

大亚湾反应堆中微子实验 液体闪烁体的研制

周莉

中国科学院高能物理研究所
核探测与核电子学国家重点实验室

2012-08-16

大亚湾反应堆中微子实验



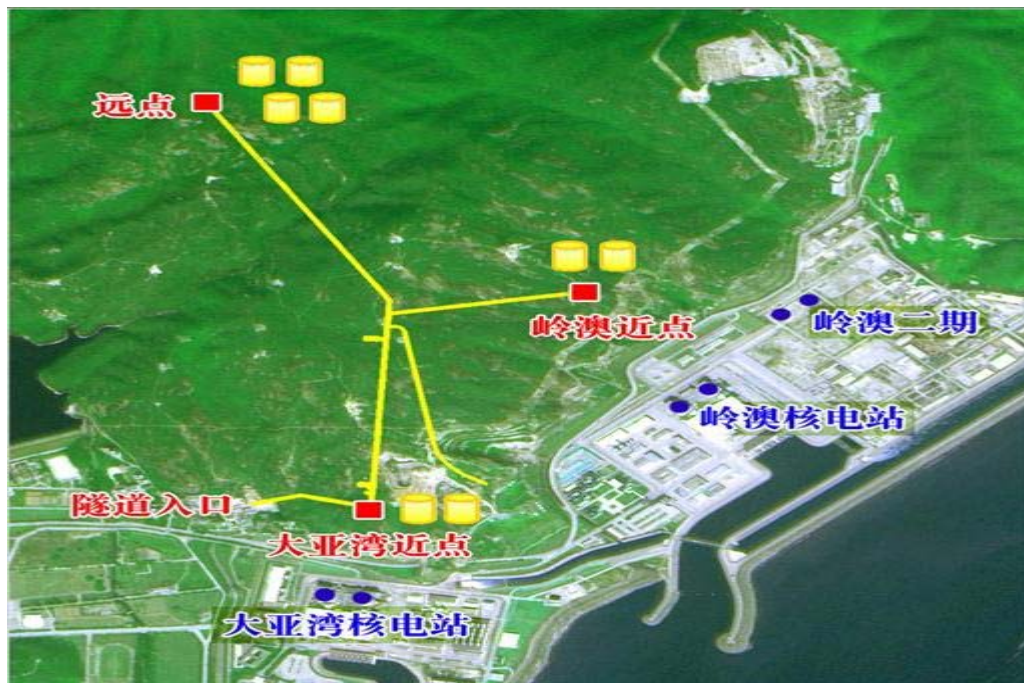
- 在我国进行的、有重要影响力的基础科学研究重大国际合作项目，是中美两国目前在基础科学研究领域最大的合作项目之一，目前有大约**250**名中外科研工作者参加。
- 物理目标：利用核反应堆产生的电子反中微子来测定一个具有重大物理意义的参数——中微子混合角 θ_{13} 。
- 实验的特点：
 - 大体积大质量的靶物质（**185吨0.1%Gd-LS**），增加中微子捕获几率。
 - 大功率的核反应堆，降低统计误差。
 - 远-近点探测器相对测量，使用完全相同的探测器模块，有效抵消反应堆和探测器的关联误差以及反应堆和探测器的关联误差。
 - 实验点建立在地下，足够的岩石覆盖以减少宇宙线 μ 子的流强。
 - 建立多种独立宇宙线 μ 子探测器，作为反符合探测器去除非中微子事例。
 -

中微子实验与液体闪烁体

- 反应堆中微子实验在**50**年的中微子研究史上占有重要地位，也是国际竞争的热点。
 - 与加速器实验比较，造价低，速度快。
 - 信号干净，与**CP**相角及物质效应无关。
- 作为捕获中微子的靶物质，液体闪烁体在中微子实验中得到越来越多的应用。
 -
 - **KamLAND**实验采用不掺金属的液闪；
 - **LENS**实验用掺Yb液闪探测太阳中微子；
 - **LNGS (Laboratory Nazionali del Gran Sasso)** 实验使用掺In液闪；
 - **CHOOZ**实验，**Palo Verde**实验和大亚湾实验，均采用掺Gd液闪；
 -

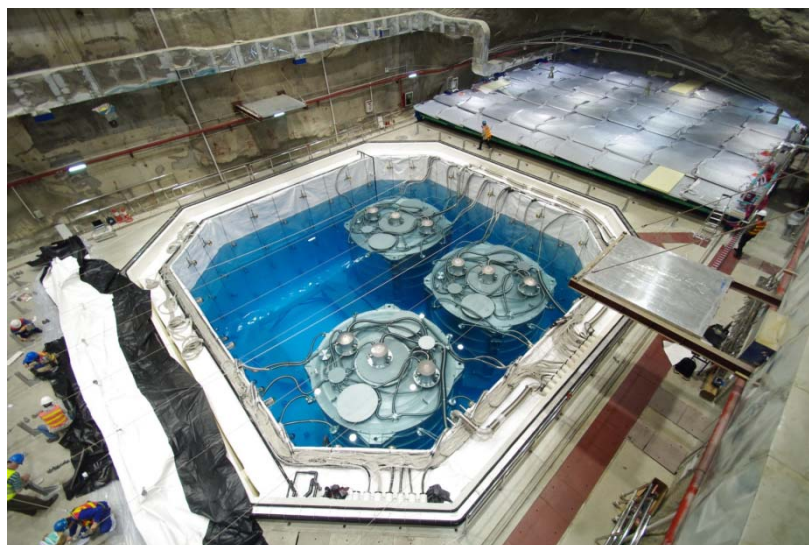
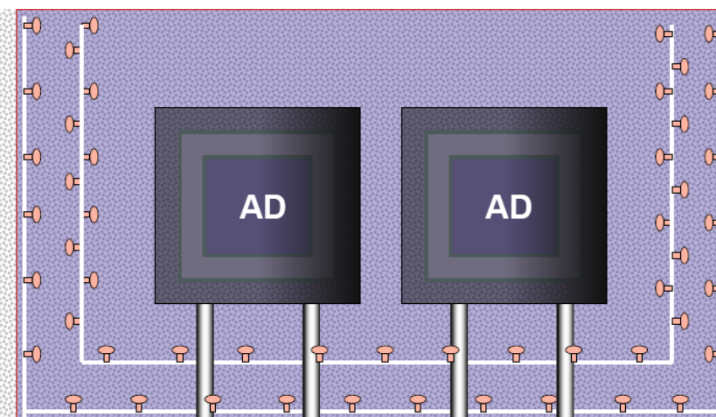
大亚湾实验总体设计

