

И.Б. Немченко

***РАЗРАБОТКА И ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАСТМАССОВЫХ И
ЖИДКИХ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ ДЛЯ ДЕТЕКТОРОВ
ЭКСПЕРИМЕНТОВ В ОБЛАСТИ НЕЙТРИННОЙ ФИЗИКИ***

Специальность: 01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

*Диссертация на соискание ученой степени
доктора технических наук*

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования

Достоинства ЖС и ПС:

Жидкие сцинтилляторы (ЖС)

- высокое содержание водорода;
- быстроедействие;
- повышенная радиационная стойкость;
- возможность создания детекторов больших размеров;
- относительно низкая стоимость;
- возможность простых способов очистки от радиоактивных загрязнений.

ЖС+:

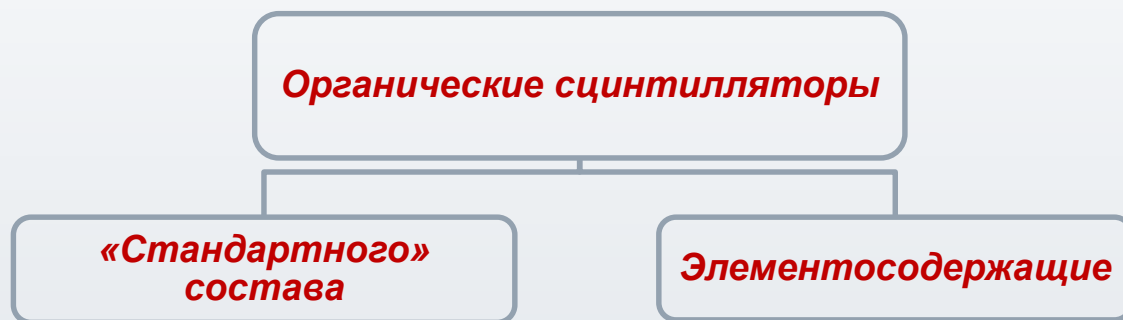
- высокая прозрачность к собственному излучению;
- возможность идентификации частиц по форме импульса.

ПС+:

- пожаробезопасность;
- нетоксичность.

Пластмассовые сцинтилляторы (ПС)

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования



Органические сцинтилляторы (ОС) «стандартного» состава («С,Н-based», основное вещество и люминесцентные добавки) – сцинтилляторы, не содержащие кроме углерода и водорода каких-либо других специально введенных элементов.

ОС «стандартного» состава чувствительны к:

- заряженным частицам (электронам, протонам, α -частицам, мюонам космических лучей и др;)
- быстрым нейтронам.

Эффективность регистрации γ - и рентгеновских квантов ОС невелика и возможна при использовании достаточных объемов рабочего вещества.

Молекулярный характер
люминесценции ОС



ЖС ++ и ПС ++:
возможность коррекции
элементного состава



Увеличение эффективности
регистрации отдельных
видов излучений

ОС «стандартного состава» – основа для направленной модификации элементного состава и расширения спектра детекторов.

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования

Области применения ЭОС в фундаментальных исследованиях

Элементы или изотопы	Области применения ЭОС
${}^6\text{Li}$, ${}^{10}\text{B}$, ${}^{113}\text{Cd}$, ${}^{155}\text{Gd}$, ${}^{157}\text{Gd}$	Детекторы нейтронов, поиск нейтринных осцилляций
${}^{176}\text{Yb}$, ${}^{160}\text{Gd}$, ${}^{115}\text{In}$, ${}^{100}\text{Mo}$, ${}^{37}\text{Cl}$	Детектирование солнечных нейтрино
Pb	Детектирование астрофизических нейтрино
${}^{150}\text{Nd}$, ${}^{160}\text{Gd}$, ${}^{100}\text{Mo}$, ${}^{130}\text{Te}$, ${}^{82}\text{Se}$	Поиск двойного β -распада
Pb , Sn , W , Hg , Bi	Создание калориметров полного поглощения

Прикладные исследования:

- дозиметрия;
- радиоэкологический мониторинг воды, продуктов питания, строительных материалов;
- регистрация нейтронов в смешанных n, γ -полях;
- контроль несанкционированного перемещения радиоактивных и делящихся материалов.

