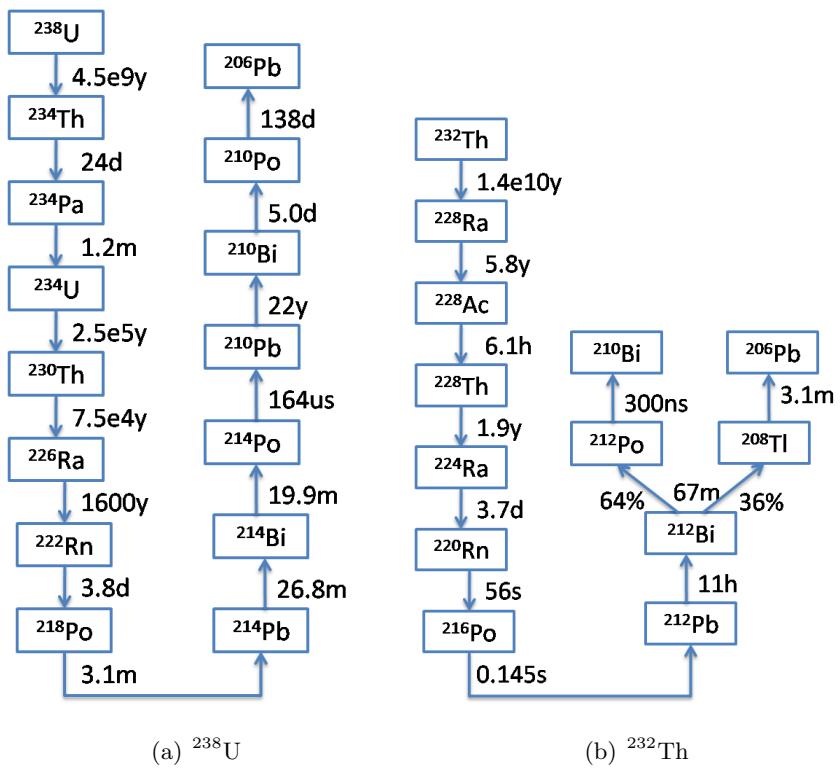


图 5.3: ^{238}U 和 ^{232}Th 的衰变链。

宇宙线产生子

宇宙线在海平面的通量约为 $200\text{Hz}/m^2$ ，平均动能为 6.8 GeV。图 5.4 为 Muon 的动能， θ ， φ 分布。从图中分别抽样 Muon 的能量和方向信息，在设备的外表面处抽样 Muon 的产生位置信息，即可得到 Muon 的产生子。

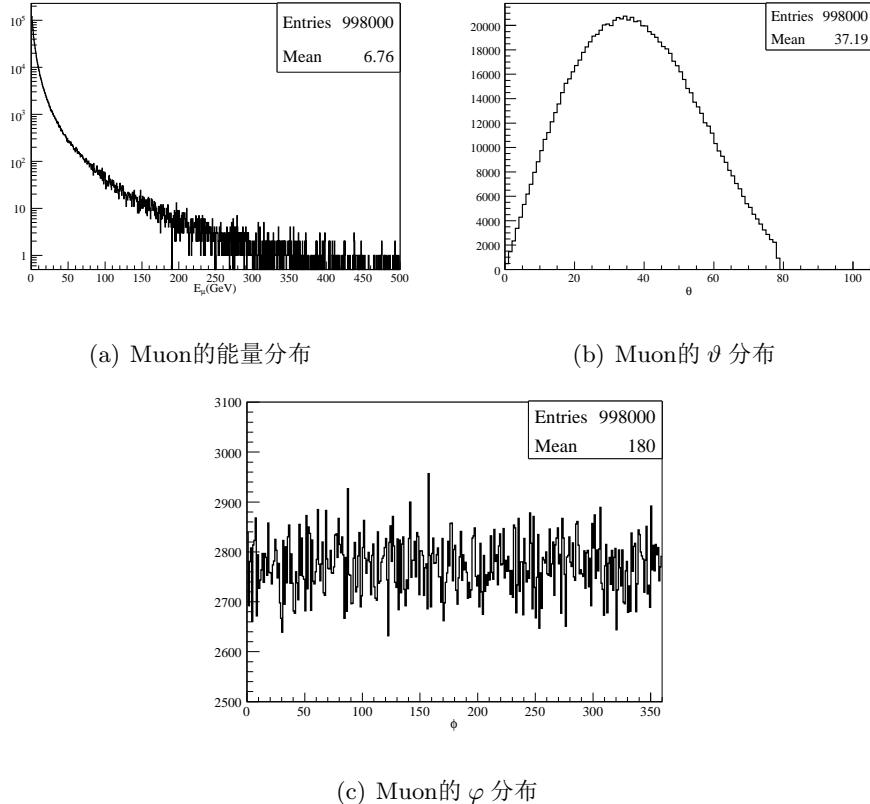


图 5.4: Muon 在海平面的能量， ϑ ， φ 分布。

5.2.2 探测器几何显示

为了防止写代码过程由于疏忽，出现几何的 overlap，或者几何位置、体积的错误，很有必要对探测器的几何进行显示，检查几何是否和自己原先的设计一样，以保证后续工作的准确高效性。Geant4 里的自带的几何显示软件 HepRepFile 可以用来显示探测器的三维、俯视和侧视图。图 Fig. 5.5 就是伽马谱仪前期研究的三维图和俯视图。其中，铜和反康的厚度都可通过外面的接口进行修改，而不需要重新编译。

图中黄色部分代表无氧铜，无氧铜里的白色部分为空气，表示不同块铜板之间的缝隙。里面紫红色部分为反康探测器，反康探测器里的八个圆柱代表最开始设计时光电倍增管的位置。小圆柱的底部分别代表 5 mm 厚的玻璃窗，玻璃窗里面是 2 mm 厚的光阴极材料。再往里白色的长方体代表样品室，高纯锗探测器的探头就放置在样品室里面。

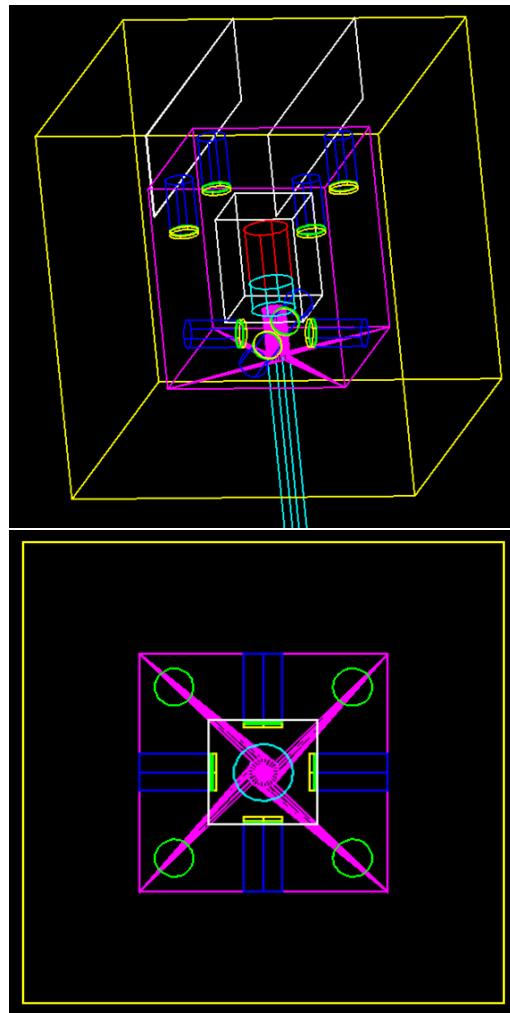


图 5.5: 上图伽马谱仪前期研究的三维图, 下图为该谱仪的俯视图, 圆柱中的黄色部分代表 5 mm 厚的窗玻璃, 绿色部分代表 2 mm 厚的光阴极。上图中无氧铜里的白色部分为空气的缝隙。

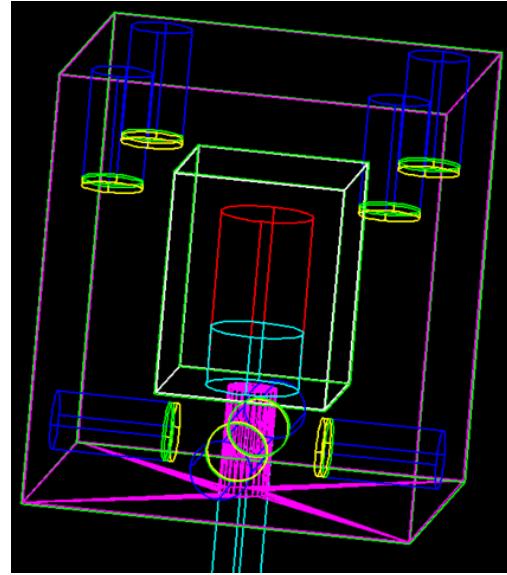


图 5.6: 在反康探测器的内外表面加上厚度为 1 mm 的 ESR 反射膜。

5.2.3 物理过程

物理过程中除了构造电磁和强子相互作用外, 还构造了光学过程。定义光学光子的波长范围为: 200 nm—800 nm。光子的产生过程包括: 闪烁光过程, 切伦科夫光过程。光子的传播过程包括: 瑞利散射、吸收重发射、边界效应。光子的收集过程: PMT 的简单模型。

塑料闪烁体的光产额为: 9000 / MeV, 发光时间只定义了快成分的时间常数 1.6 ns, 权重为 100%, 发射光谱是 bis-MSB 的发生光谱, 吸收重发射几率, 衰减长度, 折射率等与波长的函数都和大亚湾液闪一样。

定义 PMT 的几何形状为圆柱体, 直径为 50 mm, 高为 100 mm。设置光电倍增管的 2 mm 厚的光阴极作为灵敏探测器, 简单起见, 定义了光阴极对所有波长的光子 (200 nm—800 nm) 量子效率为 50%, 反射率为 0。PMT 玻璃窗的折射率为 1.458, 衰减长度随波长的增加在 10^{-7} —2 m 之间变化。PMT 其他部分的材料性质类似黑体, 反射率为 1%, 衰减长度为 1 mm。

反康探测器内外表面是 1 mm 厚的 ESR 膜如图 5.6, 它们与塑料闪烁体接触的表面定义为光学表面。光学表面的反射率在 200 nm—800 nm 的变化如图 5.7 所示, 衰减长

