

${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 闪烁体探测器效率的模拟计算及 实验测量

杜龙^{1,2} 常乐^{1,3} 王玉廷^{1,2} 张松^{1,4} 曹喜光^{1,4} 王宏伟^{1,2,4}
张国强^{1,4} 钟晨^{1,4} 李琛^{1,4}

1 (中国科学院上海应用物理研究所 嘉定园区 上海 201800)

2 (中国科学院大学 北京 100049)

3 (河南师范大学物理与电子工程学院 新乡 453007)

4 (中国科学院核辐射与核能技术重点实验室 上海 201800)

摘要 碘化锂晶体闪烁体具有中子测量效率高、探测器尺寸小等优点,它是目前相当成熟和用途广泛的探测器,在中子测量及环境监测等各方面均有广泛应用,它由闪烁体、光导、光电倍增管、高压四部分组成。本工作利用 Monte Carlo 程序研究了 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 闪烁体探测器尺寸与探测效率的关系,并通过 GEANT4 及 MCNP 程序模拟计算了高富集度的 ${}^6\text{LiI}$ 晶体和天然 LiI 晶体及纯 ${}^7\text{LiI}$ 晶体的探测效率。从理论模拟结果可以看出 10 mm 厚度的两种探测器对热中子探测效率都很高, ${}^6\text{LiI}$ 达到 98%, 而 ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 也能达到 65%。利用反应堆热中子刻度了 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 闪烁体探测器的热中子探测效率,考虑了铅砖及高密度聚乙烯的散射,以及环境中子的贡献后,实际测量 ${}^6\text{LiI}$ 探测器探测效率在 90%左右, ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器探测效率在 70%左右。

关键词 蒙特卡洛, 闪烁体探测器, 热中子堆, 效率

中图分类号 TL812⁺.1

近些年,随着中子探测在核能利用、放射性同位素产生及核物理研究等领域的应用日益广泛,特别是第四代核反应堆技术的发展,对钚铀循环链中子核数据的需求越发紧迫,一些新型中子探测器及探测材料在不断的研制和设计中^[1];另一方面中微子实验、暗物质测量等需要精确测量地下实验室的低本底中子计数,也需要高效率、高灵敏度、大体积的中子探测器装置^[2],因此中子探测器相关的效率研究和新型探测器的研制一直在不断发展中。目前使用的中子探测器主要有气体探测器、液态闪烁剂和固态闪烁剂,对于固态闪烁剂,由于其密度大、尺寸小和制作的中子探测器结构紧凑,因而效率较高。含 ${}^6\text{Li}$ 探测器作为中子测量的一种重要探测器也有多种类型,如锂玻璃、 ${}^6\text{LiF}(\text{ZnS})$ 、碘化锂晶体 ${}^6\text{LiI}(\text{Eu})$ 、以及含 ${}^6\text{Li}$ 液闪探测器等。其中碘化锂(铊)材料的密度较大($\rho=4.08\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$),阻止本领高,其晶体的几何尺寸与慢中子核反应的两个产物($n+{}^6\text{Li}\rightarrow\alpha+t+4.786\text{ MeV}$)的射程相比,可以看成很大,

因此反应能几乎全部沉积在晶体中,其探测中子的输出脉冲幅度谱摆脱了“壁效应”的影响,得到的脉冲幅度为单一峰分布。因此碘化锂晶体探测器对热中子的探测效率较高,例如 10 mm 厚度,富集 ${}^6\text{Li}$ 的碘化锂晶体闪烁体对热中子的探测效率已达到 100%^[3]。

1 蒙特卡洛模拟

采用 MCNP5^[4]程序对 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器的中子探测效率进行理论模拟并和 GEANT4^[5]程序的模拟结果做了比较。MCNP5 模拟探测器的构型如下:圆柱型 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器外层包裹着厚度为 1.5 mm 的铝屏蔽外壳,中子源定义为平行束面源,直径 4 cm,设置面源距离探测器 50 mm,垂直于 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器中心轴线放置,采用 F1 卡和 FM4(-1, 1, 105) 卡分别记录传输率和 LiI 的探测效率。