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования

Элементосодержащие добавки

Бор	ЖС: триметилборат; N,N,N-триметилбозол. ПС: метаборат, тетраборат, тетрафтороборат; декаборан, аллилдекаборан, изопропенил-о-карборан.
Кадмий	ЖС: пропионат, хлорид.
Литий	ЖС: хлорид, пропионат, метилат, салицилат, фосфат. ПС: салицилат, метакрилат, пивалоат, фосфат, малеат.
Индий	ЖС: карбоксилаты (триметилгексаноат, 2-метилвалерат, трифторацетат, др.) хлорид, ацетилацетонат.
Иттербий	ЖС: 2-метилгексаноат, хлорид.
Гадолиний	ЖС: нитрат, дипивалоилметанат, другие карбоксилаты, ацетилацетонат. ПС: бензоилацетонат, комплекс трибутилфосфата с нитратом, изопропилат, комплексы фенилбутирата и фенилвалерата с трифенилфосфиноксидом, комплексы фенилбутирата-малеата с трифенилфосфиноксидом, сополимеры комплексов фенилбутирата-малеата с трифенилфосфиноксидом с полистиролом.
Неодим	ЖС: метилвалерат.
«Тяжелые» элементы	ЖС, ПС: металлоорганические соединения: тетраметил-, тетрабутил- и тетрафенилолово; дифенилртуть; тетрафенилсвинец; трифенилвисмут; трифенилмышьяк и другие.

Сцинтилляционные основы

ЖС	Ароматические углеводороды: толуол; фенилциклогексан; 1,2,4-триметилбензол; ксилолы; линейный алкил-бензол; фенилксилэтан; изопропилбифенил; диизопропилбифенил; 1-метилнафталин; 1,6-диметилнафталин. Простые эфиры: диоксан; анизол. Другие соединения: 1-гидрокситолуол; атмосферный соляр. Смеси: толуол + метанол; вода + диоксан; фенилэтиловый спирт + этиленгликоль; ксилол + фенилэтиловый спирт; минеральное масло + 1,2,4-триметилбензол + 2-этоксиэтанол.
ПС	полистирол; поливинилтолуол; полиметилметакрилат; полиметилметакрилат + полистирол; полисилоксаны.

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования

Цель исследования

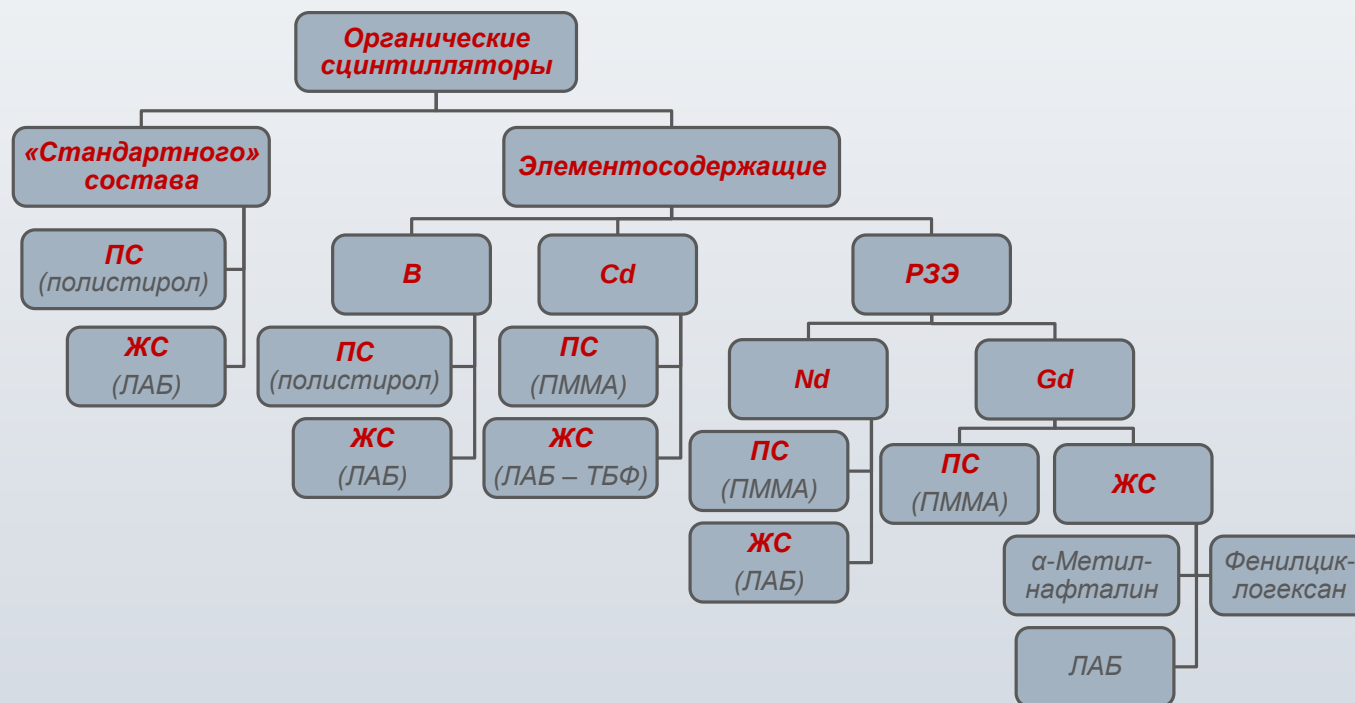
Разработка совокупности методов получения, а также усовершенствование и экспериментальное исследование пластмассовых и жидких сцинтилляторов для крупногабаритных детекторов экспериментов в области нейтринной физики.

