



利用ICPMS进行放射性核素含量测量及 探测器本底研究

王思广

北京大学物理学院

基于惰性气体探测器的直接暗物质探测实验中期总结会,2018.7,北京







- •北大物理学院超低核素含量测量实验室简介
- ●不同材料中²³⁸U、²³²Th含量测量
 - ●铜
 - ●MicroMegas电路板
 - ●不锈钢
 - ●3D打印机材料
- 利用卷积神经网络鉴别 NLDBD 事件和本底事件
 GPU与RooFit的结合进行拟合算法的研究
 总结





北大物理学院超低核素含量测量实验室简介







2018/7/28

siguang@pku.edu.cn



2018/7/28

siguang@pku.edu.cn

5

















COTTA

2.4 mg



0.9999(25)ppm 235U





hed for ""U content	mass frac	tion (·100)
U/kg ¹⁰ U/U=0.98	m(²³³ U)/m(U) m(²³⁴ U)/m(U) m(²³⁵ U)/m(U) m(²³⁶ U)/m(U) m(²³⁶ U)/m(U)	98.020 1(58) 0.918 3(02) 0.216 0(56) 0.024 4(03) 0.821 2(20)
		222

2.3539(42)ppm ²³³U



Isotope dilution analysis using radioactive tracers for U and Th







不同样品中²³⁸U及²³²Th的含量测量结果



TEVA、UTEVA树脂预处理







#1: 2ml 3 M HNO₃
#2: 2ml UPW
#3: 2ml HCl (37%)
#4: 2ml 5 M HCl
#5: 8ml 0.02 M HCl
#6: 10ml UPW

















Sample	²³² Th pg/g	²³⁸ U pg/g	
Cu 1	0.22±0.07	0.37±0.08	
Cu 2	0.28 ±0.14	0.37±0.07	
Cu 3	0.27±0.07	0.59±0.19	
Cu 4	0.16±0.07	0.58±0.03	
Cu 5	0.14±0.07	0.54±0.15	卡 法 检日
Cu 6	0.30±0.11	0.54±0.11	ノイ本位
Cu 7	0.05±0.15	0.50±0.09	0.21 pg ²³² T
平均值	0.20±0.09	0.50±0.09	0.45 pg ²³ °U

方法检出限=3×(重复11次测量空白样品的标准偏差)×样品定容后质量÷所消解样品质量



MicroMegas电路板中U、Th含量测量结果(北大)



微波消解程序:



5% HNO3清洗样品表层
微波消解仪-浓 HNO ₃ 消解 样品加入已知量的 ²³⁵ U及 ²³⁰ Th进行标记
萃取树脂提取 Th、U
ICP-MS 分析

步骤	温度 °C	升温时间 min	保持时间 min	功率%	
步骤1	120	5	10	60	
步骤2	170	5	10	80	
步骤3	200	10	30	90	
步骤4	230	5	5	80	
步骤5	50	5	0	60	

Preliminary results

Sample	²³² Th pg/g	²³⁸ U pg/g
GEM 1	36 ±16	273±7
GEM 2	34 ±13	308±42
GEM 3	118±25	292±34
BIPO 1	46	287
BIPO 2	43	266

▲ PANDAX MicroMegas电路板中U、Th含量测量结果(中山大学刘洪涛老师)

Th

(pg/g)

33.9

2.28

4.78

Th

(pg/g)

2.64

203

64.3

U

(pg/g)

646

579

607

U

(pg/g)

595

 2.13×10^{3}

984

Paralle

sample

1

2

3

Parallel

sample

1

2

3





- Surface treatment
- Microwave Digestion
- Solid phase extraction to remove Cu
- Evaporated into dryness
- Add fixed volume of 2%HNO₃ + 0.5% HCl
- Analyze

²³² Th pg/g	²³⁸ U pg/g
46	287
43	266
	²³² Th pg/g 46 43

中山大学与北大的测量结果基本符合。

Inhomogenous! Sources?