六个蓝圆点为反应堆，黄线为隧道，
8个黄色的圆柱体为中微子探测器



大亚湾RPC反符合探测器

RPCs



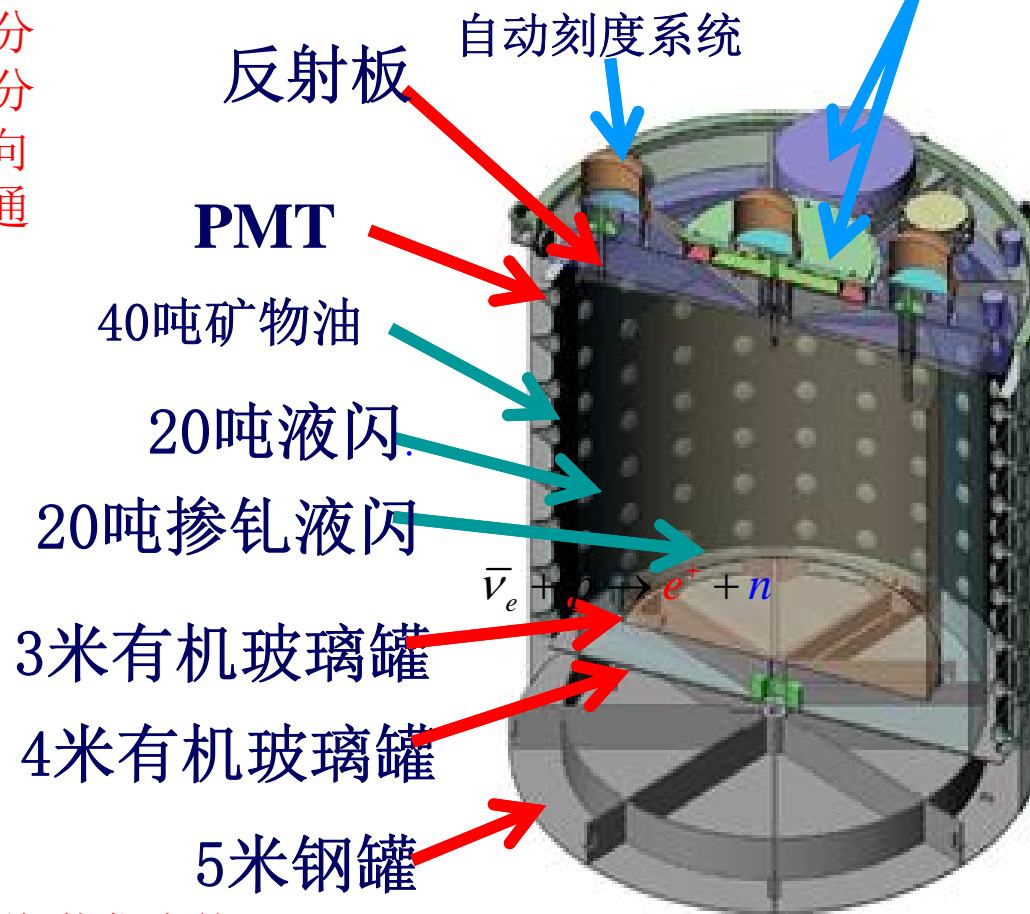
水池被分隔成内外两层，构成两个独立的water Cerenkov探测器，可以屏蔽宇宙射线和降低本底

中心探测器(AD)



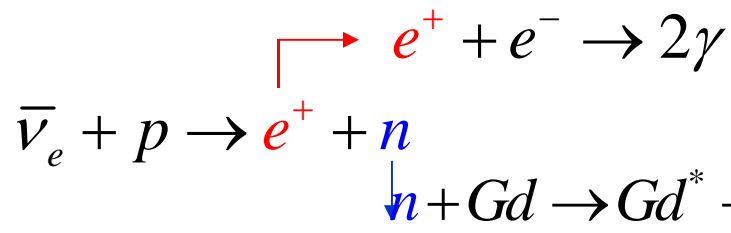
探测器直径5米，高5米，由直径分别为3米和4米的薄壁有机玻璃罐分隔成三层嵌套的同心圆柱，由内向外依次灌装掺钆液体闪烁体，普通液体闪烁体和白油，总重110吨。

最里层掺钆的液体闪烁体作为中微子的靶；中间层为普通的液体闪烁体，用来提高能量收集效率，减少能量判选误差；最外层为矿物油，用来屏蔽天然放射性。



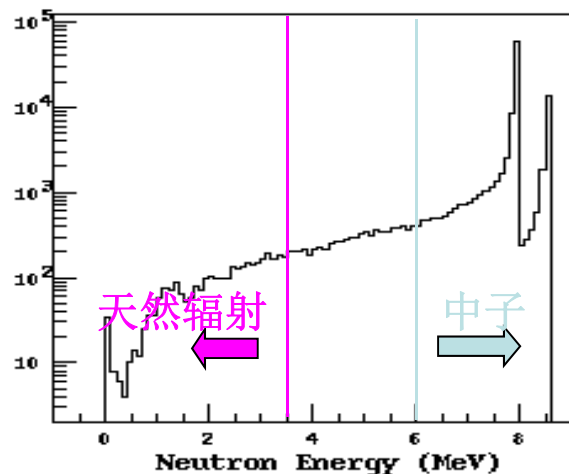
当中微子在探测器中被捕获时，将激发液体闪烁体发出微弱的闪光，由安装在白油中的光电倍增管探测到