Задачи исследования

1. Разработка и исследование свойств ЖС «стандартного состава», пригодного для использования в крупномасштабных экспериментах.
2. Разработка и исследование свойств семейства элементосодержащих ЖС, пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах.
3. Разработка и исследование свойств семейства элементосодержащих ПС.
4. Усовершенствование технологии получения ПС «стандартного состава» на основе полистирола для получения детекторов с улучшенными характеристиками.

Актуальность, цель, задачи, объекты исследования

Объекты исследования: пластмассовые сцинтилляторы на основе полистирола и полиметилметакрилата, жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола, фенилциклогексана и α -метилнафталина.



Актуальность настоящей работы определяется постоянно возрастающей потребностью в детекторах на основе органических сцинтилляторов с повышенной эффективностью регистрации отдельных видов излучений, пригодных для использования в крупномасштабных физических экспериментах.

Научная новизна

Научная новизна работы определяется:

1. Разработкой и исследованием свойств жидкого сцинтиллятора «стандартного» состава, предназначенного для использования в крупномасштабных экспериментах.
2. Разработкой и исследованием свойств жидкого гадолинийсодержащего сцинтиллятора, предназначенного для использования в крупномасштабных экспериментах.
3. Использованием о-карборана в качестве элементосодержащей добавки для получения борсодержащих пластмассовых и жидких сцинтилляторов, пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах, исследованием их свойств.
4. Использованием комплексных соединений солей гадолиния и неодима с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты в качестве элементосодержащих добавок для получения гадолиний- и неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.
5. Разработкой и исследованием свойств гадолинийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов с рекордной массовой долей (4%) металла.
6. Разработкой и исследованием неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.
7. Разработкой и исследованием неодимсодержащих жидких сцинтилляторов, пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах.
8. Разработкой и исследованием пластмассовых кадмийсодержащих сцинтилляторов.
9. Разработкой и исследованием свойств жидких кадмийсодержащих сцинтилляторов с высокой температурой вспышки.

Практическая значимость

1. Разработка проекта и создание технологического участка по производству высококачественных пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола. Использование нового оборудования обеспечило изготовление ПС для:

- эксперимента по исследованию двойного β -распада NEMO-3 (LSM, г. Модан, Франция);
- создания нескольких поколений низкофоновых детекторов BiPO, предназначенного для измерения сверхнизких уровней естественной радиоактивности пленочных материалов (LSM, Canfranc, Испания);
- создания вето-системы Демонстратора SuperNEMO для поиска безнейтринного двойного β -распада ^{82}Se (LSM, г. Модан, Франция);
- экспериментов по исследованию широких атмосферных ливней: НЕВОД-ШАЛ (НИУ «МИФИ»), в Чешском Техническом университете в Праге.

2. Разработанные совместно с коллегами по коллаборации Daya Bay жидкий сцинтиллятор «стандартного» состава и гадолинийсодержащий жидкий сцинтиллятор изготовлены в количестве 200 тонн и 185 тонн, соответственно, и успешно применяются в эксперименте.