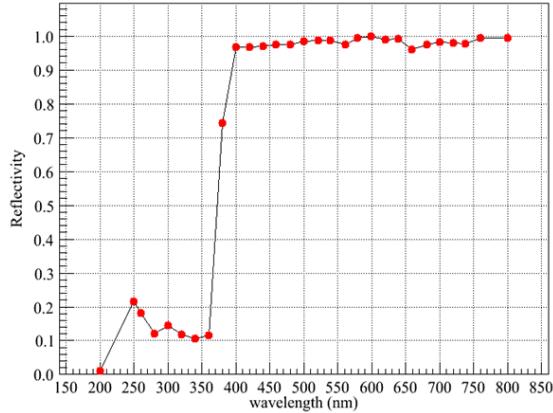


图 5.7: ESR 反射膜的折射率随波长的变化。

度均为 10^{-3} mm。

无氧铜的反射率为 80%，折射率为 0，光子的衰减长度为 10^{-3} mm。

图 5.8 模拟了 50000 个 1.461 MeV 的伽马均匀分布在 Ge 探头上方直径为 2 cm，高为 2 cm 的圆柱体内各向同性发射，且塑料闪烁体在选择不同阈值 Veto 时，HPGe 上看到的能量沉积和峰康比。从图我们可以看到反康探测器的 Veto 阈值越低，峰康比越好。图中第一个峰在 0.217 MeV 对应的是反散射峰，指 1.461 MeV 的伽马进入反康发生康普顿散射，被散射的伽马在 θ 约为 180° ，跑回 Ge 晶体中，从而沉积全部能量被探测到。0.439 MeV 和 0.95 MeV 分别对应于双和单逃逸峰。0.511 MeV 的峰是由于 1.461 MeV 产生的圆柱体的材料是 Steel，那么 1.461 MeV 的伽马在 2 cm 厚的圆柱体内会由于正负电子对效应，产生 2 个 0.511 MeV 的伽马，其中一个伽马逃逸出圆柱体被 Ge 晶体探测到。当把 Steel 换成 Air 后，0.511 MeV 的伽马峰就消失了。1.243 MeV 对应于 1.461 MeV 的伽马的康普顿边沿，伽马多次散射会出现大于康普顿边的能量。

当沉积能量正确后，我们开始看光学过程的模拟。仍然是在 Ge 晶体上方产生 100000 个 1.461 MeV 的伽马事例，它们在反康上产生的总 pe 数分布，光子击中时间分布，产生光电子的光子波长分布如图 5.9。其中光子波长分布的低能端是切伦科夫光造成的。图 5.9 中的 (a) 只画出有光子数大于 0 的事例分布。图 5.10 表示 100000 个 1.461 MeV 事例在反康中的沉积能量和 PMT 收集到的总 pe 数的二维分布及其每个 PMT 上产生的 pe 数分布。

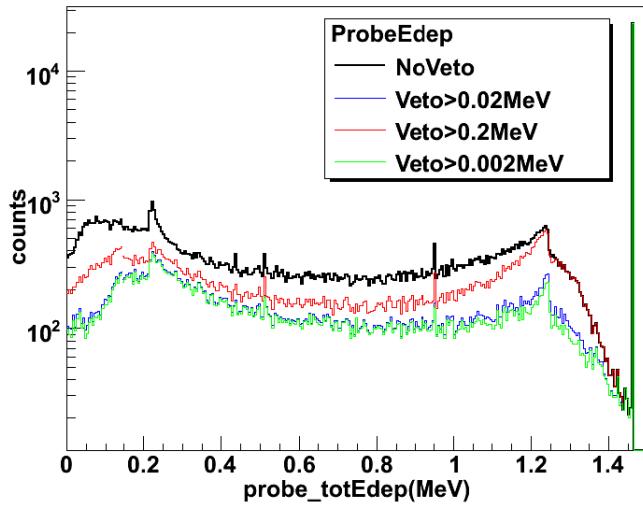


图 5.8: 塑料闪烁体在选择不同阈值 Veto 时, HPGe 上看到的能量沉积和峰康比。

从 5.10 可以看出, 在反康中沉积相同的能量, 有两条带状结构, 每条带弥散也比较大。它们分别是顶部和底部的 4 个 PMT 产生的。底部 4 个 PMT 开始设计的时候是担心从 Ge 晶体下面上来的本底辐射较大而用来 Veto 的, 这样做反而失去了反康本来的意义。下面过来的伽马应该靠底部的无氧铜屏蔽掉。当散射的伽马与底部的塑料闪烁体发生作用时, PMT 收集效率太低, 所需要设置的阈值也不同, 如果设置的阈值过低, 则 PMT 自身的暗噪声也会形成假的的反符合。后来决定把 PMT 放置在反康的塑料闪烁体外面, 增加铜的高度。

5.2.4 探测器设计的模拟优化

如果要使谱仪在 0 到 3 MeV 的积分本底达到 0.6 cpm (0.01Hz), 则需要降低岩石放射性和严格控制各种屏蔽材料的放射性。假设探测器四周岩石(或者实验室的墙壁)的厚度为 20 cm, 并在岩石中均匀撒点, 模拟放射性对 Ge 晶体本底的贡献。第一章, 我们知道 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 在地壳中的含量分别为 2.4 ppm, 9.6 ppm, 2.7 ppm。当岩石放射性与地壳放射性一样时, 表 5.1 列出了岩石放射性在无氧铜厚度分别为 5 cm、10 cm、15 cm 时对 Ge 晶体本底的模拟结果。当无氧铜厚度为 15 cm 的时候, 外界岩石对 Ge 晶体的贡献为 8.7×10^{-3} Hz, 才满足小于 0.01 Hz 的屏蔽水平。

表 5.2 给出单位活度的放射性在不同屏蔽材料和反康探测器中对 Ge 晶体的本底(0

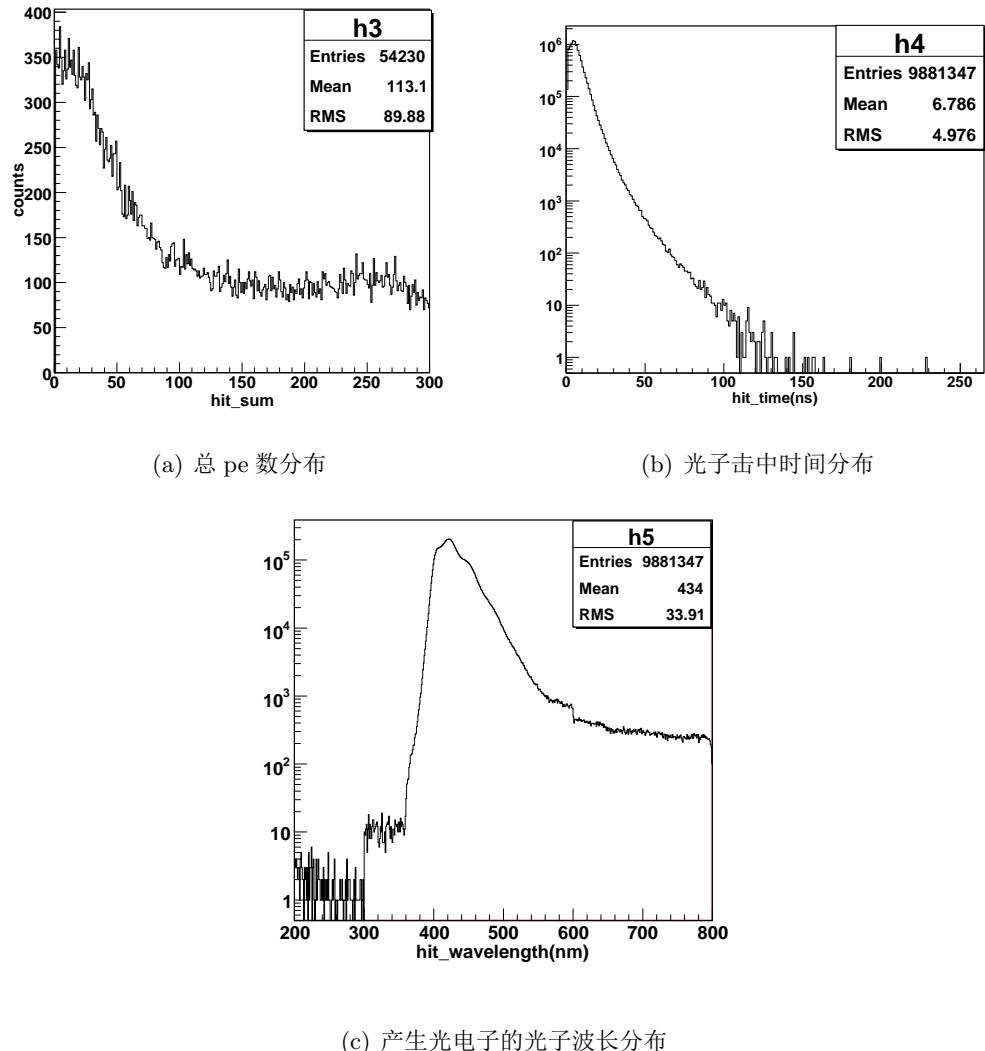


图 5.9: 模拟的 50000 个 1.461 MeV 事例在反康上产生的总 pe 数分布, 光子击中时间分布, 产生光电子的光子波长分布。

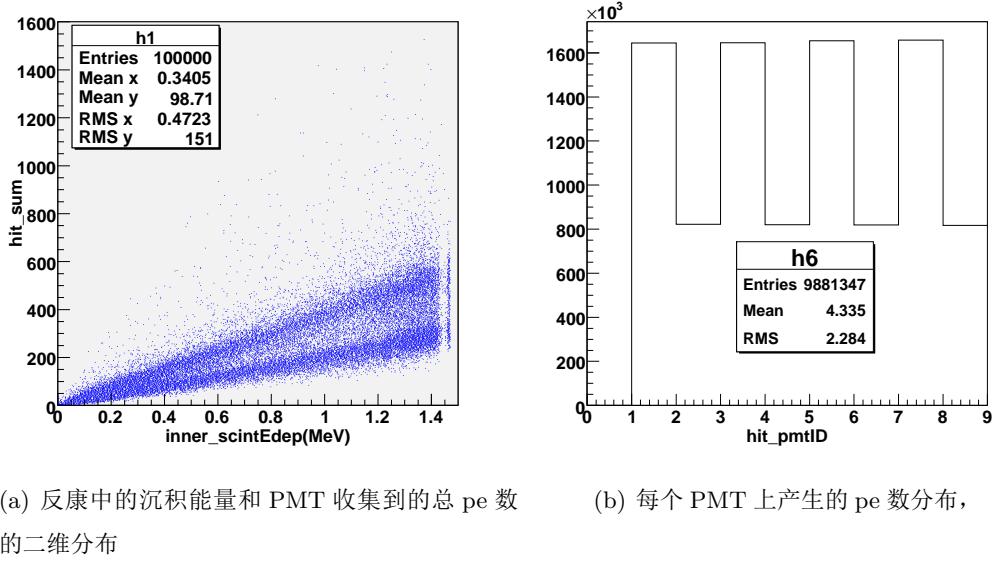


图 5.10: 模拟的 50000 个 1.461 MeV 事例在反康中的沉积能量和 PMT 收集到的总 pe 数的二维分布及其每个 PMT 上产生的 pe 数分布。其中 pmtID 为奇数的是上面 4 个 PMT, 偶数的是底部 4 个 PMT

表 5.1: 岩石放射性在不同无氧铜厚度下对 Ge 晶体的本底贡献。

无氧铜厚度(cm)	岩石质量(kg)	^{238}U Rate(Hz)	^{232}Th Rate(Hz)	^{40}K Rate(Hz)
5	1.928e4	8.64e-2	1.09e-2	4.65e-2
10	2.122e4	1.82e-2	1.08e-3	9.1e-3
15	2.257e4	7.2e-3	9.9e-5	1.39e-3

-3 MeV) 贡献。给出的放射性本底事例率中, 没有考虑反康探测器的 Veto 作用。因为当放射性事例在 Ge 上沉积能量满足条件的时候, 如果反康探测器上也有满足 veto 信号阈值的沉积能量, 则该事例就不会形成本底信号。所以表 5.2 和表 5.1 中给出的本底信号事例率会稍偏高。