为什么选择掺钆液体闪烁体（Gd-LS）？

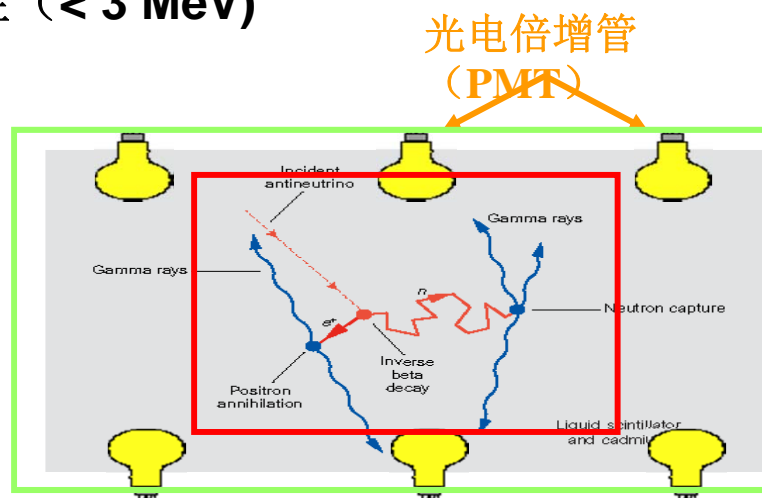


Gd是对中子俘获截面最大的元素

反β衰变反应是电子反中微子被氢核俘获，生成一个正电子和一个中子。中微子的能量几乎全由正电子带走，在液体闪烁体内有1MeV~8MeV的能量沉积。生成的中子经慢化后在液体闪烁体中掺杂的钆元素上被俘获，以伽马光子的形式放出约8MeV的能量，比正电子信号平均慢30微秒。正电子信号与中子信号在能量与时间上的符合可以干净地辨认出中微子与其它本底。



释放γ能量高(8 MeV),
远离天然放射性 (< 3 MeV)



大亚湾实验对掺钆液闪的要求

- 发光效率高，葱晶体的**50%**
- 掺钆量**0.1%**（质量分数）
- 闪点高、毒性低——地下实验室使用
- 掺**Gd**后仍有良好的透明度，较长的衰减长度,大于**10米**
- 与有机玻璃长期兼容性好-探测器材质为有机玻璃
- 低放射性本底
- 易实现大规模生产 (185 t Gd-LS)

| | 同位素 | 指标 | 对应探测器事例率 |
|--|-------------------|---------------------|---------------|
| 氯化钆 $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ | ^{238}U | < 2 ppb | 3.7 Hz |
| | ^{232}Th | < 4 ppb | 6.2 Hz |
| | ^{40}K | < 0.5 ppb | 1.7 Hz |

掺钆液闪的研制

- 掺钆液闪的组成：闪烁溶剂，发光物质，钆络合物
- 闪烁溶剂的选择
 - 长的衰减长度和高的发光效率，高闪点，低毒性，与有机玻璃兼容
 - **线性烷基苯**，南京烷基苯厂专门生产