3. Разработанные пластмассовые и жидкие бор-, гадолиний- и кадмийсодержащие сцинтилляторы могут быть успешно использованы для регистрации тепловых нейтронов как в научных целях, так и для решения прикладных задач.

4. Разработанные неодимсодержащие сцинтилляторы создают предпосылки для проектирования нового поколения крупномасштабных детекторов по исследованию двойного β -распада.

Практическая значимость



LABORATOIRE SOUTERRAIN DE MODANE
http://www.lsm.fr

Carre Sciences
1125 route de Bardonnèche
73500 MODANE

Tel. +33 4 79 05 22 57
Fax. +33 4 79 05 24 74

Modane, 2017/20/10

To Whom may be Concerned

This is to confirm that practical results of the doctoral thesis of I. Nemchenok "Development and a research of plastic and liquid scintillators for detectors of experiments in the field of neutrino physics" are widely used by collaboration of NEMO/SUPERNEMO.

In 1995-1997 under the leadership of I. Nemchenok has been carried out in Laboratory of nuclear problems of the Joint Institute for Nuclear Research a radical modernization of the equipment of the site on production of plastic scintillators. The usage of the new equipment has provided a production about 6 tons of high quality plastic scintillators for an experiment on a research of double β -decay NEMO-3.

Besides, under the leadership of I. Nemchenok and with the usage of results of his research are made plastic scintillators, which are used for creation of several generations of the low-background detector BiPO, that is intended for measurement of ultralow levels of natural radioactivity of film materials and the veto system of the Demonstrator of SuperNEMO for searching neutrinoless double β -decay ^{82}Se .

In conclusion, the contributions of I. Nemchenok on the NEMO3 and SuperNEMO experiments have been crucial and the delivered plastic scintillators have permitted to reach the expected performances.


Fabrice Piquemal
Director of Modane Underground Laboratory



Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules (IN2P3) du CNRS
Université Grenoble Alpes





Institute of High Energy Physics
Chinese Academy of Sciences

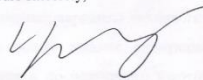
Address: 19B Yuquan Road, Shijingshan District, Beijing 100049, CHINA
Tel: +86-10-88236076 Fax: +86-10-88233105 E-mail: yfwang@ihep.ac.cn Web: www.ihep.ac.cn

To Whom it May Concern,

This is to certify that the Daya Bay Collaboration makes use of the following practical results of I. Nemchenok's doctoral thesis "Development and a research of plastic and liquid scintillators for detectors of experiments in the field of neutrino physics":

- investigation of the spectrometric properties of the liquid scintillator and the gadolinium-loaded liquid scintillator of the Daya Bay neutrino experiment;
- investigation of the timing properties of the liquid scintillator and the gadolinium-loaded liquid scintillator of the Daya Bay neutrino experiment;
- measurements of the thermal neutron detection efficiency of the gadolinium-loaded liquid scintillator of the Daya Bay neutrino experiment.

Besides that, I. Nemchenok developed the first versions of the flow charts of the production of the gadolinium-containing additive and both liquid scintillators, which served as the basis for further design and following production of the scintillators of the Daya Bay neutrino experiment.

Yours sincerely,

Yifang Wang
Director, IHEP, CAS

Положения и результаты, выносимые на защиту

1. Разработка жидкого сцинтиллятора «стандартного» состава, используемого в крупномасштабном нейтринном эксперименте Daya Bay.
2. Разработка жидкого гадолинийсодержащего сцинтиллятора, используемого в нейтринном эксперименте Daya Bay.
3. Разработка технологических схем производства гадолинийсодержащей добавки, ЖС «стандартного» состава и гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора для нейтринного эксперимента Daya Bay.
4. Возможность использования о-карборана в качестве добавки для получения борсодержащих сцинтилляторов: пластмассовых и жидких, пригодных для использования в крупномасштабных детекторах.
5. Разработка метода получения гадолиний- и неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов. Получение гадолинийсодержащих сцинтилляторов с рекордной концентрацией металла.
6. Получение неодимсодержащих жидких сцинтилляторов, пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах.
7. Получение пластмассовых и жидких кадмийсодержащих сцинтилляторов с высокой температурой вспышки.
8. Разработка проекта и введение в эксплуатацию участка по производству высококачественных пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола.
9. Исследование свойств разработанных материалов.