由于反康探测器外部近 3 吨重的无氧铜会给安装带来很大的麻烦, 所以我们打算购买铜板堆成 15 cm 厚的铜屏蔽。不同铜板之间就会有空气缝隙。如果有正对 Ge 探头的

Sources	Thickness(cm)	Mass(kg)	Isotope	Purity	Rate(Hz)
Rock	20	2.257e4	U	1ppm	7.5e-4
			Th	1ppm	3.7e-5
			K	1ppm	5.8e-4
Shield Pb	15	1.42e4	U	1ppm	1.62e-2
			Th	1ppm	1.56e-2
			K	1ppm	3.4e-4
Shield Cu	15	1.96e3	U	1ppb	6.68e-2
			Th	1ppb	2.5e-2
			K	1ppb	0.11
Inner Veto	9 cm	35.14	U	1ppb	4.63e-2
			Th	1ppb	1.8e-2
			K	1ppb	3.8e-2
Sample Room		3e-3m ³	²²² Rn	25 Bq/m ³	5.17e-2

表 5.2: 不同材料的单位活度的放射性对 Ge 晶体的本底贡献

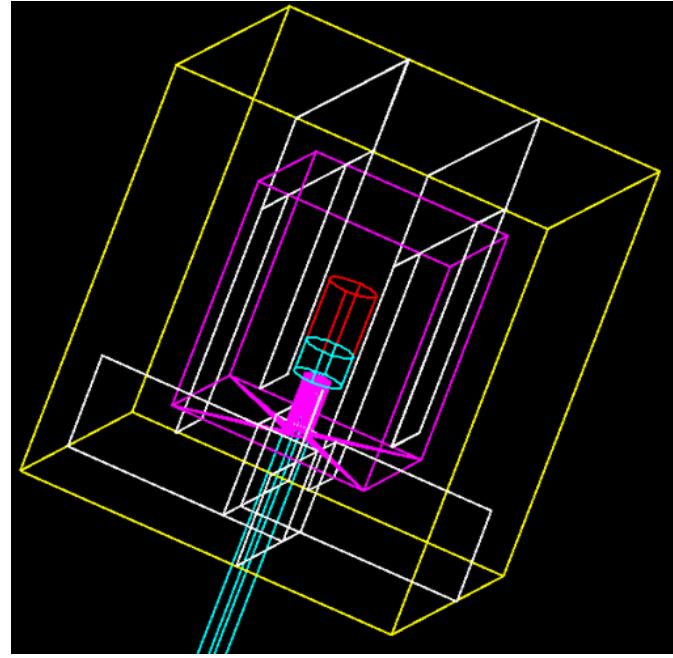


图 5.11: 铜里的白色部分为厚度为 0.2 mm 的空气薄层。

缝隙，则外部环境中的伽马将会沿着这个缝隙，毫无阻挡地直接入射到 Ge 探头中形成本底。因此我们把铜屏蔽体切割成如图 5.11 所示的样子，铜里的白色部分是厚度为 0.2 mm 的空气薄层。共 10 个 0.2 mm 的空气缝。通过模拟 ^{232}Th 和 ^{40}K 在铅中均匀撒点的情况，比较有无空气细缝时的本底贡献差异，发现在保持所有条件一样时，包括产生子的随机数种子，Geant4 模拟时的随机数种子完全一样时候， ^{40}K 的贡献完全一样， ^{232}Th 的差别可以忽略。但是要做到不同块无氧铜的缝隙只有 0.2 mm，对加工时的平整度提出很高要求，而且加工成本贵，加上每块无氧铜的质量也较重，不利于安装。最后，我们打算把铜分成更多块，每一块的质量不超过 25 kg，这样不需要利用吊车，人工就可以安装。前后两块铜的缝是错开的，没有直线的缝，如图 5.12 所示。

综上可得，我们设计的伽马谱仪结构如图 5.12 所示。

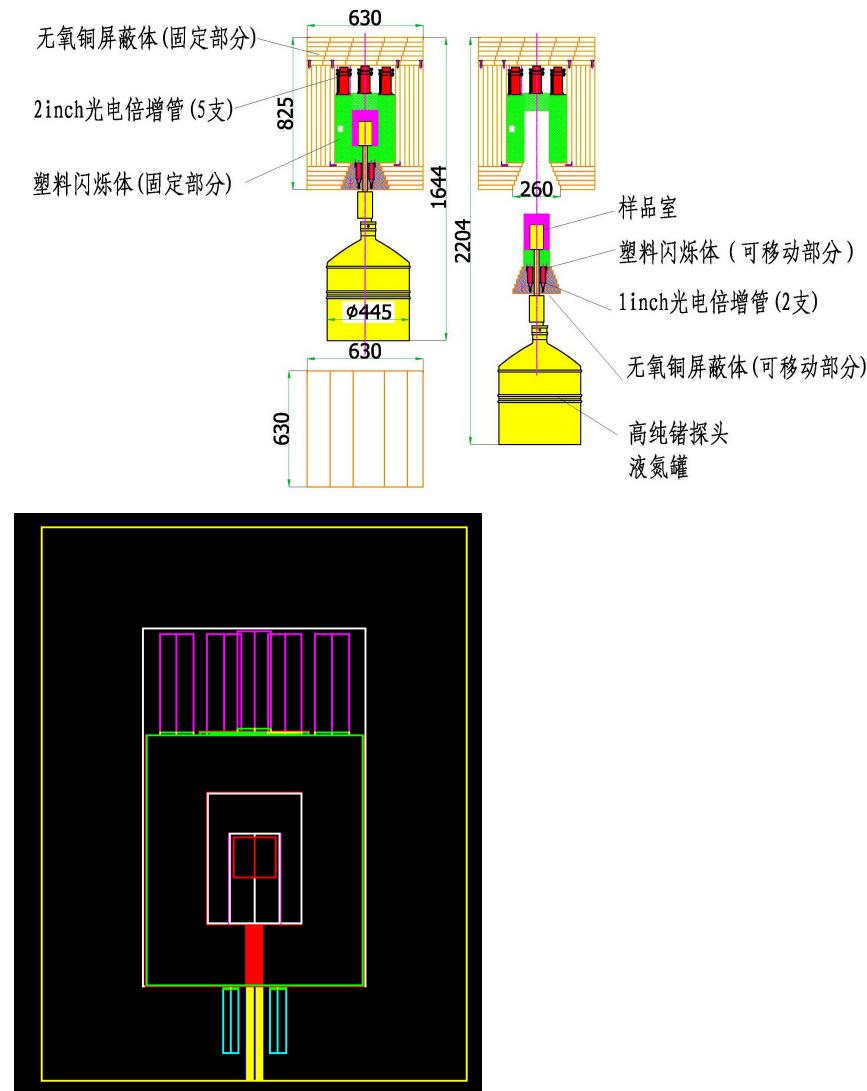


图 5.12: 上图为前期研究时伽马谱仪的设计示意图, 下图是用 HepRepFile 显示的该谱仪 X-Z 平面的投影。

5.3 伽马谱仪的研制

5.3.1 高纯锗探测器

为了购买低本底的高纯锗探测器，我们调研了世界上两大高纯锗探测器生产商 ORTEC 和 Canberra，充分比较了 ORTEC 公司生产的 GMX45 和 Canberra 公司生产的 GC4018 的 P 型晶体。根据他们的报价，Ge 晶体和前放的相对位置，售后等，选择了 Canberra 公司生产的标准同轴锗探测器 GC4018，它的相关参数如下：

- 端帽直径 76 mm，高 135 mm，Ge 晶体直径为 62.5 mm，高 60.5 mm，离端窗距离为 4.8 mm。
- 探测范围：40 keV–10 MeV。
- 分辨率：0.9 keV@ 122 keV，1.8 keV@ 1332 keV。
- 峰康比：62:1
- 相对效率：40%

同时配置的有垂直冷指，方便上下取放样品，30 L 液氮罐，2002 C 电荷灵敏前置放大器，前放和 Ge 探头是分开的，中间用冷指连接在一起，便于放置屏蔽体。如图 5.13 所示，我们购买的连接 Ge 探头和前放之间的长度为 10 英寸，即图中的 X 长度。Canberra 使用了低本底的材料来做 Ge 晶体的支撑机构，端窗，Ge 晶体室内部的其他结构。避免使用宇宙线能在其中产生大量中子的材料。这些低本底材料包括：99.999% 纯的铝，其中铀钍含量少于 1 ppb；99.99% 纯的铜，比标准无氧铜的等级高；⁶⁰Co 含量很低的不锈钢；合成碳等。

Ge 探头在装满液氮的罐子中冷却 8 个小时后，用图 5.14 所示的电路图进行测量。在无任何屏蔽的情况下，对周围环境的本底经行了 16 个小时的测量，测量结果如图 5.15 所示。用 ¹³⁷Cs 的 661.65 keV 的伽马和天然放射性核素 ⁴⁰K 的 1460.8 keV 的伽马进行了简单的能量刻度，线性拟合后得到的刻度结果为：0.36 keV/channel。积分本底(0-3 MeV)为：162 cps/100 cm³ Ge，通过外面无氧铜的被动屏蔽和反康探测器的 Veto 作用，使伽马谱仪达到设计指标。