- Kapton foil?
- Copper?
- Read strips/pads?
- Reagents used in the producing period?

Raw material analysis

siguang@pku.edu.cn

13









▲ PANDAX 不锈钢中U、Th含量测量比较: HPGe和 ICPMS









6mm钢板:

Unit; mBq/kg

Method	U-238(Ra-226)	Th-232(Ac-228)	Th-232(Th-228)
HPGe CJPL (SJTU)	1.29± 1.80	<2.21	1.45 ± 2.10
ICP-MS(PKU)	12.8±1.2	0.23±	0.04





Unit; mBq/kg

φ400mm 棒材	Method	U-238(Ra-226)	Th-232(Ac-228)	Th-232(Th-228)
	HPGe CJPL (SJTU)	0.76± 1.35	2.26 ± 1.80	2.08 ± 1.56
	ICP-MS(PKU)	13.5±1.2	2.46 ±	0.52

φ400mm 棒材 两端

😉 PANDA X

Unit; mBq/kg

Method	U-238(Ra-226)	Th-232(Ac-228)	Th-232(Th-228)
HPGe CJPL (SJTU)	9.77 ± 1.80	10.58± 2.70	15.99± 2.15
	0.64 ± 3.92	0.63 ± 3.40	3.61 ± 4.44
ICP-MS(PKU)	9.4±0.9	1.23±	0.20
	7.5±1.1	1.25±	0.31





P4TO 中³⁹K的含量:3个样品27、26及28(ng/g) (ICP-MS in PKU)

丰度比例: ⁴⁰K:³⁹K=1.17×10⁻⁴: 0.932581

ICPMS(PKU)给出的结果: ${}^{40}K = \frac{0.000117}{0.932581} {}^{39}K = \frac{0.000117}{0.932581} \times 27ppb = 3.39ppt = 0.90mBq/kg$

HPGe(SJTU)的结果 40K: <13.34 mBq/kg







•3D 打印材料名称: "Feinpolyamide PA 2200 for EOSINT P"



测量流程:

- 利用微波消解进行消解仪
- 定容
- 稀释测量

Sample	Weight g	²³² Th pg/g	²³⁸ U pg/g
1	0.09522	283	3586
2	0.09369	290	3386





使用蒙特卡洛方法进行探测器背景模拟



本底来源及探测器结构

¹³⁶Xe NLDBD 事件 Q=2458keV ROI: [2395keV, 2520keV]

²¹⁴Bi: 2447.8keV
²⁰⁸Tl: 2614.5keV
⁶⁰Co: 1.33MeV+1.17MeV

计 *3	放射性活度 (μ Bq/kg)			
ባ/ጋ ባሣተ	²³² Th	²³⁸ U	⁶⁰ Co	
铜	0.2	0.75	100	
PTFE	0.1	4.94	-	
不锈钢	0.32×10^{3}	0.5×10^{3}	2.6×10^{3}	
超纯水	0.04	0.12	-	
混凝土	9.9×10^{6}	4.4×10^{6}	-	

探测器不同材料放射性活度表



组件	参数	值	材料	质量
	内径	80 cm		
铜罐罐体	高度	200 cm	铜	3438 kg
	壁厚	3 cm		
銅罐濃美	直径	88 cm	絧	3320 kg
抑唯响血	厚度	15 cm	귀퍼	5520 kg
市田た丁	直径	1.4 cm	不锈钢	230.1 kg
AR DJ	高度	40 cm	1.199.143	250.1 kg
	内径	75 cm		
祝妳	高度	200 cm	PTFE	1042 kg
初况	厚度	5 cm		
	铜环个数	99	铜	118.2 kg
中心极板	厚度	$50 \mu m$	铜	0.79 kg

siguang@pku.edu.cn

探测器结构组成



探测器背景模拟结果



- 使用 Geant4 进行了衰变元素的全衰变链模拟。
- 统计了位于不同部件中元素衰变沉积能量位于 ROI 中的事件数目。
- 考虑了气体探测器响应(电离效率,电子漂移速度,电子扩散速度等)。
- 考虑了电子学触发(512bins@5MHz, 102us)

