

文章编号：0258-0926(2017)S1-0001-03；doi: 10.13832/j.jnpe.2017.S1.0001

基于铁电材料的强脉冲核辐射探测器性能模拟研究

梁文峰, 吴健, 鲁艺, 高辉, 李勳, 荣茹

中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川绵阳, 621900

摘要：通过分析铁电核辐射探测工作原理及电路响应过程，建立电学信号与材料性能及辐射场波形的理论关系，利用程序 GEANT4 模拟了 CFBR-II 堆泄漏中子和伽马在具有代表性的锆钛酸铅镧 (PLZT) 铅基陶瓷、钽酸锂单晶以及聚偏氟乙烯 (PVDF) 典型铁电材料中的能量沉积状况，获得了 3 种典型铁电材料用于核辐射探测的性能。3 种探测器的探测灵敏度约为 $10^{-25} \sim 10^{-27} \text{ C}\cdot\text{m}^{-2}$ ，其中 PVDF 探测器灵敏度最低，但其信号 98% 是由脉冲中子场贡献，因此 PVDF 探测器可用于高强度快中子脉冲波形测量。

关键词：铁电材料；核辐射探测器；热释电效应

中图分类号：O571.53 文献标志码：A

Simulation Study on Intense Pulse Nuclear Radiation Detectors with Ferroelectric Materials

Liang Wenfeng, Wu Jian, Lu Yi, Gao Hui, Li Meng, Rong Ru

Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan, 621900, China

Abstract: Based on the working principle of a ferroelectric radiation detector and the response of the read out circuit, the electrical signal as a function of material properties and the wave-forms of radiation field was developed theoretically. A code based on GEANT4 was adopted to simulate the energy depositions of the CFBR-II leakage neutrons and gammas in three typical ferroelectric materials, including lanthanum lead zirconate titanate PLZT ceramics, lithium tantalate single crystal, and polyvinylidene fluoride films, of which the theoretical properties as nuclear detectors were obtained. To detect the radiation field of the CFBR-II reactor, the levels of sensitivity is approximately in the range of $10^{-25} \sim 10^{-27} \text{ C}\cdot\text{m}^{-2}$, and results were confirmed by experiments. Although the polyvinylidene fluoride detector has the lowest sensitivity, it still have the potential to be used for fast neutron wave-from detections due to the singnal mainly contributed by neutrons.

Key words: Ferroelectric materials, Nuclear radiation detectors, Pyroelectric effect

0 前言

铁电材料及器件具有优异的抗核辐射性能。利用铁电材料的热释电性能，通过直接加热热释电材料的方式便能获得 100 kV 量级的高压电场，可用于制备小型离子加速器或中子源。若利用伽马射线^[1]或中子^[2]脉冲场在材料中沉积能量为热源，引起的材料温升将会形成电流信号，因此可

用于制备热释电核辐射探测器，这类探测器响应时间主要受制于探测电路，可达到纳秒左右。

通常半导体中子探测器或基于 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ 铁电材料^[2]的中子探测需要制备额外的中子转化层（如含 ^{235}U 、 ^{10}B 或 ^6Li 的材料），这使制备工艺更复杂且探测效率受限。部分铁电材料本身含有天然锂成分，与热中子存在较大的反应截面。另

收稿日期：2017-04-18；修回日期：2017-05-16

基金项目：国家自然科学基金项目（11305152）；中国工程物理研究院科学技术发展基金项目（2014B0103006、2015B0103008）

作者简介：梁文峰（1985—），男，副研究员，主要从事反应堆物理研究

外部分有机物铁电材料含有大量的氢,有希望用于快中子探测研究。本文介绍了铁电核辐射探测器工作原理,并通过理论分析研究了不同铁电材料用于中国快中子脉冲堆-II(CFBR-II)快中子波形探测的性能。

1 铁电探测器工作原理

若将铁电探测器用于探测穿透能力较弱的离子束或激光探测,能量主要沉积在铁电材料表面区域,其工作原理与传统的热释电红外探测器一致。当用于探测穿透能力很强的中子或伽马时,热量将直接沉积于整个铁电材料体积范围,悬空夹持的探测器热学性能由以下方程表述:

$$P = C_v \frac{d(\Delta T)}{dt} + \frac{4\eta\sigma T^3 A_a}{v} (\Delta T) \quad (1)$$

式中, P 为材料单位体积的发热功率; C_v 为材料体积比热; v 为材料体积; A_a 为材料总表面积; t 为时间; ΔT 为材料温升; η 为辐射黑度系数; σ 为斯蒂芬常数,约为 $5.67 \times 10^{-8} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$; T 为材料温度。