若面源发射出总中子数是 N_1 , 进入 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器并被探测到的中子数为 N_2 , 则 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 中

国家自然科学基金(No.11075195)、中国科学院战略性先导科技专项资助项目(No.XDA02010100)、973 项目(No.2013CB834405, No.2010CB833005)和青年基金项目(No.11305239)资助

第一作者:杜龙,男,1987 年出生,2011 年毕业于江汉大学,现为中国科学院上海应用物理研究所读硕士研究生

通讯作者:王宏伟, E-mail: wanghongwei@sinap.ac.cn

收稿日期:2013-12-27, 修回日期:2014-03-05

子探测效率定义为: $\eta=N_2/N_1$ 。首先模拟研究探测效率与中子能量的关系, 选用 25 个单能中子能量 (0.001 eV、0.01 eV、0.1 eV、1 eV、10eV、100 eV、1 keV、10 keV、1–20 MeV), 每个能量点模拟入射中子总数 10^6 个。分别对不同尺寸的 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器进行效率模拟, 得到效率曲线如图 1 所示。结果表明: (1) ${}^6\text{LiI}$ 对慢中子探测效率很高, 达到 98% 以上, 并且在 0.025–1 eV 都保持较高的探测效率, 其不确定度为 0.1%, 而 ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测效率随能量增加而快速下降, 二者对中高能区中子探测效率都很低; (2) 相同尺寸的 ${}^6\text{LiI}$ 和 ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$, 前者具有更宽的中子高效率探测区间; (3) 只要放射源直径小于探测器直径, ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器效率不随探测器直径变化, 仅厚度引起效率的变化, 厚度越大, 效率越高, 探测中子能量范围就越大。

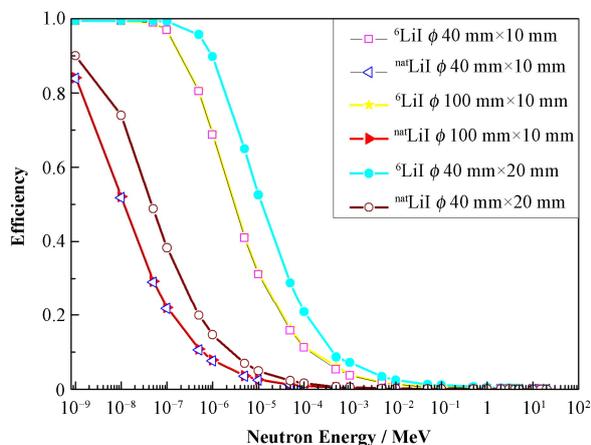


图 1 不同尺寸的 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测效率对比
Fig.1 Contrast of detection efficiency of ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ of different sizes.

表 1 给出了模拟计算的平面源热中子和裂变源中子的效率数值, 给出了高富集度的 ${}^6\text{LiI}$ 晶体和天然 LiI 晶体及纯 ${}^7\text{LiI}$ 晶体的探测效率的比较, 可以看出天然 LiI 晶体的热中子探测效率仍然很高。

表 1 MCNP5 及 GEANT4 模拟的探测器效率(%)
Table 1 Simulation of the detector efficiency by MCNP5 and GEANT4 (%).

晶体类型 Crystal type		${}^6\text{LiI}$	${}^{\text{nat}}\text{LiI}$	${}^7\text{LiI}$
${}^6\text{Li}$ 含量		96	7.6	0.01
Content of ${}^6\text{Li}$				
${}^7\text{Li}$ 含量		4	92.4	99.99
Content of ${}^7\text{Li}$				
热中子效率 η_{dec}	MCNP5	98.92	69.99	1.41
Efficiency of thermal neutron η_{dec}	GEANT4	98	65	1.44
${}^{252}\text{Cf}$ 裂变中子效率 η_{dec}	MCNP5	0.55	0.05	0.00
Efficiency of ${}^{252}\text{Cf}$ fission neutron η_{dec}	GEANT4	0.48	0.04	0.00