部件	元素	活度	每年计 数	BI (10 ⁻⁵ c/(keV·kg·y))
读出平面	²³⁸ U	45nBq/cm ²	60.5	241.6
螺钉	²³² Th	0.32mBq/kg	39.8	159
读出平面	²³² Th	14nBq/cm ²	23.5	93.9
场笼	²³⁸ U	4.95uBq/kg	15.0	59.9
螺钉	²³⁸ U	0.5mBq/kg	7.5	30.1
		•••		

探测器部件主要本底贡献 (Top 5),表中BI指本底水平(Background index),即为每年计数除以元素质量除以ROI范围。
2018/7/28 siguang@pku.edu.cn 22







- 本底主要来自于最接近探测器灵敏气体的 Micromegas, 以及较为不洁净的不锈钢螺钉。
- 总计本底水平约 3.08×10⁻³ count/(keV·kg·y)。对与200kg探测器而言每年背景计数约为 78 个。
- 因为电子学读出窗口的限制(102us),来自于⁶⁰Co的两个Gamma沉积的能量在同一时间窗口被读出的概率较低,其计数被极大压低。







利用卷积神经网络鉴别 NLDBD 事件和本底事件





● 事件特征明显:

信号NLDBD:两个高能电子,径迹的末端会有两个明显的布拉格峰。 背景Gamma:一个或多个次级电子,一个或多个单末端布拉格峰的径迹。

• 像素读出的困难:

极多的通道数目(>32万/探测器),电子学部分庞大。

● Micromegas 读出引入的困难:

无法同时获取到漂移到 MM 读出板上电子的 X 和 Y 的位置,只能得到它的 X 或 Y 的位

- 置。难于重建三维径迹。
- 传统分析方法的困难:

丢失大量的详尽径迹信息

● 使用 CNN 的原因:

CNN 擅长于图片分类,我们期待 CNN 能够像 人一样从投影中分辨事件类型。 CNN 能够极大利用探测得到的信息。









• 神经网络由神经元组成,每个神经元可以如下表示:

 $y_i = f(x_1, x_2, \dots x_n, a_{i1}, a_{i2}, \dots, a_{im})$

- 多个神经元组成 <mark>网络</mark>层
- 整个神经网络可以认为是一个非线性系统

 $\bar{Y}_0=\mathcal{F}(\bar{X}_0,\mathcal{W})$

- 一个神经网络中所有神经元的参数便被称为该网络的权重 (Weight),而神经网络中的层的类型和层的属性(神经元数目, 组合方式)则被称作模型(Model)。
- 卷积神经网络是指拥有至少一层卷积层的神经网络。
 - 以较少的参数数目达到较好的效果



全连接神经网络示意图









- Resnet50 能够达到最优效果。
- 16-20 轮训练结果比较接近。
- 需要寻找一个最优的 cut 来分离信号 和背景,所以定义了(<u>Figure Of Merit</u>)

$$FOM \propto \frac{s}{\sqrt{b}} = \frac{s_d}{\sqrt{b_d}} \cdot \frac{\epsilon_{s,cnn}}{\sqrt{\epsilon_{b,cnn}}} \propto \frac{\epsilon_{s,cnn}}{\sqrt{\epsilon_{b,cnn}}}$$

epoch	optimized κ_c	$\epsilon_{s,cnn}$	$1 - \epsilon_{b,cnn}$	$\epsilon_{s,cnn}/\sqrt{\epsilon_{b,cnn}}$	final BI
16	0.983	0.475	0.9943	6.264	1.775×10^{-5}
17	0.976	0.569	0.9916	6.196	2.605×10^{-5}
18	0.981	0.487	0.9936	6.098	1.968×10^{-5}
19	0.966	0.540	0.9923	6.165	2.369×10^{-5}
20	0.976	0.520	0.9928	6.145	2.215×10^{-5}
average				6.174 ± 0.055	