对于直径为 d 、厚度为 a 的圆片状铁电材料, P 、热时间常数 τ_{th} 可以表示如下:

$$P = C_v e^{-\frac{t}{\tau_{th}}} \frac{\partial}{\partial t} \left(\Delta T e^{\frac{t}{\tau_{th}}} \right) \quad (2)$$

$$\tau_{th} = \frac{1}{8} \frac{C_v a d}{\eta \sigma T^3 (d + 2a)} \quad (3)$$

通常 d 远大于 a ; 在室温下 τ_{th} 约为 100 s 以上。用于脉冲辐射场探测时可以采用绝热近似开展分析,因此式(1)的右侧第2项可以忽略。为与后续输运计算条件相对应,假设平均每个入射粒子在厚度为 h 的样品中沉积的能量为 E 、粒子注量率为 ϕ 时,样品的 P 为:

$$P = \frac{\phi E}{h} \quad (4)$$

ΔT 将引起极化强度的减小,从而释放一部分束缚电荷,当热释电系数 λ 不随温度显著变化时,电极面积为 A 的样品释放电荷总量 Q 为:

$$Q = \lambda A \Delta T \quad (5)$$

根据基尔霍夫定律,铁电陶瓷辐射响应测试电路满足以下方程:

$$(C_{LT} + C_{cable}) \frac{dV_{out}}{dt} + \frac{V_{out}}{R} = \frac{dQ}{dt} \quad (6)$$

式中, C_{LT} 为样品电容; C_{cable} 为电路电缆电容; V_{out} 为输出电压; R 为负载电阻。

由此可以得到输出电压信号:

$$V_{out} = \frac{\lambda A E}{(C_{LT} + C_{cable}) h C_v} e^{-\frac{t}{\tau_e}} \int \phi(t) e^{\frac{t}{\tau_e}} dt \quad (7)$$

式中, τ_e 为电压时间常数。

如果将标定的热释电核辐射探测器用于辐射场探测,因此当 λ 不随温度显著变化时,若粒子注量为 ϕ ,则注量和注量率表达如下:

$$\phi(t) = k U_{int}(t) \quad (8)$$

$$\phi(t) = k \frac{dU_{int}(t)}{dt} \quad (9)$$

$$k = \frac{(C_{LT} + C_{cable}) h C_v}{\lambda A E}$$

$$U_{int}(t) = V_{out}(t) - V_{out}(0) + \frac{1}{\tau_e} \int_0^t V_{out}(\tau) d\tau$$

由于铁电材料属于绝缘体,因此相对于信号采集模块而言,电路的输入电阻非常大,因此很难同时确保信号强度和响应时间。但利用以上表达式可以很好地解决这一问题。

2 铁电中子探测器性能模拟

平均每个入射粒子在样品中的 E 可以通过输运计算获得。利用程序 GEANT4 模拟了 CFBR-II 堆泄漏中子、伽马在具有代表性的铅钛酸铅陶瓷(PLZT)铅基陶瓷、钽酸锂单晶以及聚偏氟乙烯(PVDF)典型铁电材料中的能量沉积状况,计算中假定样品厚度均为 $1 \times 10^{-3} \text{ m}$,如表1所示^[3-4]。

表1 典型铁电材料关键参数
Table 1 Key Properties of Typical Ferroelectric Materials

材料	PLZT 陶瓷	LiTaO ₃ 单晶	PVDF
密度/ $10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$	7.8	7.45	1.78
热释电系数/ $10^{-4} \text{ C} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$	3.5 ~ 4.5	2.3	0.4
比热/ $10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$	1.3	3.10	8.34
单个中子平均沉积能量/ 10^3 eV	28.2	25	1.53

可以看出,在 CFBR-II 堆这种快中子辐射场下,由于 LiTaO₃ 成分中含有较多的天然锂,平均每个中子在 LiTaO₃ 单晶中沉积能量是 (Pb_{0.92}La_{0.08}) (Zr_{0.65}Ti_{0.35}) O₃ 陶瓷的 2 倍多。同时又由于两者密度都比较大,平均每个伽马光子在两者中所沉积能量都远大于中子贡献。但

PVDF 有机铁电材料的中子能量沉积贡献则远大于伽马光子，与无机铁电材料情况相反，这主要是源于 PVDF 中含有约 $3.35 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ 的氢，其与快中子具有较大的作用截面。这说明无机铁电材料主要适用于中子、伽马混合场的整体效益测量，而 PVDF 这种含氢铁电则可用于强的快中子辐射场的测量。对于 0.0253 eV 单能热中子，由于 LiTaO_3 单晶含有的 ^6Li 与中子反应截面较大，平均每个入射热中子可以沉积的能量为 $6.116 \times 10^5 \text{ eV}$ ，远远大于 CFBR-II 快中子能谱下平均沉积的能量，因此 LiTaO_3 也适用于伽马强度较低情况下的热中子场探测。