Апробация

Результаты, представленные в диссертации, доложены на семинарах и рабочих совещаниях:
в ЛЯП ОИЯИ (Дубна, Россия), в Лаборатории линейных ускорителей (LAL, Орсэ, Франция), в Карловом университете (Прага, Чехия), в Генуэзском отделении Национального института ядерной физики (Генуя, Италия), в ИФВЭ Китайской Академии Наук (Пекин, Китай), в Университете Гонконга (Гонконг, Китай), в Китайском университете Гонконга (Гонконг, Китай), в университете Новой Горицы (Новая Горица, Словения),

а также на ряде научных конференций:

Международная конференция по ядерной физике «Кластеры в ядерной физике» (50 совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра), Санкт-Петербург, 2000 г.; 33 научная Ассамблея Комитета космических исследований, Варшава, Польша, 2000 г.; 14 Международный симпозиум по спиновой физике, Осака, Япония, 2000 г.; III Международное совещание по идентификации Темной материи, Йорк, Великобритания, 2000 г.; V Международное совещание «Проблемы прикладной спектromетрии и радиометрии. ППСР-2001», Дубна, Россия, 2001 г.; Международная конференция «Новая физика в неускорительных экспериментах. NANP'01», Дубна, Россия, 2001; Международная конференция Европейской федерации полимеров, EUROPOC 2001, Эйндховен, Нидерланды; 52 Международное Совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2002, Москва, Россия, 2002 г.; Пятая Международная конференция «Современные проблемы ядерной физики», Самарканд, Узбекистан, 2003 г.; 58 Международное Совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2008, Москва, Россия, 2008 г.; 60 Международная конференция по ядерной физике, Ядро 2010, Санкт-Петербург, Россия, 2010 г.; 61 Международная конференция по проблемам ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2011, Саров, Россия, 2011 г.; Международные конференции «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии» (Харьков, Украина, 2008, 2010 гг.; Дубна, Россия, 2012 г.)

Публикации. Структура и объем

Публикации.

По материалам диссертации опубликовано 34 работы, в том числе 19 статей, 14 из них в журналах, рекомендованных ВАК, и 15 тезисов докладов.

Структура и объем диссертации.

Диссертация состоит из введения, семи глав, заключения, списка использованной литературы, приложений и включает в себя 212 страниц, 98 рисунков и 44 таблицы. Список литературы включает 235 наименований.

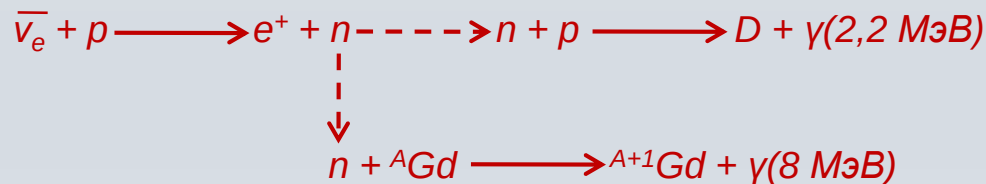
Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Краткая характеристика эксперимента

Основная задача нейтринного эксперимента DAYA BAY – измерение $\sin^2 2\theta_{13}$ с точностью не ниже 0,01.

Её решение было достигнуто благодаря:

- наличию мощной реакторной установки;
- возможности снижения и учета естественного фона конструкционных материалов и фона космогенной природы;
- созданию крупнотоннажных детекторов.

Схема расположения детекторов и источников антинейтрино в эксперименте Day Bay. Синими кружками обозначены места расположения реакторов, красными квадратами – детекторы. Обозначения: 1 – входной портал; 2 – ближний детектор Daya Bay; 3 – ближний детектор Ling Ao; 4 – дальний детектор.



Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Краткая характеристика эксперимента

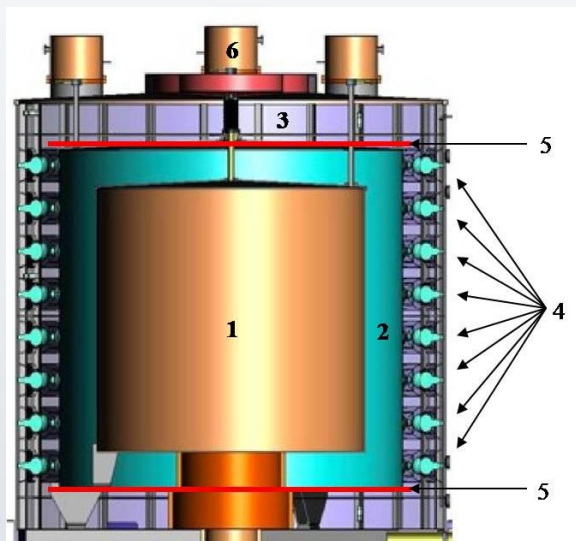


Схема модуля детектора антинейтрино в эксперименте Daya Bay: 1 – внутренний цилиндр с Gd-ЖС; 2 – промежуточный цилиндр с ЖС «стандартного состава»; 3 – наружный цилиндр с минеральным маслом; 4 – ФЭУ; 5 – отражатели света; 6 – устройство для калибровки.

Требования к жидким сцинтилляторам, пригодным для использования в эксперименте:

- высокое содержание водорода;
- взрыво- и пожаробезопасность (высокие температуры кипения и вспышки);
- нетоксичность;
- совместимость с материалами детектора;
- доступность и низкая стоимость.

Свойства линейного алкилбензола

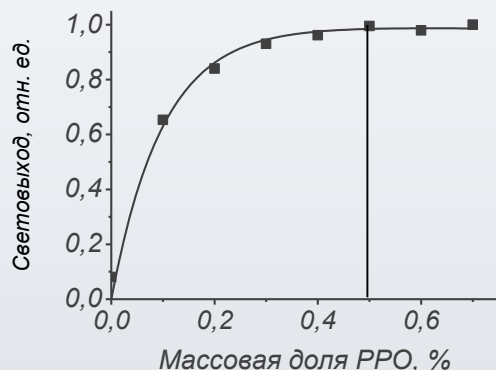
Плотность, г/см ³	0,858 – 0,862
Температура кипения, °C	280 – 311
Температура вспышки, °C	147
Количество атомов водорода, см ⁻³	$6,29 \times 10^{22}$

Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. ЖС «стандартного состава»

Сцинтилляционная добавка:

- 2,5-дифенилоксазол (PPO).

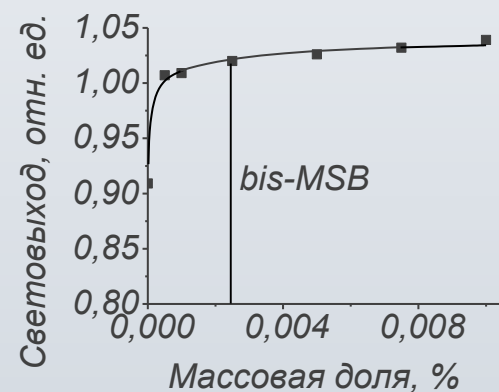
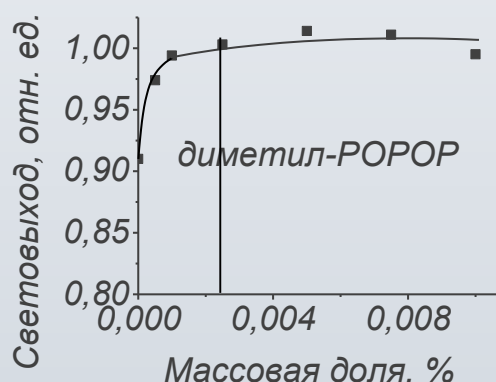
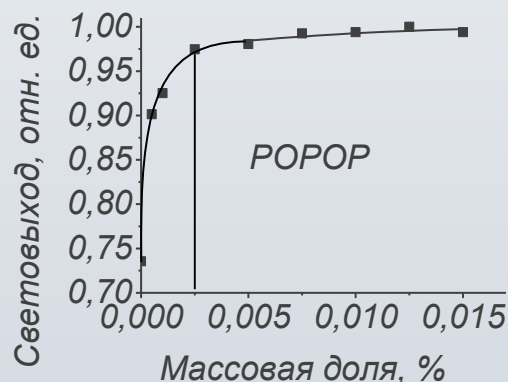
Оптимальная концентрация PPO – 0,5%.