K_c为CNN的输出的cut值 BI(count/kg/keV/year)















GPU与RooFit的结合进行拟合算法的研究







- GPU 拥有着众多的计算单元和超长的流水线设计 ,但只有很简单的逻辑控制部分。
- GPU的操作高延迟,高带宽。
- GPU适合与并行处理简单计算。

所以在数值积分中,计算函数在各个节点x_i的值比较 适合使用GPU加速。

Nvidia 的 CUDA 中的并行框架 Thrust 可以快速方便的 完成这一操作。

理想情况下,如果GPU拥有无限的计算单元: Map 操作时间复杂度 O(1) Reduce 操作事件复杂度 O(log(n))

算法2使用GPU的黎曼积分

- **输入:** Xmax, Xmin: 积分上下界, Bins: 分bin数目 **输出:** 积分结果
- 1: function GPURIEMANNEVALUATE
- 2: $result \leftarrow 0$
- 3: $step \leftarrow (Xmax Xmin)/Bins$
- 4: $t \leftarrow \text{Sequence}(Bins, Xmin + 0.5 * step, step)$
- 5: $t \leftarrow MAP(t, GetVal)$
- 6: $result \leftarrow step*Reduce(t, 0, +)$
- 7: return result
- 8: end function









测试平台:

- CPU: Intel E5-2603 v3
- GPU: Nvidia Tesla K80

测试函数:

能谱函数:柯西函数形式 探测器分辨函数:高斯函数形式

- GPU带来的性能提升和积分节点数目有关,当节点数目为10⁶时,GPU能够带来约218倍的性能提升。
- GPU的内存申请操作较慢,尽可能预分 配内存以提高速度。



单次积分时间消耗随 Bin 数目变化图









- 从无到有建立了一超低放射性核素测量实验室并进行了相关材料(铜、电路板、不锈钢等)的测量研究,测量结果与交大HPGe及中山大学ICPMS进行比对,考虑不能确保样品中待测核素均匀,取样的代表性因素,测量结果基本符合。
- 对探测器的本底进行模拟
- 用卷积神经网络对探测器信号与本底进行区分研究
- GPU与RooFit软件包结合,提高拟合速度约200倍

发表的文章:

1、袁影 王思广*, 电感耦合等离子体质谱法测定单晶铜中痕量放射性核素钍和铀的含量,《核技术》已接收 2、Hao Qiao, Chunyu Lu, Xun Chen*, Ke Han, Xiangdong Ji and Siguang Wang*, Signal-background discrimination with convolutional neural networks in the PandaX-III experiment using MC simulation, SCIENCE CHINA Physics, Mechanics & Astronomy ; doi: 10.1007/s11433-018-9233-5; http://engine.scichina.com/doi/10.1007/s11433-018-9233-5 3、乔颢 王思广*,利用GPU加速信号形状与探测器分辨率随能量变化的卷积,《核技术》已接收 4、Chen X, Fu C B, Galan J, et al. PandaX-III: Searching for neutrinoless double beta decay with high pressure 136Xe gas time projection chambers[J]. Science China(Physics,Mechanics & Astronomy), 2017, 60(6):061011. 合作组文章(乔颢参 加背景模拟工作)





Backup



Stainless Steel (HPGe & ICP-MS)