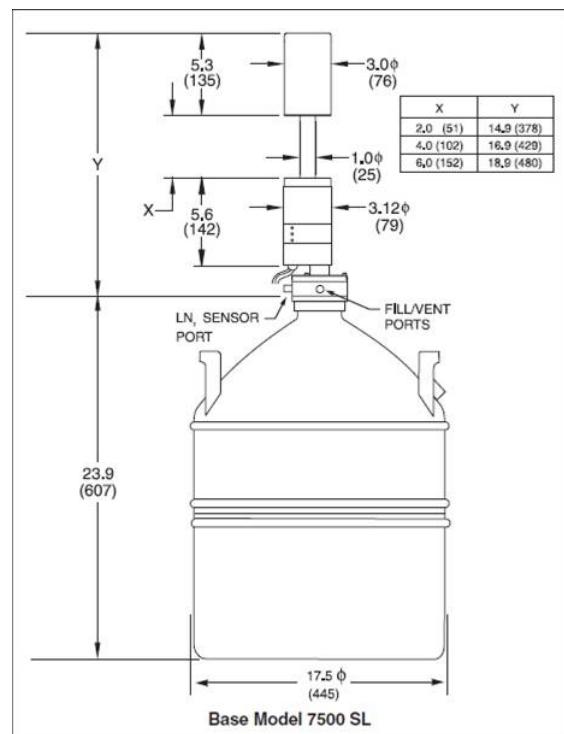


图 5.13: 高纯锗探测器的外部尺寸。



图 5.14: 高纯锗探测器的测试电路图。

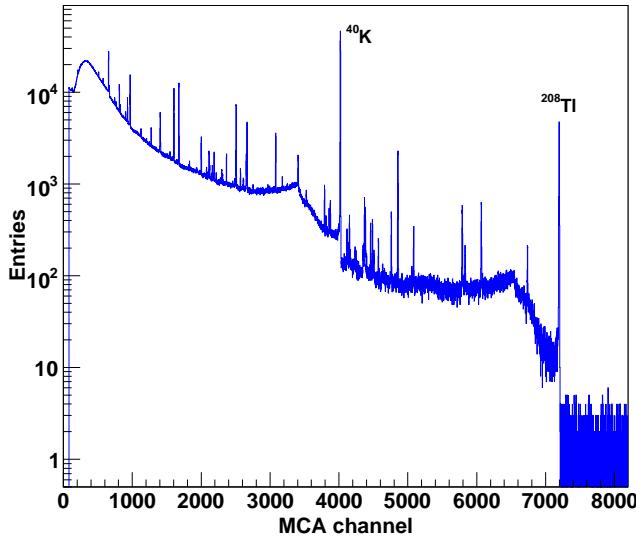


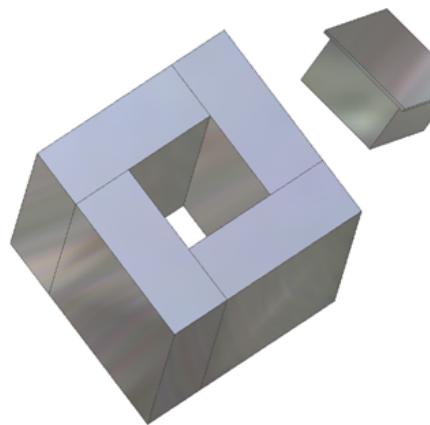
图 5.15: 在无任何屏蔽下, 高纯锗探头测到的周围环境本底的能谱分布。

5.3.2 反康探测器

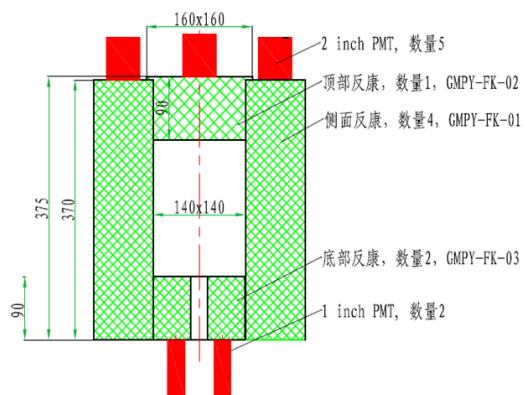
反康探测器由 7 块独立的塑料闪烁体分别独立包装 ESR 反射膜、遮光层和光电倍增管组成。其中侧面 4 块和顶面 1 块塑闪采用 2 英寸 PMT 读出, 底部 2 块小的塑闪采用 1 英寸 PMT 读出, 如图 5.16 是反康探测器的立体、侧视和俯视图。其中顶部塑闪的上面多出的 10 mm 边沿是用来挂在塑料闪烁体的四个侧面上, 否则需要专门的支撑结构。清华大学工程物理系的反康伽马谱仪, 是通过一根绳子绑在顶部的反康上, 实现上下移动和支撑。

每块塑料闪烁体单独包装 ESR 反射膜和遮光材料, 并采用单独的 PMT 读出。优点是不用考虑不同块塑闪之间的光耦合。缺点是被 Ge 晶体散射出来的伽马, 在某一块塑闪中发生相互作用, 就只能在该块塑料闪烁体中沉积能量, 产生闪烁光, 从而使得与该块塑闪耦合在一起的 PMT 有信号读出, 不能很好的压低 PMT 的暗噪声引起的假信号。从前面模拟我们也可以知道塑闪阈值越低, 峰康比越大。如果把闪烁体粘接在一起, 可通过多个 PMT 同时有信号来做 Veto.

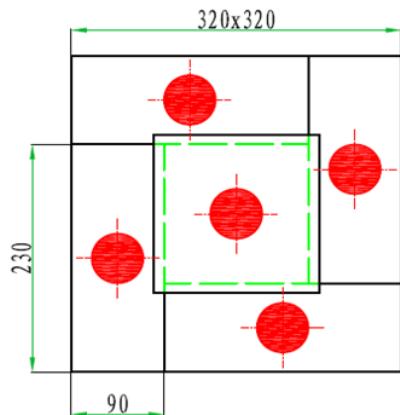
鉴于前放是固定在冷指下端的, 如图 5.13 所示。所以冷指周围可移动部分的塑闪和无氧铜, 不能做成一个内圆外方的形状从冷指底部往上套, 只能分成 2 半, 如图 5.17



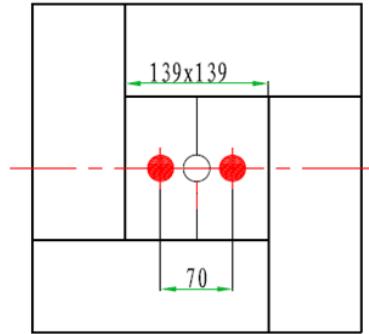
(a) 反康探测器立体图



(b) 反康探测器侧视图



(c) 顶部和侧面反康探测器俯视图



(d) 底部和侧面反康探测器俯视图

图 5.16: 反康探测器的立体、侧视和俯视图。

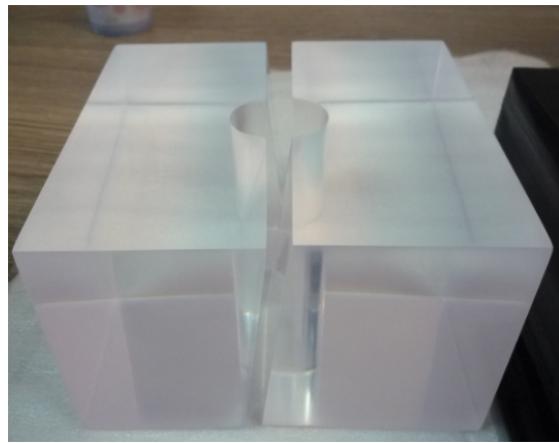


图 5.17: 底部两块塑料闪烁体的实物图。

所示, 然后合到冷指上。

反康探测器的塑料闪烁体采用的是高能科迪生产的, 溶剂是聚苯乙烯, 发光物质是对联三苯, 波长位移剂是 bis-MSB。因此, 在探测电离辐射时, 根据能量传递的机制, 我们知道塑料闪烁体中产生的荧光光子主要是从 bis-MSB 上发出的, bis-MSB 的发射光谱如图 3.20 中的第 5 个曲线, bis-MSB 的发射光谱的峰值在 400 nm 和 420 nm。

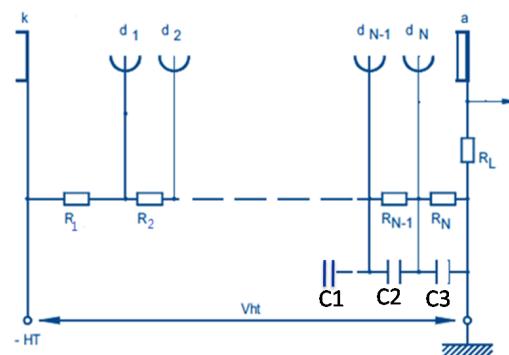
2 英寸 PMT 采用北京滨松生产的 CR135, 无钾硼硅玻璃的入射窗, 双碱光阴极, 盒栅型倍增极结构。该种光电面和入射窗材料使得 PMT 的光谱响应范围在 300 nm 到 650 nm, 峰值在 420 nm 处, 与 bis-MSB 的发射光谱吻合的比较好, 可以提高荧光收集和转换效率。1 英寸 PMT 也是采用北京滨松生产的 CR110-10, 无钾硼硅玻璃的入射窗, 双碱光阴极。如图 5.18 所示, 分别是 2 英寸 PMT、1 英寸 PMT 及 PMT 分压器设计。为了使整个 PMT 的高度较低, 以减少外面无氧铜屏蔽层的高度, 我们不在 PMT base 上使用 BNC 转接头接高压线, 而是直接把高压线接在分压器电路中。同时我们使用了粗为 3 mm 的细高压线和信号线, 使得这些线在穿出无氧铜时, 不用在无氧铜中开很大的孔。关于 PMT 中分压器的设计为 $R_1 = 660 \text{ k}\Omega$, $R_2 = R_3 = \dots R_N = 330 \text{ k}\Omega$, $C_1 = C_2 = C_3 = 0.01 \mu\text{F}$, $R_L = 10 \text{ k}\Omega$ 。PMT 最高工作电压为 -1500 V。

PMT 和塑料闪烁体的耦合、固定、光密封等问题, 经过和北京滨松, 北京市华美振洋有机玻璃有限责任公司等人的多次讨论, 终于达成一致。最终的设计方案如图 5.19 所示, 在塑闪中打 3 个 M3 的螺孔, 使底部的黑有机玻璃与塑闪通过螺钉固定下来, 顶



(a) 2 英寸 PMT

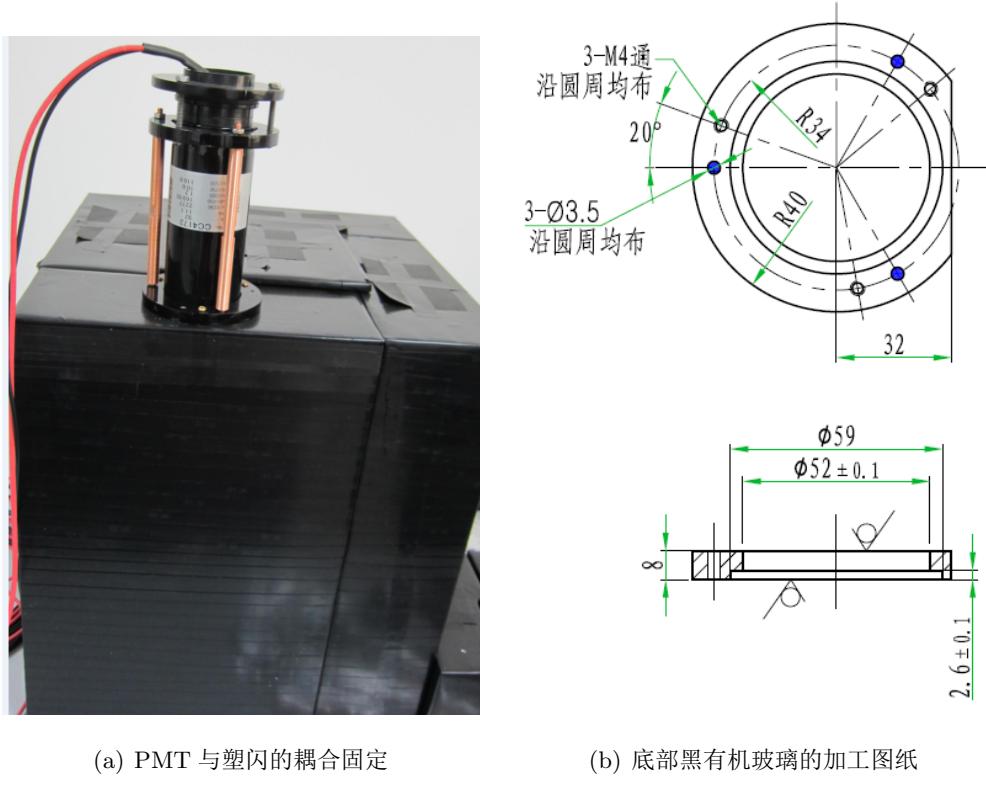
(b) 1 英寸 PMT



(c) PMT 分压器设计, 工作在负高压模式

图 5.18: 2 英寸 PMT、1 英寸 PMT 及 PMT 分压器设计。

部的黑有机玻璃可以支撑在 PMT base 上突出的一圈上，这样就可以通过螺母对 PMT 施加向下的力，使 PMT 可以与底部的塑闪紧密的耦合在一起。而底部的黑有机玻璃也可以保持 PMT 不左右移动，做到更好的光密封。如图 5.19 (b) 所示，是底部黑有机玻璃的加工图纸，在与塑闪接触的地方，还特意开了一个直径为 59 mm，高为 2.6 mm 的小圆柱，把内径为 52 mm，外径为 59 mm，高为 2.6 mm 的黑色 O 圈套在 PMT 的光阴极处，然后把它们一起放置在底部的黑有机玻璃里，这样外面的光基本上进不去。中间的黑有机玻璃起到连接底部和顶部黑有机玻璃的作用，使得 PMT 可以很好地与塑闪耦合固定成一个整体。