由于 PVDF 更适合快中子场测量，因此进一步利用 GEANT4 分析了掺硼 (^{10}B 富集度 90%) 和掺氟化锂 (^6Li 富集度 90%) 对能量沉积的影响，如表 2 所示。由于 CFBR-II 的泄漏中子、伽马能谱较硬，掺入热中子吸收截面较大的成分后并未显著提升其探测性能。

表 2 掺硼及掺氟化锂 PVDF 对能量沉积影响
Table 2 Doping Effects of Boron or Lithium Fluoride on the Energy Depositions in PVDF

原子分数/%	CFBR-II 堆入射粒子		
	单个中子平均沉积能量/ 10^3 eV	单个光子平均沉积能量/ 10^3 eV	
掺硼 PVDF	0	8.34	1.53
	2	8.46	1.54
	4	8.46	1.56
	8	8.55	1.55
掺氟化锂 PVDF	0	8.34	1.53
	2	8.47	1.54
	4	8.76	1.56
	8	9.07	1.58

为进一步分析不同铁电材料探测器对中子和伽马的响应情况，假定当电路负载电阻等于数据采集系统的输入电阻 $1.0 \times 10^6 \Omega$ ，探测器中铁电材料样品的热中子吸收截面均为 $1 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ ，中子与光子之比为 10，累计中子注量约 $6.5 \times 10^{16} \text{ m}^{-2}$ ，PLZT 热释电系数取折中值 $4 \times 10^{-4} \text{ C} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ 。由于 PLZT 热释电性能较好，因此信号强度最大，但伽马信号占主导作用，因此主要以泄漏伽马波形为主。 LiTaO_3 信号强度与 PLZT 铅基陶瓷相近，但由于成分中含锂，因此中子信号强度强于伽马信号。而 PVDF 信号最弱，但直接测量的信号 98% 是由脉

冲中子场所贡献，主要源于材料中含约 $3.35 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ 的氢，而氢与快中子有较大作用截面，因此也可用于快中子脉冲波形的测量。

这 3 种探测器在 CFBR-II 堆泄漏能谱下的理论灵敏度都非常低，约为 $10^{-27} \sim 10^{-25} \text{ C} \cdot \text{m}^2$ ，与强脉冲裂变中子探测器或无源介质快中子探测器相当，但铁电探测器不依赖真空、高压，制备工艺简单，可以很容易制备大面积探测器。笔者前期已利用 LiTaO_3 制备了铁电探测器并开展了实验^[4]。研究发现，式 (8) 和式 (9) 能很好地还原中子注量波形，该波形与通常使用的闪烁体探测器一致，由此证实了这类探测器的可行性。进一步基于理论分析，明确了 CFBR-II 堆泄漏中子和伽马对不同铁电探测器信号的贡献，发现 PLZT 铅基陶瓷和 LiTaO_3 主要适用于 CFBR-II 堆中子和伽马整体作用的波形测量，而 PVDF 适用于中子波形测量。

3 结 论

通过分析铁电核辐射探测工作原理及电路响应过程，建立了电学信号与材料性能及辐射场波形的理论关系，然后利用 GENT4 模拟了 CFBR-II 堆泄漏中子和伽马在具有代表性的 PLZT 铅基陶瓷、钽酸锂单晶以及 PVDF 典型铁电材料中的能量沉积状况，获得了 3 种典型铁电材料用于核辐射探测的性能。3 种探测器的探测灵敏度约为 $10^{-27} \sim 10^{-25} \text{ C} \cdot \text{m}^2$ ，其中 PVDF 探测器灵敏度最低，但其信号 98% 是由脉冲中子场所贡献，因此 PVDF 有用于高强度快中子脉冲波形测量的潜力。

参考文献：

- [1] Borissenok V A, Novitskii E Z, Simakov V G. A pyroelectric detector of pulsed γ rays[J]. Instruments and Experimental Techniques, 2009, 52(4): 523-535.
- [2] Souza E A de, Geraldo L P, Pugliesi R, et al. Thermal neutron detection using pyroelectric ceramics together with boron converters[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 1995, 365(5): 427-432.
- [3] Guggilla P, Batra A K, Currie J R, et al. Pyroelectric ceramics for infrared detection applications[J]. Materials Letters, 2006, 60(3): 1937-1942.
- [4] Liang W F, Lu Y, Wu J, et al. Application of LiTaO_3 pyroelectric crystal for pulsed neutron detection[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2016, 827(4): 161-164.

(责任编辑：王中强)