2 反应堆热中子效率刻度

上述理论计算仅为中子探测效率 η_{dec} , 实际上中子探测器的效率还要考虑晶体密封窗、光电倍增管的光电转换效率等, 因此探测器的实际效率应该为: $\eta=\eta_{\text{dec}}\times\eta_{\text{PMT}}$, 即考虑光电倍增管 (Photo Multiplier Tube, PMT) 的转换效率和电子学的效率。对于不同的晶体, PMT 和电子学, 通常这个效率值接近 $\eta_{\text{PMT}}\approx 1$ 。为了进一步研究 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 中子探测器的探测效率^[6-7], 采用反应堆热中子进行效率刻度, 反应堆热柱孔道直径 3.5 cm, 镅比值为 497, 热中子注量率测量值为 $1.04\times 10^5\text{ n}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。实验室的两种 LiI 探测器尺寸均为 $\phi 40\text{ mm}\times 10\text{ mm}$, 组装时在探测器前加了一段直径 40 mm、厚度 40 mm 的高密度聚乙烯, 为了避免潮解, 碘化锂晶体密封保存在铝壳中, 铝壳厚度为 1.5 mm, 一端通过一个 3 mm 厚度 K9 玻璃与北京滨松 CR173 型 5.08 cm 光电倍增管耦合, 分压器后带射极跟随器做初级放大, 再经 CAEN N914 二级放大后接入 ORTEC 926usb 多道记录。中子探测器在反应堆热柱孔道出口处放置, 为了减少热中子注量率, 降低数据获取系统死时间, 最初采用 5 mm 镅片 (中心留 1 mm 小孔) 吸收热中子, 但是测量中发现热中子轰击镅片后产生大量的伽马射线本底, 淹没了探测器的中子信号, 因此取消镅片, 采用 50 mm 厚度的铅砖 (中心留 5 mm 小孔), 以降低中子注量率和伽马本底的影响。探测器布局见图 2(a), 图中直线为反应堆热中子孔道出射的热中子, 从左往右依次为方形铅砖, 中心有小孔, 圆柱形的高密度聚乙烯, 圆柱形的 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 中子探测器。测量的热中子谱见图 2(b)。

由于使用了铅砖 (200 mm \times 100 mm \times 50 mm, 开 5 mm 小孔) 和高密度聚乙烯 (直径 40 mm、厚度 40 mm), 因此我们需要模拟计算热中子穿过铅砖和聚乙烯的穿透率, 即注量率的变化情况, MCNP5 模拟计算结果如表 2 所示。

从表 2 的模拟结果中看到, 5 mm 出射孔对热中子穿透率没有较大的影响。表 2 中模拟不考虑探测器直径, 只考虑穿透 50 mm 铅砖, 其穿透率约为 23%, 考虑周围环境本底的中子贡献约为 2%, 得到的 ${}^6\text{LiI}$ 和 ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 中子探测器效率如表 3 所示。

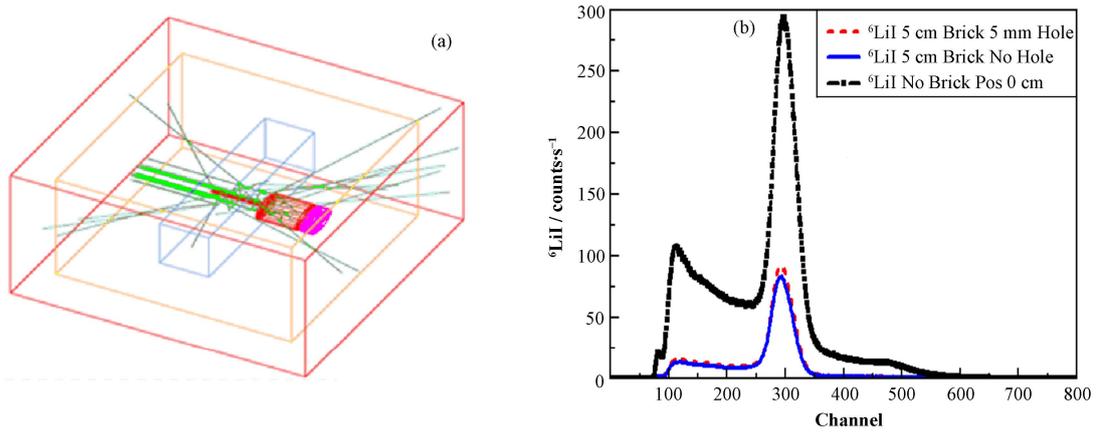


图 2 探测器布局图(a)和测量的热中子谱(b)
Fig.2 Detector layout (a) and thermal neutron spectrum (b).