酸洗比色指标达 49.5%

- 发光物质：**PPO**
- 合作组成员乌克兰提供，
武汉华烁纯化
加热熔解，蒸馏，重结晶



钆络合物配体的选择---重点、难点

- 能与钆形成稳定的络合物
- 络合物在闪烁溶剂里有较高的溶解度
- 络合物掺入后对液闪的光学性质的影响尽可能小



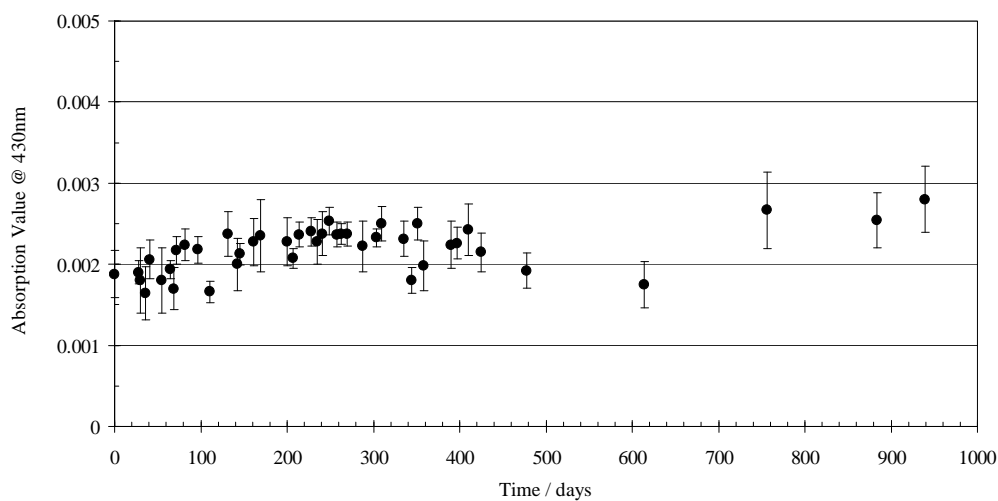
钆与异壬酸络合方法

Gd与有机羧酸的配合物既可在水相中合成，也可在非水相中合成；可采用有机溶剂萃取的方法，也可在水相中沉淀以合成固体络合物

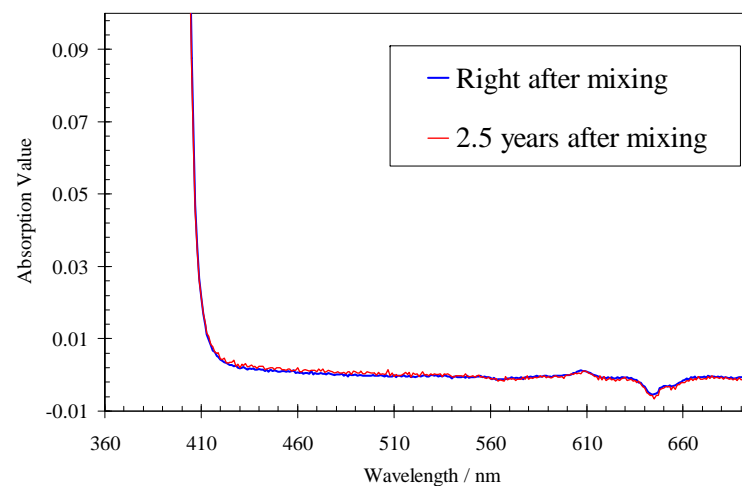
- 我们采用：水相合成固体络合物并溶解
 - 氨水和异壬酸反应后，与钆水溶液反应，生成白色固体络合物。
 - 经洗涤、过滤后，固体络合物可稳定地溶于线性烷基苯中。

模型实验Gd-LS的长期稳定性

- **2007年1月，合成制备750 L 0.1% Gd-LS。**
- **使用紫外-可见分光光度计监测了900天以上。**



UV absorption at 430 nm for 900 days



UV absorption spectra

掺钆液闪高温加速老化实验

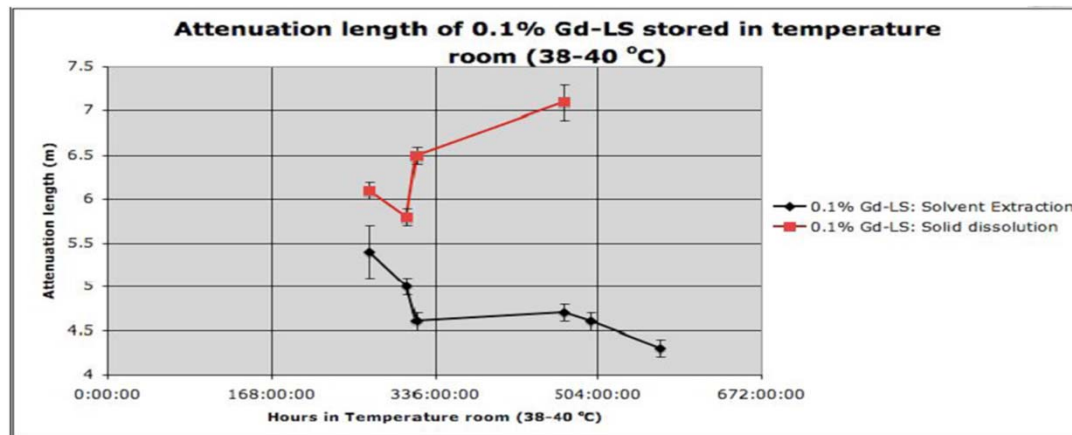


- 中美双方有两种方法制备的**Gd-LS**,
- **2007年6-7月**, 在香港大学, 第三方实验室进行检测。

2种液闪置于**40°C**高温老化间。

香港大学定期测量, 监测高温老化性能。

中方液闪性能好于**BNL**, 最终选择中方方案



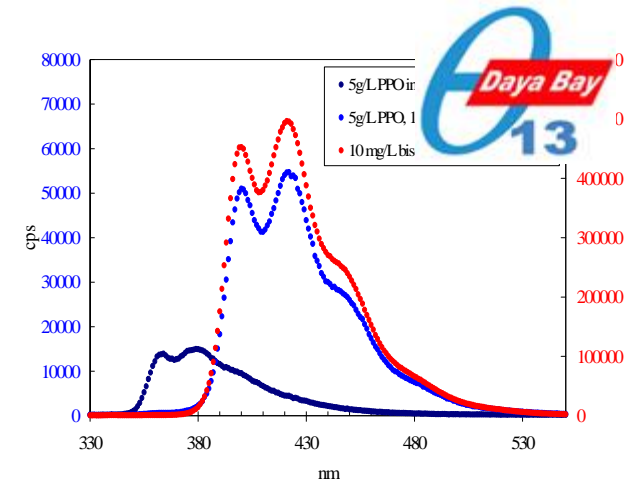
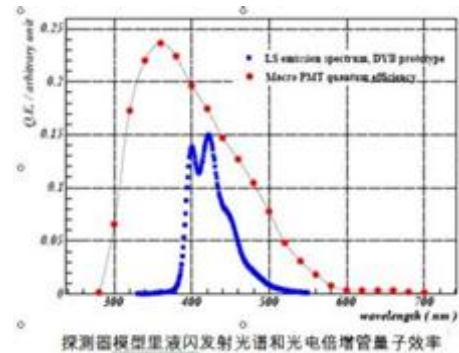
香港大学的测量结果



发光物质选择

- 第一发光物质 **PPO**

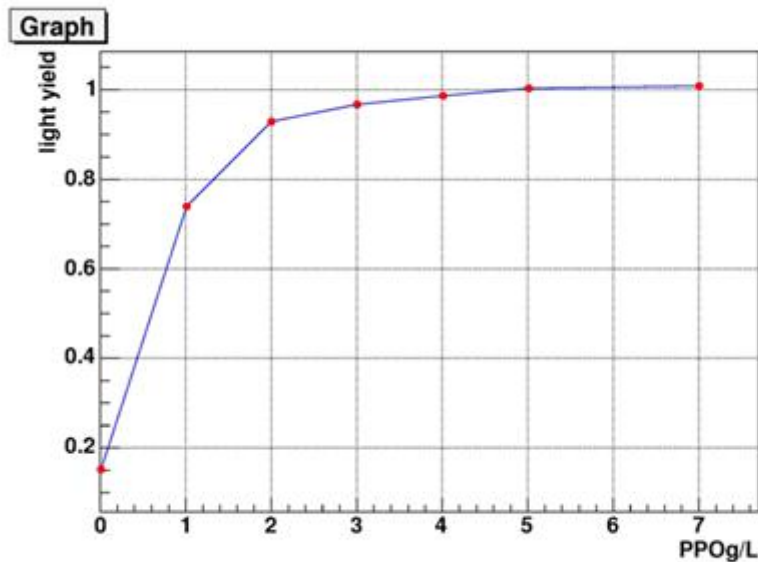
- 发射光谱范围和光电倍增管的光谱响应范围一致。
- 发射光谱和自己的吸收光谱很少重叠。
- 溶剂与溶质之间的能量传递效率必须要高（与浓度有关，**g/L**）。