Sample	unit	Ra226(U238)	Ac228	Th228	U235	Cs137	Co60	K40	material	source	application	measurement
P4TA	mBq/kg	5.67 ± 2.81	13.19 ± 2.86	3.05±3.14	<1.90	< 0.71	0.78±0.82	10.82±15.15	SS			CJPL
P4TB	mBq/kg	<17.72	<24.85	<17.67	<11.06	<8.55	< 6.42	<84.94	SS	太钢核级不锈钢随机取样		redhouse
P4TC	mBq/kg	1.53±0.12	3.86±0.18						SS			ICP-MS
P4TD_1	mBq/kg	0.76± 1.35	2.26± 1.80	2.08± 1.56	<1.33	< 0.35	0.11± 0.39	4.61± 7.63	SS	(2) 400 mana 持井	- 内外罐法兰&螺栓	CJPL
P4TF	mBq/kg	13.5±1.2	2.46±	0.52					SS	φ400mm 俸初		ICP-MS
P4TG_2	mBq/kg	9.77± 1.80	10.58± 2.70	15.99± 2.15	6.52± 1.55	0.32± 0.77	1.93 ± 0.80	12.32± 14.08	SS	(100		CJPL
P4TH	mBq/kg	0.64 ± 3.92	0.63± 3.40	3.61 ± 4.44	6.73 ± 2.17	3.01 ± 0.73	0.07 ±0.86	< 14.14	SS	φ400mm 榨机 — j洏		CJPL
P4TI	mBq/kg	14.47± 2.12	12.07± 3.11	13.99± 2.35	8.68± 1.88	1.82 ± 1.00	1.10 ± 0.79	<13.53	SS	10mm SS board	外罐封头&TPC电极环	CJPL
P4TJ	mBq/kg	5.23±2.27	9.27±3.76	10.40±2.69	5.93±2.10	0.65 ± 1.11	< 0.83	<17.64	SS	8mm SS board	外罐筒体	CJPL
P4TK	mBq/kg	1.16±1.15	0.38±1.78	2.66±1.41	2.00±1.42	0.53±0.66	0.31±0.47	<8.50	SS	10mm SS board	外罐封头&TPC电极环	CJPL
P4TL	mBq/kg	1.29± 1.80	<2.21	1.45± 2.10	3.65± 2.11	0.89± 1.05	0.43± 0.77	<13.34	SS	from board	內罐封头&筒体	CJPL
P4TO	mBq/kg	12.8±1.2	0.23±	0.04					SS	briad mind		ICP-MS
P4TN	mBq/kg	9.4±0.9	1.23±	0.20					SS	··· 400 +=+++ ····	古りなさせる神谷	ICP-MS
P4TM	mBq/kg	7.5±1.1	1.25±0.31						SS	φ400mm	内小唯法二& 够性	ICP-MS
T4	mBq/kg	<44.30	114.26±87.14	87.35±40.70	60.86±36.35	<34.17	78.25±28.24	9043.29±504.69	titanium	宝钛		redhouse
slag	Bq/kg	19.48±0.11	33.37±0.33	32.04±0.19	14.35±0.10	3.04±0.10	2.10±0.08	59.58±1.52	blast furnace slag	太钢炉渣		redhouse
less reliable data												
P4TD_2		2.94± 1.08	<1.45	1.48± 1.20	1.74± 1.18	< 0.49	< 0.40	<7.77				
P4TG_1		18.42±2.10	42.16±3.08	56.17±2.71	10.55±1.38	2.61±0.71	2.00±0.62	<10.65				
A\B\C取自同一个样品,太钢核级不锈钢随机取样												
D\E\F取自同一样品,与G、H来自同一炼钢炉,G\H分别取自400mm直径棒材两端												
M、N也是分别分别取自400mm直径棒材两端,用北大ICP-MS测量												
I取自10mm板材中	Þ的一件,	J取自8mm钢	版,K <mark>取</mark> 自另一	张10mm钢板	, 」、」来自同-	-炼钢炉						
L、O来自同一张	6mm板材											



HPGe γ-ray counting station in CJPL, worked for PandaX-I and –II for detector material Screen, The Sensitivity can reach as low as 0.1mBq