(a) PMT 与塑闪的耦合固定

(b) 底部黑有机玻璃的加工图纸

图 5.19: PMT 和塑料闪烁体的耦合、固定、光密封。

5.3.3 无氧铜

无氧铜屏蔽体整个外观尺寸为 $630 \text{ mm} \times 630 \text{ mm} \times 825 \text{ mm}$ ，由 178 块 25 mm 厚的铜板拼搭而成。如图 5.20 所示，不同块无氧铜板之间用螺钉或者销钉连接起来。

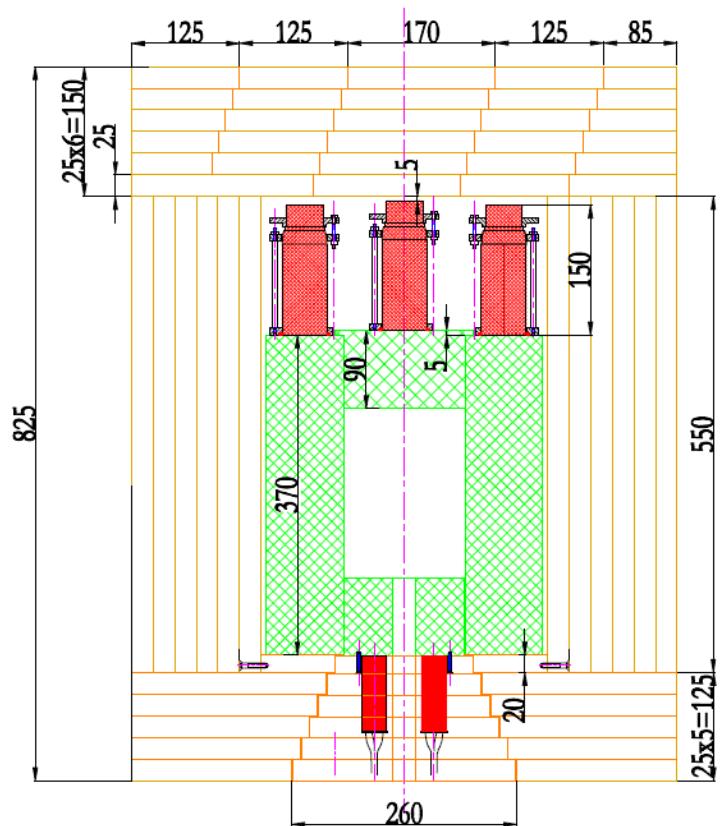


图 5.20: 无氧铜板的切割。

无氧铜选用的是洛阳铜厂生产的厚度为 25 mm 厚的三种不铜规格的 TU1 无氧铜板，总重 3.144 吨。调研了无氧铜的生产工艺，流程及其质量控制 [92, 93, 94, 95]，其中有些作者也是洛阳铜厂的。无氧铜在生产过程中会引入放射性的原因主要有两点，一是原材料本身不纯，没有经过特别的选择和处理，上面还有铜绿等。二是在融化和锻造过程中添加的覆盖剂不纯。无氧铜本身的生产工艺不会引入任何放射性。洛阳铜厂作为国内最大的综合性铜加工企业，引进具有世界先进水平的新工艺、新技术和新装备，对原生产线进行全面技术改造，严格按照国家标准 GB/T2040-2008 加工生产。另外，我们还要求洛阳铜厂提供一块同一批次的大小为：25 mm × 60 mm × 90 mm 的无氧铜样品，已经寄往美国伯克利实验室测量该批次无氧铜的放射性含量，之前在清华大学测过无氧铜板的放射性，该谱仪只能给出上限。

为了安装方便，我们还在北方车辆集团有限公司进行了铜板的加工和切割，大小共切割成 178 块，并在每块铜板上打上编号，便于安装。

5.3.4 机械支撑和升降机构

由于要上下取放样品，所以必须将伽马谱仪的主体结构分为固定结构及可移动结构两部分如图 5.12。其中可移动部分包括高纯锗探头、底部无氧铜屏蔽体及两块底部塑料闪烁体。当样品更换后，移动机构需要和主体结构重新复位。为此，需要设计并制作主体支撑架及移动机构，来实现上述基本功能。我们的工程师根据该设备使用时整体高度为 1644 mm，当更换样品时，移动部分降到最低点时，总高度大约为 2204 mm，移动行程 600 mm 即可放置样品，固定部分结构总重量约 2.4 吨，可移动部分总重量约 110 公斤的要求，分别对主体支撑架和移动部分提出了设计要求。北京友泰诚丰公司按照设计要求做出了如图 5.21 所示的机械支撑和升降机构。

外面白色的架子是主体支撑架，为拼装结构，各部分已经用螺栓连接好，可拆卸。放置不移动无氧铜的碳钢平板还未放置上去。整体框架安装调整后和地面接触良好。中间部分为升降装置，升降是靠丝杠和电机实现和控制的。走完全程大概需要十分钟，速度虽然慢，但是很稳。水平 x 和 y 方向的微调也可以实现。

5.3.5 电子学

伽马谱仪的电子学读出准备了在线和离线做 Veto 的两种方法，如图 5.22。在线

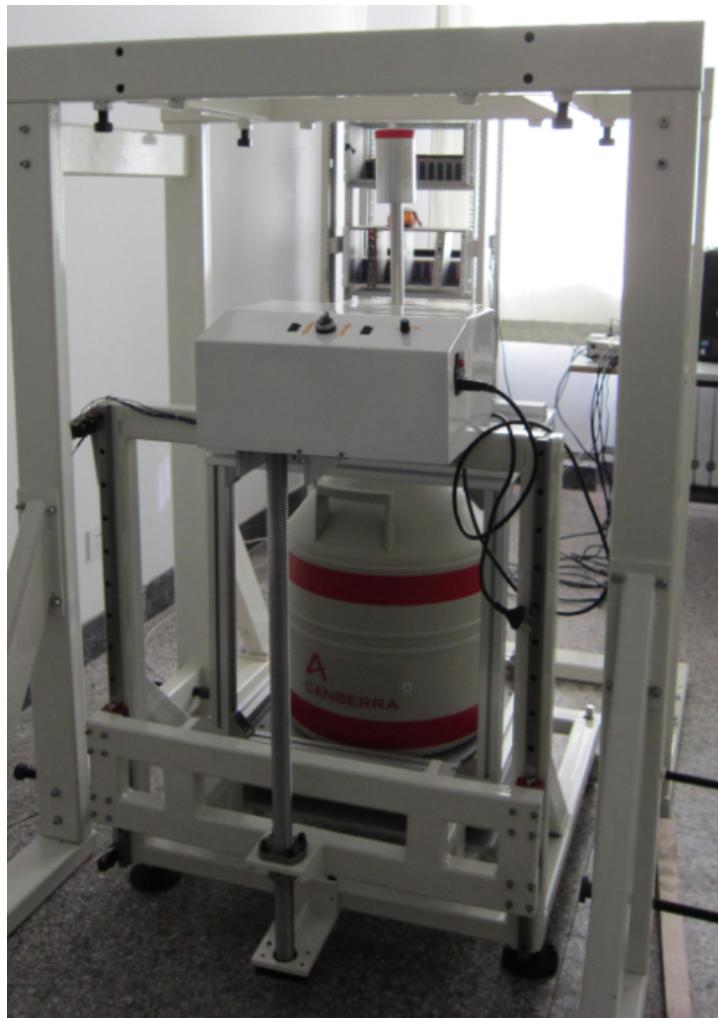


图 5.21: 机械支撑和升降机构。

Veto 的方法是传统的反康谱仪很常见的一种方法，信号的时序问题是重要的。离线 Veto 方法是把 HPGe 晶体的信号和 PMT 的信号的波形通过 FADC 记录下来，根据 PMT 信号的有无来决定 HPGe 的信号是否需要记录。用高斯函数拟合经过筛选后主放出来的信号，把拟合的平均值作为这次的粒子沉积能量。另外，采用 13 到 14 bit 的 FADC，可以保证高纯锗探测器良好的分辨率不受到影响。100 MHz 的采样率对于 HPGe 探测器 us 量级的信号，可以采集到足够多的点进行高斯拟合。PMT 的负载电阻为 $10 k\Omega$ ，从阳极出来的信号宽度有 100 ns，如图 5.23。可见 PMT 上的信号可以采集到 10 多个点，作为反康探测器基本够用。