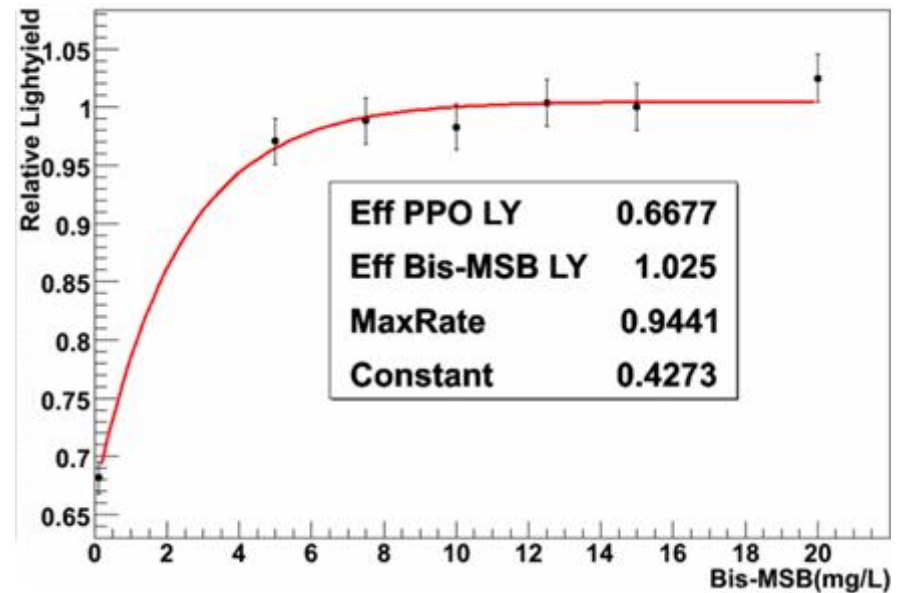
- 第二发光物质，又称第二溶质或波长移位剂 **Bis-MSB**

- 改善闪烁体的发射光谱范围和光电倍增管光谱响应范围之间的匹配关系。
- 原则上，液闪最终的闪烁光子是由受激的第二发光物质分子跃迁到基态时发出的。
- 减少大体积液闪中第一发光物质的荧光自吸收。

PPO和Bis-MSB浓度选择



LAB为溶剂时PPO的浓度与发光效率的关系



bis-MSB的浓度与发光效率的关系

大亚湾掺钆液闪配方



- 液闪溶剂: **Linear Alkyl Benzene, LAB**
- 发光物质: **PPO (3g/L), bis-MSB (15mg/L)**
- **Gd**的掺入: 异壬酸与氯化钆生成固体络合物掺入液闪中。

0.1%的掺钆液闪

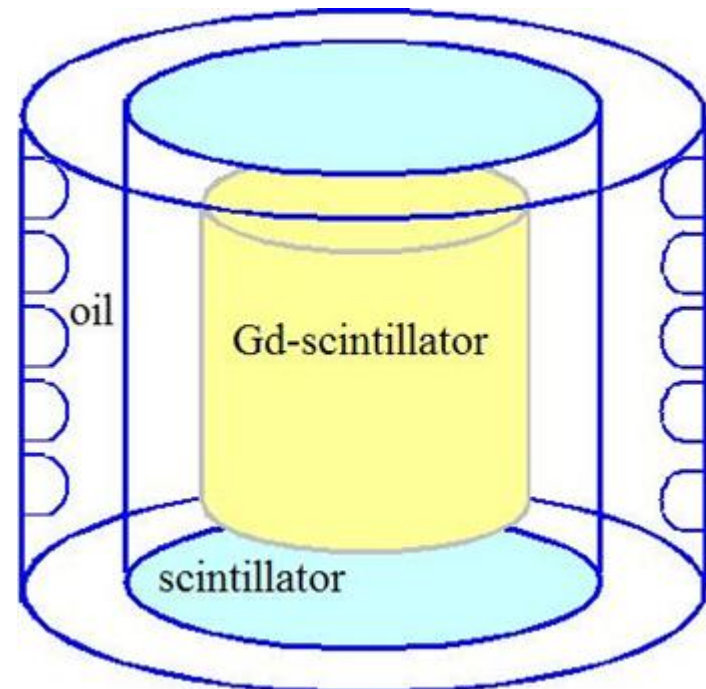
相对光产额: $LS/BC408=75-82\%$

液闪衰减长度:

LAB 18.17 ± 0.64

LS 15.00 ± 0.52

Gd-LS 14.25 ± 0.39

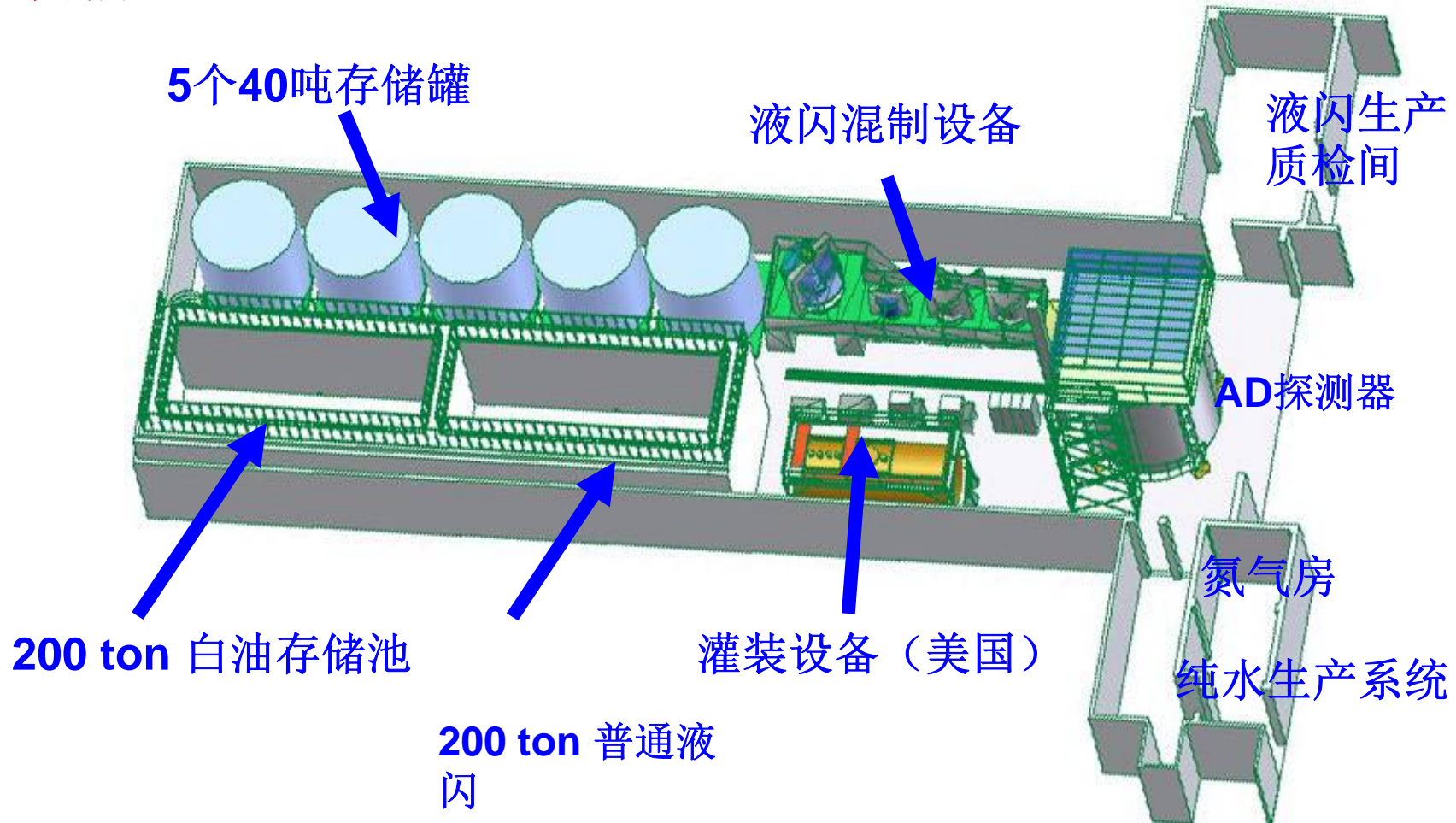


掺钆液闪的大规模生产

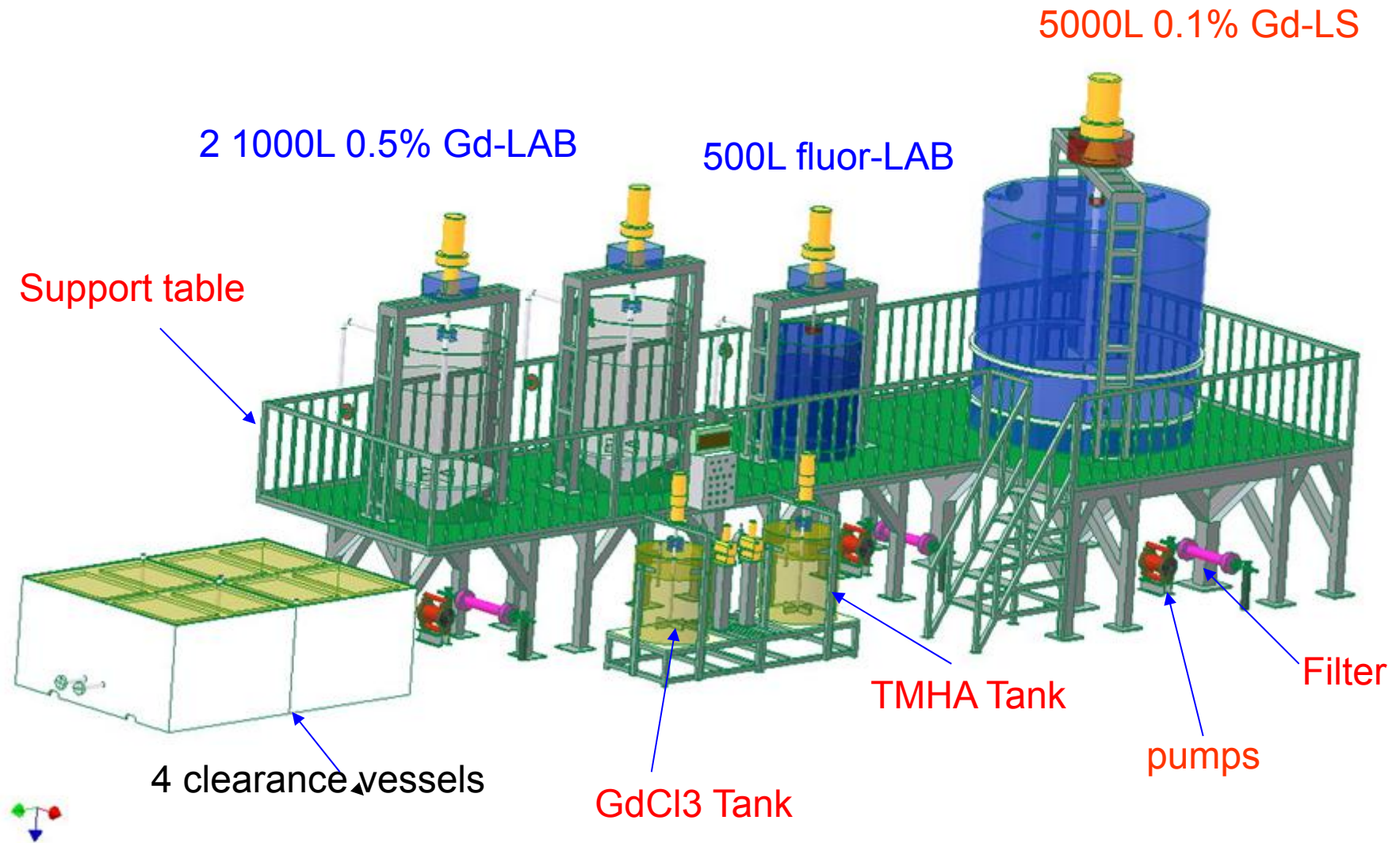


掺钆液体闪烁体 **185吨**
普通液闪 **185吨**
白油**340吨**

地下液闪生产大厅布局图
大厅长**43米**，宽**13米**



Gd-LS mixing equipments 3D Scheme



设计生产了全套设备，进行了8次大规模的络合物实验，摸清了生产工艺，确定了生产流程。解决了因为铁销引起的液闪质量问题，解决氯钆的纯化工艺，解决了加料、取样对液闪污染的问题，解决了生产中产生的静电，噪声，过滤设备，Gd-LAB的澄清等问题