表 2 热中子经过铅砖和聚乙烯后的穿透率模拟结果

Table 2 Results of efficiency simulation after thermal neutrons penetration through lead bricks and polyethylene.

模拟条件 Simulated conditions	热中子穿透率 Thermal neutron penetration rate
50 mm 铅 (有孔) + 40 mm 聚乙烯 Lead brick with thickness of 50 mm (with hole) and polyethylene with thickness of 40 mm	0.004 3
50 mm 铅 (无孔) + 40 mm 聚乙烯 Lead brick with thickness of 50 mm (without hole) and polyethylene with thickness of 40 mm	0.004 3
40 mm 聚乙烯 Polyethylene with thickness of 40 mm	0.018
50 mm 铅 (无孔) Lead brick with thickness of 50 mm (no hole)	0.16
50 mm 铅 (有孔) Lead brick with thickness of 50 mm (with hole)	0.16
本底中子贡献 (考虑周边环境) Contribution from background neutron (considering surrounding environment)	0.018 9

表 3 ${}^6\text{Li}/{}^{\text{nat}}\text{Li}$ 热中子探测器效率刻度值

Table 3 Efficiency calibration values of ${}^6\text{Li}/{}^{\text{nat}}\text{Li}$ thermal neutron detectors.

测量条件 Measurement conditions	测量时间 Measuring time / s	${}^6\text{Li}$ 测量 计数率 Measured count rate of ${}^6\text{Li}$ / $\text{n}\cdot\text{s}^{-1}$	${}^{\text{nat}}\text{Li}$ 测量 计数率 Measured count rate of ${}^{\text{nat}}\text{Li}$ / $\text{n}\cdot\text{s}^{-1}$	中子计数 率 Neutron count rate / $\text{n}\cdot\text{s}^{-1}$	${}^6\text{Li}$ 探测 效率 Detection efficiency of ${}^6\text{Li}$ / %	${}^{\text{nat}}\text{Li}$ 探测 效率 Detection efficiency of ${}^{\text{nat}}\text{Li}$ / %
50 mm 铅砖 5 mm 孔 Lead brick with thickness of 50 mm, with a diameter of 5 mm center hole	206	4.209×10^3	—	4.265×10^3	98.7	—
50 mm 铅砖 5 mm 孔 Lead brick with thickness of 50 mm, with a diameter of 5 mm center hole	100	4.21×10^3	3.30×10^3	4.265×10^3	98.8	77.4
50 mm 铅砖无小孔 Lead brick with thickness of 50 mm, no hole	200	3.77×10^3	—	4.260×10^3	88.5	—
50 mm 铅砖无小孔 Lead brick with thickness of 50 mm, no hole	100	3.75×10^3	2.98×10^3	4.260×10^3	88.2	70.0
无铅阻挡, 距 0 mm No brick pos 0 mm	100	1.49×10^4	1.256×10^4	1.789×10^4	83.6	70.2
无铅阻挡, 距 50 mm No brick pos 50 mm	100	1.48×10^4	1.118×10^4	1.789×10^4	83.3	62.5
无铅阻挡, 距 150 mm No brick pos 150 mm	100	1.48×10^4	—	1.789×10^4	83.3	—
平均效率值 Average efficiency	—	—	—	—	89.2	70.0

注: 其中距离 0 mm、50 mm 和 150 mm 为探测器前表面距离热柱孔道的出口距离

Note: Distances of 0 mm, 50 mm and 150 mm, are the distances from the front surface of the detector to the outlet of plume channel.