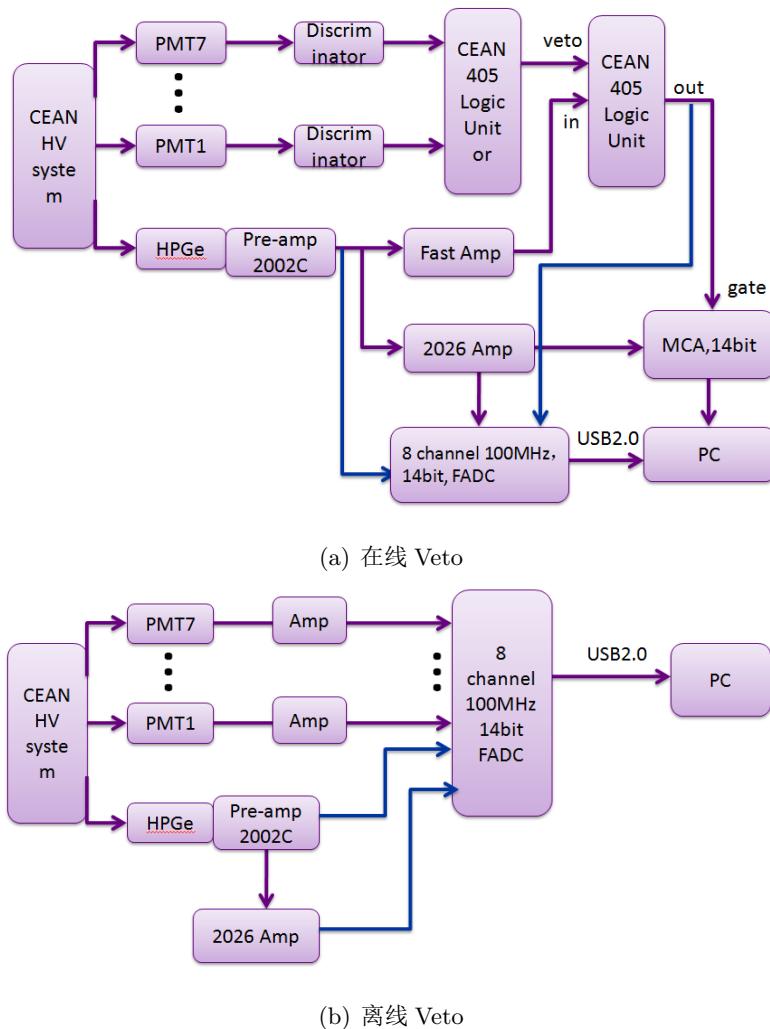


图 5.22: 伽马谱仪的电子学读出。

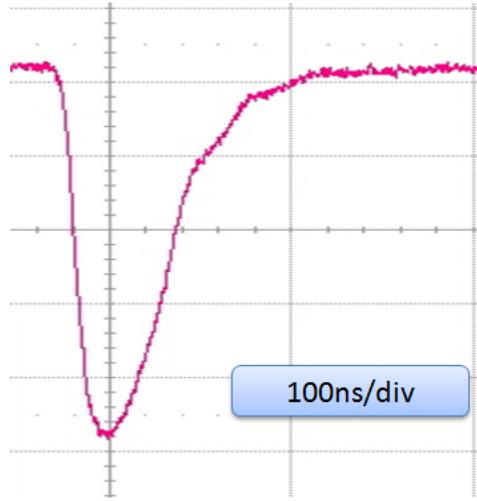


图 5.23: PMT (CR135) 的波形。

能量在 200 keV 到几个 MeV 的伽马，在被完全吸收前，要发生好几次的康普顿散射，最后一次通过光电效应损失全部能量，这样我们才能测量到这个伽马的全能峰。对于 $6 \text{ cm} \times 6 \text{ cm}$ 的 HPGe 晶体，1 MeV 的伽马在被光电吸收前，一般要发生 2 到 4 次的康普顿散射。电荷脉冲的前沿依赖伽马和 Ge 晶体相互作用的半径位置。一个有无数次相互作用的伽马产生的电荷脉冲波形是每一次相互作用产生的电荷脉冲形状的线性叠加。图 5.24 是单次和多次相互作用时 HPGe 探测器产生的电流脉冲波形，利用这些差异可以区分粒子是发生了单次还是多次相互作用。

用 FADC 采集 HPGe 晶体的信号波形，可以利用 HPGe 的脉冲波形进行研究。反康伽马谱仪中的反康探测器，如果利用便宜的塑料闪烁体，要达到和 CsI 晶体相同的反康效率则需要更厚的塑料闪烁体，同时会加大外面屏蔽体的体积，但是采用 CsI 晶体，成本又高。近年来，有人利用 HPGe 探测器的脉冲波形分析(Pulse Shape Analysis)方法来压低康普顿平台 [96]。文献 [96] 也给出了利用 $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ 的 HPGe 晶体的电荷脉冲波形的差异来压低康普顿坪，并与 BGO 晶体当做反康探测器的压低水平进行了比较，如图 5.25 比较了用 PSA 方法和 BGO 晶体压低康普顿坪前后 ^{137}Cs 的能谱差异。每一个谱的测量时间完全一样。从图上我们可以看到 PSA 方法在压低康普顿边沿 477 keV 的效果明显优于 BGO 方法。

另外，有些 $0\nu\beta\beta$ 实验 [97]，利用脉冲波形是 Single-site 还是 Multi-site 来区分是双

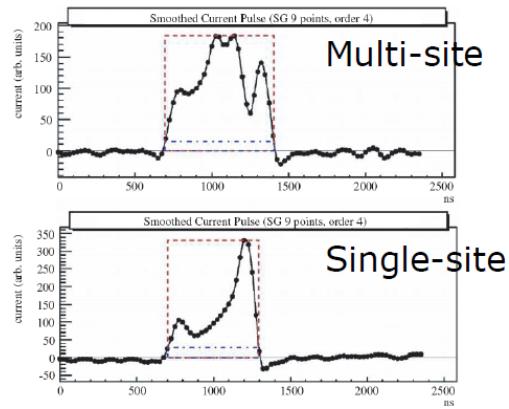


图 5.24: 单次和多次相互作用 HPGe 探测器产生的电流脉冲形状。

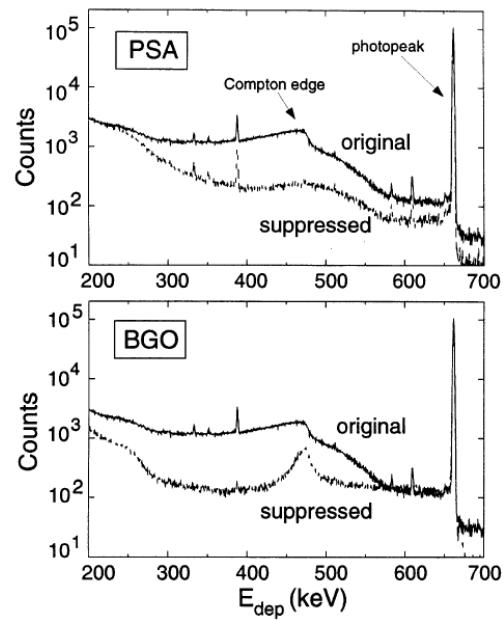


图 5.25: 用 PSA 方法和 BGO 晶体压低康普顿坪前后 ^{137}Cs 的能谱差异。

β^- 还是 γ 。由于双 β^- 的射程小于 1 mm，而多次散射的 γ 的平均自由程就有几个 cm，所以 Multi-site 的事例肯定不是双 β^- 。对于我们的伽马谱仪，也可以做相关的研究。

5.4 伽马谱仪的安装调试

伽马谱仪安装所需要的各种材料、零部件和安装工具基本准备齐全，并和工程师反复讨论了安装的各个细节问题，请我们的工程师写下了安装的每一步，包括安装所需要的螺钉，销钉型号，位置等。为了看出反康和每一层铜板的屏蔽作用，我们会测量每安装一层铜板后，Ge 探头测到的环境本底与未屏蔽时的比较。并比较有无反康 Veto 时的差异。

安装时，利用水平尺先调节部分子部件包括可移动的小白板，承重的大白板，Ge 探头，冷指，液氮灌所在的平面处于水平和垂直状态。这些定位用的部件调节好后，将不再改变位置，其他部件以它们为基准，开始安装。在安装过程中发现了各种问题，不过很快进行了修补，较为顺利的完成安装。安装过程主要包括以下方面：

(1)，底部可移动部分的安装，包括无氧铜板、2 个 1 英寸的 PMT 和 2 小块塑料闪烁体。这部分铜板位于可移动的小白板上，要上下移动。安装好后通过电机升到上面使得小白板和大白板在一个水平面上。如图 5.26。

(2)，挡板部分安装。

(3)，底部无氧铜板不移动部分安装，这部分铜板位于承重的大白板上，如图 5.27。

(4)，反康探测器的安装调试。如图 5.28。

(5)，侧部铜板的安装。如图 5.29。

(6)，PMT 走线和电缆线的固定。如图 5.30。

(7)，顶部铜板安装。

上下两层铜板之间的定位是靠定位销钉实现的。整个安装完后的装置如图 5.31 所示。反康探测器和高纯锗探测器还需要等待电子学到位后联调。

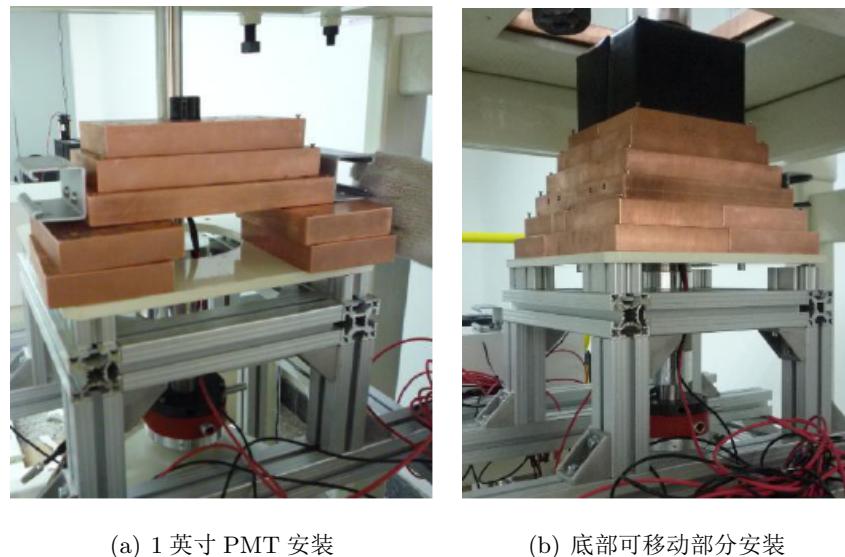


图 5.26: 底部可移动部分安装, 包括无氧铜板, 2 个 1 英寸 PMT, 2 块塑料闪烁体。

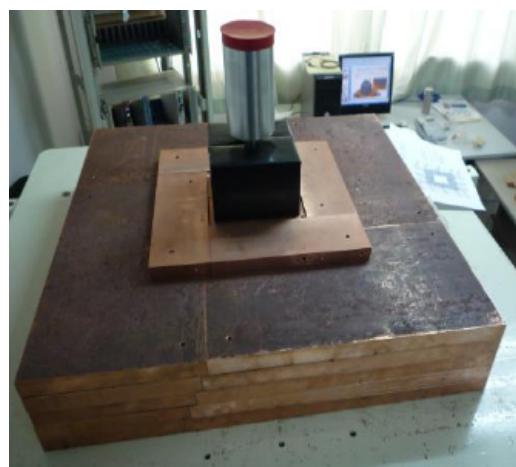


图 5.27: 底部不移动铜板的安装和定位。



图 5.28: 不移动部分的塑料闪烁体和 2 英寸 PMT 的安装。

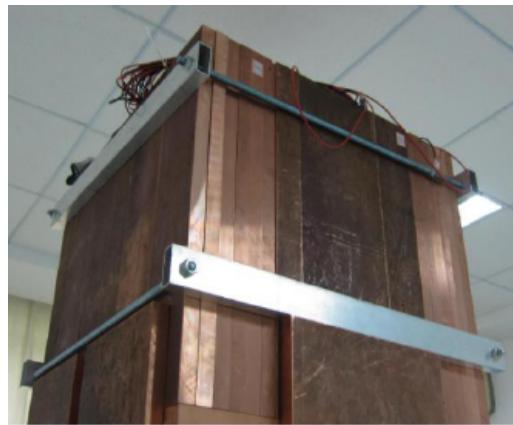


图 5.29: 无氧铜侧板的安装。



(a) 铜板内侧固定

(b) 铜板外侧固定

图 5.30: 2 英寸 PMT 电缆线的固定。



图 5.31: 伽马谱仪安装好后的装置图。

第六章 总结与展望

6.1 论文总结

本论文包括三个方面的工作内容：

第一方面是对大亚湾中微子实验采用的以 LAB 为溶剂的三元液闪性能进行了详细研究。研究内容涉及闪烁体的时间特性，能量传递时间及传递方式，波形分辨，各成分的发射光谱，衰减长度，吸收光谱，荧光量子效率。通过对大量通氮除氧和不通氮样品的测量，深刻理解了大亚湾氧气淬灭的机制。并发现大亚湾液闪的光产额随温度的降低而升高，这对保持亚湾中心探测器各模块的全同性和提高能量分辨具有指导意义。

第二个方面是对天然放射性引入的关联和非关联本底经行了详细研究，提出了探测器的设计指标，保证了探测器的低本底。为大亚湾探测器的设计和建造提供了重要依据。

第三个方面是自行设计和研制了一台低本底伽马谱仪，它的研制是对低本底探测器研究的进一步发展。本论文通过 Geant4 模拟，细致地优化和验证了探测器设计，通过这一研究，将为极低本底伽马谱仪的研制提供有力依据和实际经验。