掺钆液闪生产质量控制



原材料的质量控制

烷基苯： 南烷厂改变常规生产工艺，专门生产400吨LAB

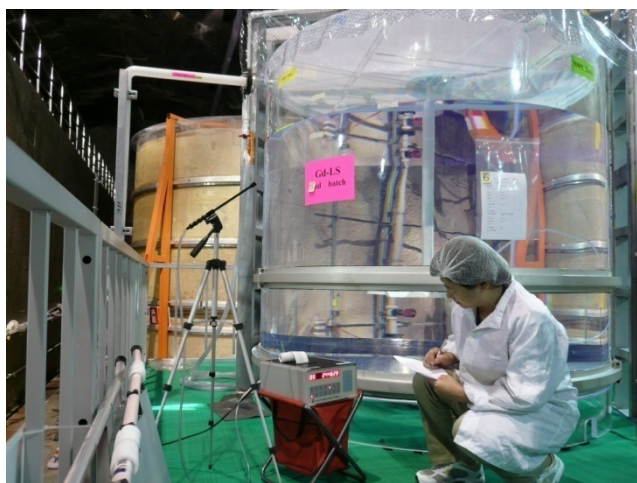
氯化钆： 调节氯化钆水溶液的PH值的方法纯化氯化钆，用孔径 0.1μ 的过滤器去除含放射性元素的沉淀物

异壬酸： 采用蒸馏的方法纯化

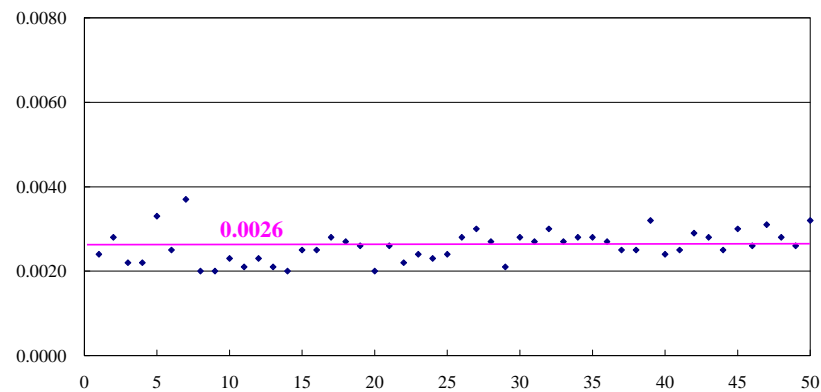
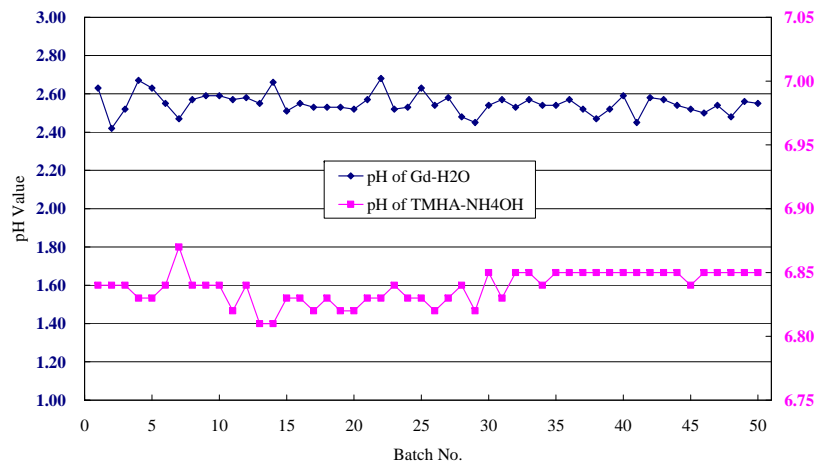
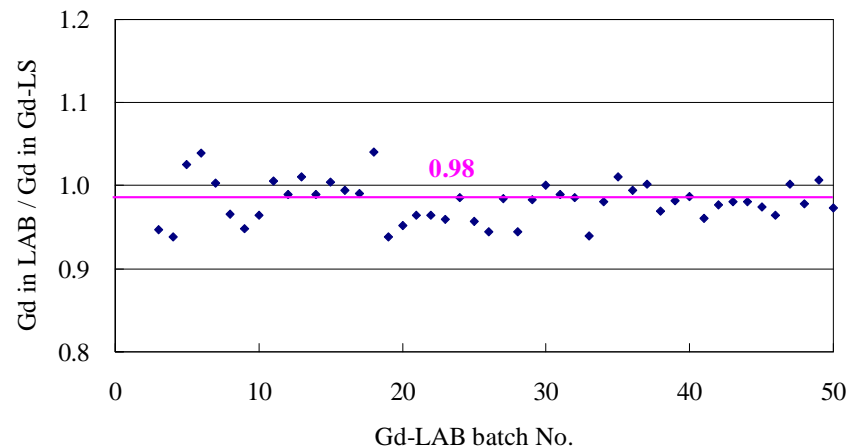
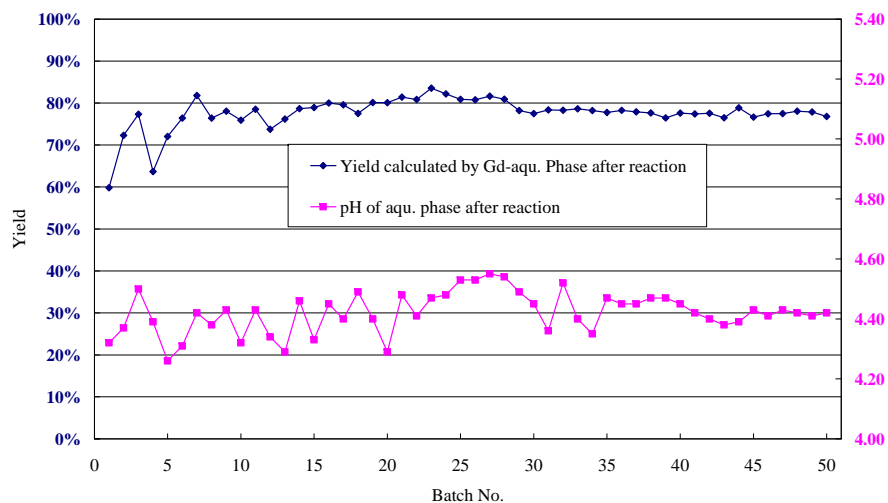
PPO： 乌克兰提供PPO,武汉华烁纯化，