从模拟计算及实验刻度结果^[8-9]得到结论: LiI 晶体具有较高的热中子探测效率, 其中富集 ${}^6\text{Li}$ 的 LiI 晶体可以达到约 90% 的效率值, 而天然丰度 LiI 晶体对热中子的探测效率也达到约 70%; 上述探测效率数值已考虑环境中子本底及中子脉冲与周围材料散射的影响。

热中子穿透 50 mm 铅块的穿透率约为 16.5%, 而穿透 40 mm 高密度聚乙烯的穿透率为 1.79%, 即高密度聚乙烯的慢化和散射效果比铅高了一个量级左右, 因此从测量结果上看, 铅块阻挡条件下的 ${}^6\text{LiI}$ 晶体探测效率更接近理论计算值, 而高密度聚乙烯慢化后的热中子效率要低于理论计算值。

理论模拟计算给出 50 mm 厚铅砖有孔和无孔的穿透效率一致, 而实际的测量计数率显示(图 2 和表 2), 在两种情况下计数率有 10% 的差别, 这来自于模拟时 5 mm 小孔相对中子孔道直径 3.5 cm 的比值小于实际测量精度, 模拟时二者无差别, 而最后实际测量探测器效率有接近 8%–10% 的减少。

${}^6\text{Li}$ 对慢中子的俘获截面很大, 反应产物核是带电粒子 α 与 t, $n+{}^6\text{Li}\rightarrow\alpha+t+4.786\text{ MeV}$, 热中子截面为 $9.40\times 10^{-22}\text{ cm}^2$, 而 ${}^7\text{Li}$ 热中子俘获截面约比前者低两个数量级。天然碘化锂晶体具有足够的厚度也能达到较高的热中子探测效率。

天然丰度 LiI 晶体也具有较高的热中子探测效率, 如果以天然丰度 LiI 晶体计数率作为本底计数率来直接扣除富集 LiI 晶体中的 ${}^7\text{Li}$ 贡献, 会引起很大的误差, 因此如果用作双晶体的中子探测器^[10], 采用天然丰度 LiI 晶体并不能快速地扣除伽马本底, 最好采用高纯度的 ${}^7\text{LiI}$ 晶体。

3 结语

利用 MCNP5 及 GEANT4 程序模拟研究了 ${}^6\text{LiI}/{}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 探测器晶体尺寸与探测效率的关系。理论模拟结果表明: 不考虑光传输及 PMT 效率等条件下, ${}^6\text{LiI}$ 对热中子的探测效率约为 98%, ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 约为 65%, 富集的 ${}^6\text{LiI}$ 探测器具有更宽的探测能量范围; 相同的厚度, 增大直径对探测效率无影响; 相同的直径, 增大厚度则探测效率增大。目前实验室测量采用富集 ${}^6\text{Li}$ 和天然丰度 LiI 晶体尺寸均为 $\phi 40\text{ mm}\times 10\text{ mm}$, 经过热中子刻度, 探测器效率均能达到理论计算的效率值, 结果表明: 富集 ${}^6\text{LiI}$ 探测器的实际效率为 90% 以上, ${}^{\text{nat}}\text{LiI}$ 效率约 70% 以上, 实验测量中反应堆中子通量较高, 高效率探测器的计数率也较高, 为了降低数据获取死时间, 我们不得不采用了铅和高密度聚乙烯慢化, 散射部分热中子, 降低热中子注量率, 但是这也带来探测效