6.2 展望

液体闪烁体探测器技术应用广泛，是我国亟待研发的一项重要实验技术。针对大亚湾反应堆中微子实验及其工程需要，对液体闪烁体探测器的发光机制和特性经行了深入细致的研究，研究成果具有实用价值，希望在物理分析中理解大亚湾中心探测器的时间和能量响应，并为建立精确的模拟技术提供帮助。

博士论文：低本底和液体闪烁体探测器技术研究

伽马谱仪研制已经完成，各探测器的联合测试还需要等待电子学部分，希望

参考文献

- [1] W. Pauli, Letter to L. Meitner and her colleagues dated 4 December 1930 (letter open to the participants of the conference in Tübingen), recorded in W. Pauli, *Phys. Today* **31N9**, 27 (1978).
- [2] F. Reines and C. L. Cowan, *Phys. Rev.* **113**, 273 (1959).
- [3] G. Danby, J. M. Gaillard, K. Goulianos, L.M. Lederman, N. Mistry, M. Schwartz and J. Steinberger, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 36 (1962).
- [4] DONUT Collaboration, K. Kodama et al., *Phys. Lett. B* **504**, 218 (2001), hep-ex/0012035.
- [5] E. Fermi, *Z Phys.* **88**, 161 (1934), translated in F.L. Wilson, *Am. J. Phys.* **36**, 1150 (1960).
- [6] B. Pontecorvo, *Sov. Phys. JETP* **26**, 984 (1968); V.N. Gribov and B. Pontecorvo, *Phys. Lett.* **28B**, 493 (1969).
- [7] Steven R. Elliott and P. Vogel, *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* **52**, 115 (2002), hep-ph/0202264.
- [8] R. Davis, *Phys. Rev.* **97**, 766 (1955).
- [9] Z. Maki, M. Nakagawa and S. Sakata, *Prog. Theor. Phys.* **28**, 870 (1962).
- [10] B. Pontecorvo, *Sov. Phys. JETP* **26**, 984 (1968); *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **53**, 1717 (1967).

参考文献

- [11] R.Jr. Davis, D.S. Harmer and K.C. Ho~~an~~an, Phys. Rev. Lett. 20, 1205 (1968).
- [12] J.N. Bahcall, N.A. Bahcall and G. Shaviv, Phys. Rev. Lett. 20, 1209 (1968); J.N. Bahcall, M.H. Pinsonneault and S. Basu, Astrophys. J. 555, 990 (2001), astro-ph/0010346.
- [13] Kamiokande Collaboration, K.S. Hirata et al., Phys. Rev. D 38, 448 (1988); Phys. Rev. D 44, 2241 (1991); Phys. Rev. Lett. 77, 1683 (1996).
- [14] SAGE Collaboration, J.N. Abdurashitov et al., J. Exp. Theor. Phys. 95, 181 (2002), astro-ph/0204245.
- [15] GALLEX Collaboration, P. Anselmann et al., Phys. Lett. B 285, 376 (1992); GALLEX Collaboration, W. Hampel et al., Phys. Lett. B 447, 127 (1999).
- [16] Super-Kamiokande Collaboration, Y. Fukuda et al., Phys. Rev. Lett. 81, 1158 (1998), hep-ex/9805021.
- [17] GNO Collaboration, M. Altmann et al., Phys. Lett. B 490, 16 (2000), hep-ex/0006034.
- [18] SNO Collaboration, Q.R. Ahmad et al., Phys. Rev. Lett. 87, 071301 (2001), nucl-ex/0106015; Phys. Rev. Lett. 89, 011301 (2002), nucl-ex/0204008; Phys. Rev. Lett. 89, 011302 (2002), nucl-ex/0204009.
- [19] K. Eguchi *et al.* (KamLAND Collaboration). Phys. Rev. Lett, 2003, **90**(2): 021802
- [20] Kamiokande-II Collaboration, K.S. Hirata et al., Phys. Lett. B 205, 416 (1988); Phys. Lett. B 280, 146 (1992); Kamiokande Collaboration, Y. Fukuda et al., Phys. Lett. B 335, 237 (1994).
- [21] D. Casper et al., Phys. Rev. Lett. 66, 2561 (1991); R. Becker-Szendy et al., Phys. Rev. Lett. 69, 1010 (1992); Nucl. Phys. Proc. Suppl. 38, 331 (1995).
- [22] Soudan 2 Collaboration, W.W.M. Allison et al., Phys. Lett. B 391, 491 (1997).

- [23] MARCO Collaboration, M. Ambrosio et al., Phys. Lett. B 434, 451 (1998).
- [24] Super-Kamiokande Collaboration, Y. Fukuda et al., Phys. Lett. B 436, 33 (1998), hep-ex/9805006; Phys. Rev. Lett. 81, 1562 (1998), hep-ex/9807003. For a review, see: C.K. Jung, C. McGrew, T. Kajita, and T. Mann, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 51, 451 (2001).
- [25] K2K Collaboration, M.H. Ahn et al., Phys. Rev. Lett. 90, 041801 (2003), hep-ex/0212007.
- [26] D. G. Michael et al., MINOS collaboration, Phys. Rev. Lett. 97, 191801(2006).
- [27] A. Aguilar *et al.* [LSND Collaboration], Phys. Rev. D **64**, 112007 (2001)
- [28] M. Cirelli, G. Marandella, A. Strumia and F. Vissani, Nucl. Phys. B 708, 215 (2005), hep-ph/0403158.
- [29] H. Murayama and T. Yanagida, Phys. Lett. B 520, 263 (2001), hep-ph/0010178; G. Barenboim, L. Borissov, and J. Lykken, hep-ph/0212116.
- [30] KARMEN Collaboration, K. Eitel et al., Nucl. Phys. Proc. Suppl. 77, 212 (1999), hep-ex/9809007; Nucl. Phys. Proc. Suppl. 87, 281 (2000).
- [31] A. A. Aguilar-Arevalo *et al.* [The MiniBooNE Collaboration], Phys. Rev. Lett. **98**, 231801 (2007)
- [32] A. A. Aguilar-Arevalo *et al.* [The MiniBooNE Collaboration], Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 181801 [arXiv:1007.1150 [hep-ex]].
- [33] M. Apollonio *et al.* [CHOOZ Collaboration], Eur. Phys. J. C **27**, 331 (2003)
- [34] Palo Verde Collaboration, F. Boehm et al., Phys. Rev. Lett. 84, 3764 (2000), hep-ex/9912050.
- [35] P. Minkowski, Phys. Lett. B 67, 421 (1977); R.N Mohapatra and G. Senjanovic, Phys. Rev. Lett. 44, 912 (1980).

参考文献

- [36] M. Fukugita and T. Yanagida, Phys. Lett. B 174, 45 (1986).
- [37] C. Amsler et al. [Particle Data Group], Phys. Lett. B 667, 1 (2008).
- [38] C. Jarlskog, Phys. Rev. Lett. 55, 1039 (1985); D. D. Wu, Phys. Rev. D 33, 860 (1986).
- [39] M. C. Gonzalez-Garcia, M. Maltoni and J. Salvado, JHEP **1004**, 056 (2010) [arXiv:1001.4524 [hep-ph]].
- [40] L. Wolfenstein, Phys. Rev. D 17, 2369(1978).
- [41] S. P. Mikheev and A. Yu. Smirnov, Sov. J. Nucl. Phys. 41, 913(1985).
- [42] B. Aharmim et al., Phys. Rev. C72, 055502 (2005).
- [43] V.D. Barger et al., Phys. Rev. Lett. 82, 2640 (1999), astro-ph/9810121.
- [44] S. Abe et al., Phys. Rev. Lett. 100, 221803 (2008).
- [45] C. Arpesella et al., Phys. Lett. B658, 101 (2008); Phys. Rev. Lett. 101, 091302 (2008).
- [46] M. H. Ahn *et al.* [K2K Collaboration], Phys. Rev. Lett. **90**, 041801 (2003)
- [47] G. Heusser, Ann. Rev. Nucl. and Part. Sci. 45, 543 (1995).
- [48] National Council on Radiation Protection and Measurement, Report 94, Bethesda, MD (1987).
- [49] Detectors for non-accelerator physics, Phyticle Data Group, (2010)
- [50] J.B. Birks, “The theory and practice of scintillation counting,” (1964)
- [51] J.R. Platt, “Classification of spectra of cata condensed hydrocarbons,” J. Chem. Phys. 17, 484 (1964)
- [52] <http://micro.magnet.fsu.edu/primer/techniques/fluorescence/fluorescenceintro.html>

- [53] J.B. Birks *J. Res. Nat. Bur. Stnds. A* , 80:389 (1976)
- [54] 许金钩, 王尊本. 荧光分析法. 科学出版社, 北京, (2006),
- [55] 汪晓莲, 李澄 *et al.* 粒子探测技术. 中国科学技术大学出版社, 北京 (2009).,
- [56] T. Foerster , *Ann. Phys.* **2**, 55, (1948)
- [57] Hirschfelder, J. O. *et al.* *Molecular Theory of Gases and Liquids*; New York, (1954)
- [58] M. Wurm *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **81**, 053301 (2010) [arXiv:1004.0811 [physics.ins-det]].
- [59] G. Ranucci, A. Goretti and P. Lombardi, *Nucl. Instrum. Meth. A* **412**, 374 (1998).
- [60] Berlman, I. B. ; *J. Chem. Phys.* , 34, 1083, (1961)
- [61] Z. Y. Zhang, Daya Bay Technical Note, **DocDB152** (2006)
- [62] Z. Y. Zhang, Daya Bay Technical Note, **DocDB164** (2006)
- [63] 钟伟丽, 2008年中国科学院研究生院博士论文, “大亚湾实验中心探测器模型和 ΔM_{31}^2 测量精度的研究” .
- [64] L.M. Bollinger and G.E. Thomas, *Rev. Sci. Instr.* **32**, 1044 (1961).
- [65] W. L. Zhong, Z. H. Li, C. G. Yang and J. Cao, *Nucl. Instrum. Meth. A* **587**, 300 (2008).
- [66] G. Ranucci, P. Ullucci, S. Bonetti, I. Manno, E. Meroni and A. Preda, *Nucl. Instrum. Meth. A* **350**, 338 (1994).
- [67] G. Ranucci, A. Goretti and P. Lombardi, *Nucl. Instrum. Meth. A* **412**, 374 (1998).
- [68] T. Marrodan Undagoitia, F. von Feilitzsch, L. Oberauer, W. Potzel, A. Ulrich, J. Winter and M. Wurm, *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 043301 (2009) [arXiv:0904.4602 [physics.ins-det]].
- [69] 谢一冈等, 《粒子探测器与数据获取》 科学出版社, 北京, (2003) .