IHEP 质量检查

检测样品: Gd-H₂O, Gd-aqu., Gd-LAB, fluors-LAB, Gd-LS, 纯水,



掺钆液闪生产质量控制

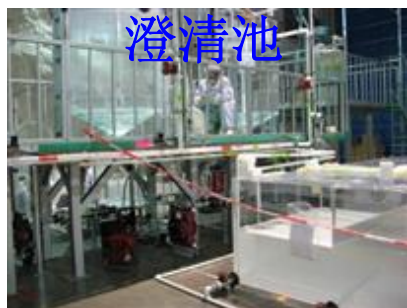


这是典型的一天的工作，2010-12-02，我们有8个批次（22-29）的液闪同时在生产和澄清

溶解28批次络合物



28 批次 Gd-LAB去



23-27批次Gd-LAB在澄清



29批次的络合物在生产



混制23批次液闪



Fluors 23



Fluors 24

22批次液闪到存储桶



5个存储罐液闪的衰减长度

- ❖ Results for the mixed 5-tank pre-circulated sample, with the 430nm LED + 430nm filter:

| Measurement | #1 | #2 | #3 | #4 | #5 |
|-------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| att. length | 15.7m | 16.0m | 15.9m | 15.8m | 16.0m |

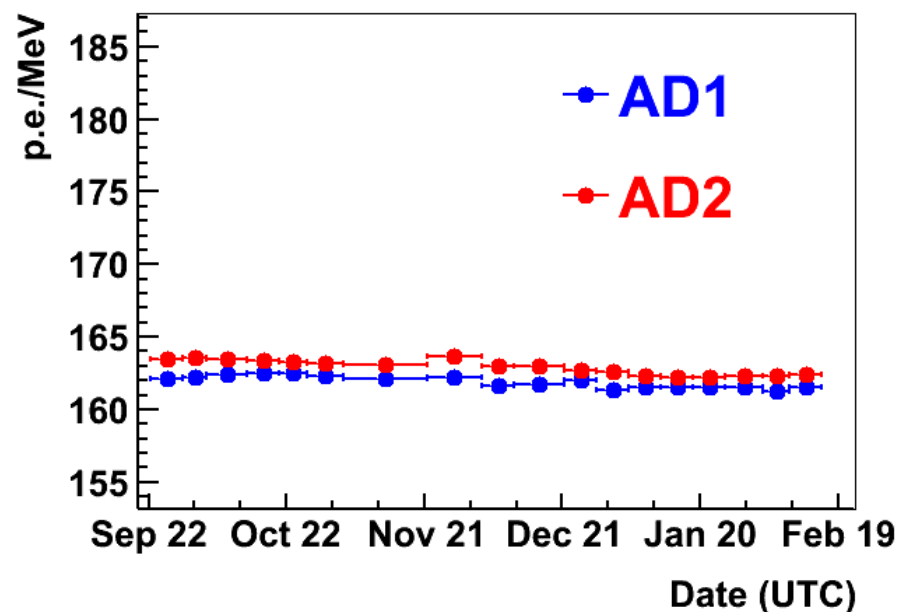
- These measurements were all taken in April 14th 2011, 3 days after the sample was poured into the measuring tube. **Results are consistent to better than 1%**

Light yield: ~163 PE/MeV

5个存储罐液闪的钆含量

•Gd%的含量:

- Storage Tank 1: 0.0951%
- Storage Tank 2: 0.0994%
- Storage Tank 3: 0.0995%
- Storage Tank 4: 0.0995%
- Storage Tank 5: 0.1010%



完成液闪生产正在灌装的探测器





目前8个探测器全部安装完成，仍剩余大约20吨的掺钷液闪和普通液闪，欢迎有兴趣的单位和我们一起联系

谢谢!