率刻度值较大的不确定性, 模拟计算显示约有 2% 的中子来自于周边环境的散射。

参考文献

- 1 Lee H Y, Taddeucci T N, Haight R C, *et al.* Li-glass detector response study with a ${}^{252}\text{Cf}$ source for low-energy prompt fission neutrons[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2013, **703**: 213–219
- 2 Smith F P, Lewin D J. Dark matter detection[J]. Physics Reports, 2002, **187**(5): 203–280
- 3 Ryzhikov V, Nagornaya L, Volkov V, *et al.* Thermal neutron detectors based on complex oxide crystals[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2002, **486**: 156–159
- 4 Booth T E, Goorley J T, Sood A, *et al.* MCNP5 users guide[R]. <http://www.lanl.gov/index.php>, 2003
- 5 Agostinelli S, Allison J, Amako K, *et al.* Geant4-a simulation toolkit[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2003, **506**: 250–303
- 6 苏明, 仲启平, 郑玉来, 等. γ 全吸收型探测装置中子束流监视器的 Geant4 模拟[J]. 原子能科学技术, 2009, **43**(10): 946–950
SU Ming, ZHONG Qiping, ZHENG Yulai, *et al.* Geant4 simulation of neutron beam monitor in gamma-ray total absorption facility[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2009, **43**(10): 946–950
- 7 张奇玮, 贺国珠, 阮锡超, 等. 锂玻璃探测器中子探测效率的刻度[J]. 原子核物理评论, 2013, **30**(2): 156–160
ZHANG Qiwei, HE Guozhu, RUAN Xichao, *et al.* Calibration of neutron detection efficiency of Li-glass detector[J]. Nuclear Physics Review, 2013, **30**(2): 156–160
- 8 刘应都, 张国强, 王宏伟, 等. ${}^3\text{He}$ 正比计数器探测效率模拟及灵敏度刻度[J]. 核技术, 2012, **35**(3): 175–178
LIU Yingdu, ZHANG Guoqiang, WANG Hongwei, *et al.* Simulation of detection efficiency for a ${}^3\text{He}$ proportional counter and its sensitivity calibration[J]. Nuclear Techniques, 2012, **35**(3): 175–178
- 9 Mares V, Schraube H. Evaluation of the response matrix of a Bonner sphere spectrometer with LiI detector from thermal energy to 100 MeV[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 1994, **337**: 461–473
- 10 汲长松, 张淑兰, 张树衡. ${}^6\text{Li}$ 和 ${}^7\text{LiI}$ 双玻璃闪烁体 γ 补偿法测量中子注量[J]. 核电子学及探测技术, 1998, **18**(3): 182–186
JI Changsong, ZHANG Shulan, ZHANG Shuheng.

Neutron flux measurement with ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ dual glass
scintillators by γ compensation method[J]. Nuclear

Electronics and Detection Technology, 1998, **18**(3):
182-186

Detection efficiency simulation and measurement of ${}^6\text{Li}/{}^{\text{nat}}\text{Li}$ scintillation detector

DU Long^{1,2} CHANG Le^{1,3} WANG Yuting^{1,2} ZHANG Song^{1,4} CAO Xiguang^{1,4} WANG Hongwei^{1,2,4}
ZHANG Guoqiang^{1,4} ZHONG Chen^{1,4} LI Chen^{1,4}

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Jiading Campus, Shanghai 201800, China)

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3(Henan Normal University, Academy of Physics and Electronic Engineering, Xixiang 453007, China)

4(Key Laboratory of Nuclear Radiation and Nuclear Energy Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstracts Background: Being of very high detection efficiency and small size, Lithium iodide (LiI) scintillator detector is used extensively in neutron measurement and environmental monitoring. **Purpose:** Using thermal reactor, neutron detectors will be tested and calibrated. And a new neutron detector device will be designed and studied. **Methods:** The relationship between the size and detection efficiency of the thermal neutron detector ${}^6\text{Li}/{}^{\text{nat}}\text{Li}$ was studied using Monte Carlo code GEANT4 and MCNP5 package, and the thermal neutron efficiency of detector was calibrated by reactor neutrons. **Results:** The theoretical simulation shows that the thermal neutron detection efficiency of detector of 10-mm thickness is relatively high, the enriched ${}^6\text{Li}$ is up to 98% and the nature ${}^{\text{nat}}\text{Li}$ 65%. The thermal neutron efficiency of detector is calibrated by reactor thermal neutrons. Considering the neutron scattering by the lead brick, high density polythene and environment neutron contribution, the detection efficiency of ${}^6\text{Li}$ detector is about 90% and ${}^{\text{nat}}\text{Li}$ detector 70%. **Conclusion:** The detector efficiency can reach the efficiency value of theoretical calculations.

Key words Monte Carlo, Scintillation detector, Thermal reactor, Efficiency

CLC TL812⁺.1