参考文献

- [70] M. Moszyński, Nucl. Instr. & Meth., **158**:1 (1979)
- [71] F. Elisei *et al.* Nucl. Instr. and Meth. A, **400**(1): 53-68, (1997)
- [72] M.L. Roush, M.A. Wilson, and W.F. Hornyak, "Pulse shape discrimination", Nucl. Instrum. Meth. 31,pp. 112-124 (1964).
- [73] S. Marrone, et all., Nucl. Instrum. Meth. A **497**, 299-307, (2002)
- [74] 刘金昌等, 高能物理与核物理, **31**:76 (2007)
- [75] 肖华林, 2010年北京师范大学博士论文, “大亚湾中微子实验液体闪烁体探测器性能研究” .
- [76] XIAO Hualin, *et al.*, Chinese Physics C, **34**(11): 1724-1728, (2010)
- [77] J.N. Demas and G.A. Crosby. The measurement of photoluminescence quantum yields. J. Phys. Chem., 75(8):991-1024, (1971)
- [78] W.H.Melhuish. Quantum efficiencies of fluorescence of organic substances: Effect of solvent and concentration of the fluorescent solute. J.Phys.Chem., 62(2):229-235, (1961)
- [79] A.Pardo, D.Reyman, J.M.L.Poyato, and F.Medina. Some β -carboline derivatives as fluorescene stands. Journal of Luminescence, 51(5):269-274, (1992)
- [80] XIAO Hualin, *et al.*, Chinese Physics C, **34**(05): 571-575, (2010)
- [81] 许彤等, 高能物理与核物理, **25**:343 (2001)
- [82] http://en.wikipedia.org/wiki/Decay_chain
- [83] <http://ie.lbl.gov/toi/>
- [84] KamBiu Luk, Daya Bay Technical Note, **DocDB2095** (2008)
- [85] http://wwwndc.jaea.go.jp/cgi-bin/Txt_jendl.cgi?/JENDL/JENDL-AN-2005/C013.dat

- [86] W.B.Wilson et al., SOURCES-4A, Technical Report LA-13639-MS, Los Alamos (1999).
- [87] V. A. Kudryavtsev [ILIAS and UKDMC Collaborations], Nucl. Phys. Proc. Suppl. **173**, 156 (2007).
- [88] G. W. Kerr et al., Energy levels of ^{17}O from $^{13}\text{C}(\alpha, \alpha)^{13}\text{C}$ and $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$. Nucl. Phys., A 110:637 - 656, (1968).
- [89] R. B. Walton et al., Interaction of neutrons with oxygen and a study of the $\text{C}^{13}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ reaction. Phys. Rev., 107:1065 - 1075, (1957)
- [90] 占亮, 2009年中国科学院研究生院博士论文, “大亚湾中心探测器模拟与物理灵敏度研究”.
- [91] <http://www.nuclover.com/productcon.asp?bigid=12&id=203>
- [92] 钟卫佳, 肖恩奎, 世界有色金属, (2003)
- [93] 吕杰, 资源再生, (2009)
- [94] 徐勇, 上海有色金属, (2005)
- [95] 朱志云, 温嵘生, 江西有色金属, (2003)
- [96] G. J Schmid, D Beckedahl, J.J Blair, A Friensehner, J.E Kammeraad Nucl. Instrum. Meth. A **422**, 368 (1999).
- [97] A. Bettini *et al.* (GERDA Collaboration), Nuclear Physics B(Proc.Suppl.) **168**, 67 (2007)

参考文献

附录： ^{238}U 和 ^{232}Th 的衰变链

一、 ^{238}U 的衰变链

^{238}U (4.5×10^9 y)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	4198	-	0.790
↓	4151	50	0.210
^{234}Th (24.1 d)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{238}U decays
↓	273	-	0.703
↓	160	113	0.022
↓	181	92	0.192
↓	136	137	0.083 *
^{234}Pa (1.2 m)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{238}U decays
↓	2197	-	0.982
↓	1153	1001,43	0.009
↓	1099	1098	0.009 *
^{234}U (2.5×10^5 y)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	4775	-	0.714
↓	4722	53	0.286
^{230}Th (7.5×10^4 y)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	4688	-	0.763
↓	4621	68	0.237
^{226}Ra (1600 y)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	4784	-	0.944
↓	4602	186	0.056
^{222}Rn (3.8 d)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	5490	-	1.000
^{218}Po (3.1 m)	E_α	E_γ	per ^{238}U decays
↓	6002	-	1.000
^{214}Pb (26.8 m)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{238}U decays
↓	1023	-	0.093
↓	184	839	0.006
↓	234	786,53	0.009
↓	671	352	0.460
↓	728	295	0.288
↓	728	242,53	0.117
↓	511	512	0.027 *

^{214}Bi (19.9 m)	E_{β^-}	Endpoint	E_{γ}	per ^{238}U decays
	3272		-	0.199
	790	1208,665,609		0.005
	824	2448		0.015
	824	1838,609		0.004
	1068	2204		0.048
	1153	1509,609		0.022
	1153	2119		0.012
	1255	1408,609		0.029
	1261	1402,609		0.015
	1278	1385,609		0.009
	1382	1281,609		0.015
	1425	1847		0.021
	1425	1238,609		0.059
	1508	1764		0.149
	1508	1155,609		0.016
	1542	1120,609		0.144
	1542	1730		0.028
	1729	934,609		0.027
	1857	806,609		0.009
	1894	1378		0.032
	1894	768,609		0.040
	1636	1636		0.102*
^{214}Po (164 μs)	E_{α}		E_{γ}	per ^{238}U decays
	6902		800	0.0001
↓	7687		-	0.9999
^{210}Pb (22 y)	E_{β^-}	Endpoint	E_{γ}	per ^{238}U decays
	64		-	0.160
↓	17		47	0.840
^{210}Bi (5.0 d)	E_{β^-}	Endpoint	E_{γ}	per ^{238}U decays
↓	1163		-	1.000
^{210}Po (138 d)	E_{α}		E_{γ}	per ^{238}U decays
↓	5304		-	1.000
^{206}Pb (∞)				

图 6.1: ^{238}U 的衰变链。只列出产生可见光能量大于 100 keV 和分支比大于 0.5% 的衰变。

附录: Andreas Pieke 产生子所用到的 ^{238}U 和 ^{232}Th 的衰变链

二、 ^{232}Th 的衰变链

^{232}Th (1.4×10^{10} y)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	4013	-	0.779
	3954	64	0.221
^{228}Ra (5.8 y)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	46	-	1.000
^{228}Ac (6.1 h)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	2069 403 438 438 444 481 481 596 596 596 596 596 596 596 596 959 959 973 973 973 973 973 1004 1004 1104 1104 1158 1216 1731 1731 1063	58 755, 911, 58 1631, 58 1502, 129, 58 1496, 129, 58 1588, 58 1459, 129, 58 99, 463, 911, 58 99, 463, 969 99, 409, 965, 58 563, 911, 58 563, 969 509, 965, 58 772, 338, 58 840, 270, 58 322, 774, 58 322, 503, 328 322, 503, 270, 58 1096, 58 1154 795, 328 795, 270, 58 965, 58 836, 128, 58 969 911 209, 129, 58 338, 58 1064	0.100 0.007 0.020 0.006 0.009 0.031 0.008 0.015 0.011 0.008 0.016 0.009 0.010 0.012 0.005 0.005 0.006 0.009 0.010 0.020 0.023 0.023 0.007 0.116 0.191 0.030 0.086 0.202 *

^{228}Th (1.9 y)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	5423 5340	- 84	0.715 0.285
^{224}Ra (3.7 d)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	5685 5449	- 241	0.949 0.051
^{220}Rn (56 s)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	6288	-	1.000
^{216}Po (0.145 s)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	6778	-	1.000
^{212}Pb (11 h)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	574 274 335	- 300 239	0.123 0.052 0.825
^{212}Bi (61 m)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{232}Th decays
↓ 64%	2254 634 742 1527 1127	- 1620 785,727 727 1127	0.555 0.015 0.011 0.044 0.015*
^{212}Po (299 ns)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	8784	-	0.640
^{208}Pb (∞)			
^{212}Bi (61 m)	E_α	E_γ	per ^{232}Th decays
↓ 36%	6090 6050	- 40	0.098 0.262
^{208}Tl (3.1 m)	E_{β^-} Endpoint	E_γ	per ^{232}Th decays
↓	1040 1292 1525 1525 1803 2500	763,583,2615 511,583,2615 861,2615 277, 583, 2615 583,2615 2501	0.008 0.085 0.052 0.026 0.175 0.014 *
^{208}Pb (∞)			

图 6.2: ^{232}Th 的衰变链。只列出产生可见光能量大于 100 keV 和分支比大于 0.5% 的衰变。

发表文章目录

1. "The timing properties and pulse shape discrimination of LAB based liquid scintillator" is received by Chines Physics C.
2. 肖华林, 李小波, et al., "Study of absorption and re-emission processes in a ternary liquid scintillation system", Chines Physics C., 2010 34(11):1724-1728

致谢

值此论文完成之际，谨在此向多年来给予我关心和帮助的老师、同学、朋友和家人表示衷心的感谢！

本文是在我的导师曹俊研究员的悉心指导下完成的。衷心感谢曹老师在过去几年对我的学习和科研所倾注的大量时间和心血，教会我很多思考问题的方式和方法。从论文的选题、课题的研究、学术文章的发表、到最后论文的撰写，曹老师都给予了关键的指导。他渊博的学识，严谨的工作作风，认真负责的工作态度，对我今后的学习和工作都将产生深刻的影响。正是他一直以来的关心和鼓励，才有论文的顺利完成，在此对曹老师致以最诚挚的谢意！

衷心感谢李金研究员。李老师作为我实验的启蒙老师，在实验的关键问题上都用自己丰富的经验和敏锐的洞察力给予了我解决实际问题的很多方法和思路。尤其在伽马谱仪的研制过程中，李老师给我提供了很多的帮助。更不顾自己快 70 岁的高龄，和我们一起在实验室解决问题。他耐心细致的讲解，平易近人的态度及对学问和实验一丝不苟的态度都让我领略到老一辈科学家的风范。

感谢高能所大亚湾实验组的王贻芳、衡月昆、王萌、王铮老师对我工作的支持。感谢原子能院的阮锡超老师在测量液闪对中子时间响应上的慷慨帮助。感谢北京师范大学郑东老师、肖华林对测量液闪发射光谱，荧光量子效率等的有益讨论和帮助。感谢清华大学工程物理系的吴其反老师在伽马谱仪研制过程中提供的帮助。

液闪的很多实验都是在飞行时间组的实验室完成的。非常感谢孙志嘉、杨桂安、徐明、付在伟、钱森在实验上给予的大力帮助。实验过程中和孙志嘉的讨论，使我受益匪浅。感谢杨桂安老师为伽马谱仪的 PMT 焊接高压头和信号头。特别要感谢马晓妍在伽马谱仪的机械设计和安装上给予的大力帮助。她对工作一丝不苟的态度和热情开朗的性

致谢

格给我留下了深刻印象，与她的合作使我感到非常荣幸和愉快。

感谢大亚湾组的师兄师姐师弟师妹同学—陈明君、关梦云、田新春、钟玮丽、刘金昌、占亮、王志民、路浩奇、丁雅韵、温良剑、王玲玉、徐吉磊、安丰鹏、张一纯、陈晓苏、陈晓辉、于泽源、章飞虹、夏冬梅，对我的关心、支持和帮助。特别感谢和我一个办公室的师弟师妹，经常和我分享你们有趣的想法并帮我分担了很多体力活。特别感谢占亮对我生活上的关心和工作上的支持。

最后，我尤其要感谢我的父母，感谢他们一直以来对我最无私的关爱和包容，感谢他们对我选择粒子物理专业的理解和支持，感谢他们在我离开家乡异地求学的日子里对我深深的牵挂和支助。