🔄 PANDA X

- 175% relative detection efficiency HPGe, sensitive massL 3.69kg
- BK γ-ray rate of 2.6 count/min in 10keV-2.7MeV
- Copper Chamber and Lead fully filled in the stainless steel shielding box 2018/7/28



Comparison of the backgrounds with and without passive shielding system in CJPL. The red line stands for the 5-day spectrum taken without the γ shielding system, while the blue one is a 51-day pure background with the passive shields and nitrogen flushing





D.D. LaFerriere, T.C. Maiti, I.J. Arnquist, E. W. Hope*, Pacific Northwest National Laboratory. NIMA 775 (2015) 93-98

²³⁸U: 0.313μBq/kg (0.0106ppt)
 ²³²Th: 0.034 μBq/kg (0.0084ppt)

Class 10 000 clean-room Agilent 7700 ICP-MS

$$2R-NO_{3}^{-} + UO_{2}(NO_{3})_{4}^{2^{-}} \Leftrightarrow R_{2}-UO_{2}(NO_{3})_{4}^{2^{-}} + 2NO_{3}^{-^{-}}$$
$$2R-NO_{3}^{-} + Th(NO_{3})_{6}^{2^{-}} \Leftrightarrow R_{2}-Th(NO_{3})_{6}^{2^{-}} + 2NO_{3}^{-^{-}}$$

$$R_{2}-UO_{2}(NO_{3})_{4}^{2-}+2Cl^{-} \Leftrightarrow 2R-Cl^{-}+UO_{2}^{2+}+4NO_{3}^{-}$$

$$R_{2}-Th(NO_{3})_{6}^{2-}+6Cl^{-} \Leftrightarrow 2R-Cl^{-}+ThCl_{4(aq)}+6NO_{3}^{-}$$

Spiked with ²²⁹Th and ²³³U



AG 1×4, 100-200 离子交换树脂 (Bio-Rad Corp)

#1: 0.1M HCl
#2: Cu: 8 M HNO₃ Pb: 6M HNO₃
#3: Sample loaded (spiked with ²²⁹Th、 ²³³U)
#4: Cu: 8 M HNO₃ Pb: 6M HNO₃

#5: 0.1 M HCl



















- 1. 确定网络的输入和输出,即明确问题的输入张量和输出张量分别是什么。
- 2. 根据输入张量输出张量以及问题的特性构造合适的模型。
- 3. 准备足够的输入输出样本数据。
- 4. 使用合适的算法训练模型,得出最符合样本的权重数据。
- 5. 使用该模型和训练得到的权重去预测未知的输入。
- PandaX-III 输入: 重建后得到的 X-Z-Energy 投影和 Y-Z-Energy 投影组成的图片(60x60像素)
- PandaX-III 输出: 0(背景) ——1(信号) 小数
- PandaX-III 模型: 3层简单卷积神经网络, VGG16, Resnet50
- PandaX-III 样本: Geant4 模拟,考虑到探测器响应,电子学触发及读出平面结构。
 - 背景:位于铜罐中的2447keV和2615keV Gamma射线。
 - 信号:位于灵敏气体中,由Decay0模拟得到动量信息的 NLDBD 事件双电子。
 - 总计 11.2万 组样本数据。80%用于训练,10%用于训练中的验证,10%用于测试和检验。

😉 PANDA X







NLDBD事件以及背景事件转换示意图。上部分:¹³⁶Xe NLDBD 事件,下部分:2447keV y 本底事件。(a) 和 (d): BambooMC 模拟得到的原始 hit 信息。(b) 和 (e): 重建后得到的 X-Z-energy 以及 Y-Z-energy 投影。(c) 和 (f):转换完成后的图片示意图,该图片并非 CNN 训练中所使用的图片,而是为了方便读者观看图片的颜色被后期处理过,其中青色代表着红色通道,粉红色代表着绿色通道。











Micromegas 结构示意图



40