Вторичные сцинтилляционные добавки:

- 1,4-ди(5-фенил-2-оксазолил)бензол (POPOP);
- 1,4-ди(4-метил-5-фенил-2-оксазолил)бензол (диметил-POPOP);
- 1,4-бис(2-метилстирил)бензол (bis-MSB).

Оптимальная концентрация вторичных сцинтилляционных добавок – 0,0025%.



Состав сцинтиллятора	Световыход*	Прозрачность, м
0,5% PPO + 0,0025% POPOP	1,02	9,8 ± 1,4
0,5% PPO + 0,0025% диметил-POPOP	1,00	3,0 ± 1,4
0,5% PPO + 0,0025% bis-MSB	1,02	9,8 ± 1,4

*Относительно ЖС состава: псевдокумол; PPO (5 г/л); bis-MSB (10 мг/л).

Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Гадолинийсодержащий ЖС

Требования к Gd-ЖС:

- массовая доля гадолиния – 0,1%–0,15%;
- высокая прозрачность;
- высокий световыход;
- высокая устойчивость;
- высокая температура вспышки;
- низкая токсичность;
- доступность и стоимость сырья;
- совместимость с другими материалами детектора.

Основное вещество
сцинтиллятора

Gd-содержащая
добавка

**Линейный
алкилбензол**

- растворимость;
- не ухудшает световыход;
- не ухудшает прозрачность;
- легкость синтеза

- комплексы с фосфорорганическими лигандами;
- β -дикетонаты;
- **карбоксилаты**

**3,5,5-триметилгексаноат
гадолиния, Gd-TMHA**

Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Свойства

Временные свойства ЖС на основе ЛАБ

Сцинтиллятор	ЖС-1	ЖС-2	Gd-ЖС
Первичная добавка	PPO, 3 г/л	PPO, 3 г/л	PPO, 3 г/л
Вторичная добавка	POPOP 15 мг/л	bis-MSB 15 мг/л	bis-MSB 15 мг/л
Массовая доля Gd, %	0	0	0,1
Постоянная высвечивания, нс	4,8	3,9	4,7
Время нарастания импульса, нс	1,7	1,5	1,6
Время спада импульса, нс	10,6	8,5	10,4

Энергетическое разрешение ЖС на основе ЛАБ

Сцинтиллятор	ЖС-1	ЖС-2	ЖС-3	ЖС-4	Gd-ЖС
Первичная добавка	PPO 3 г/л	PPO 3 г/л	PPO 0,5%	PPO 0,5%	PPO 3 г/л
Вторичная добавка	POPOP 15 мг/л	bis-MSB 15 мг/л	POPOP 0,0025%	bis-MSB 0,0025%	bis-MSB 15 мг/л
Массовая доля Gd, %	0	0	0	0	0,1
FWHM, %	$7,9 \pm 0,7$	$7,7 \pm 0,7$	$7,9 \pm 0,6$	$7,9 \pm 0,5$	$7,6 \pm 0,6$

$D - 50$ мм; $H - 12$ мм; $e_k - 976$ кэВ (^{207}Bi)

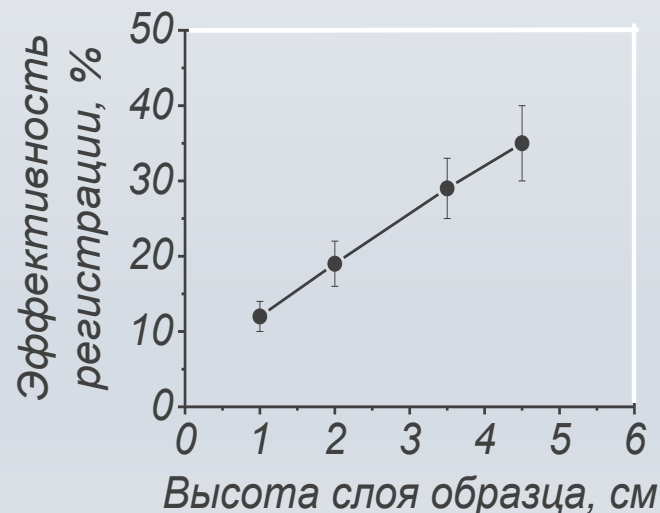
Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Свойства

Эффективность регистрации нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ) образцами жидких сцинтилляторов на основе ЛАБ

Gd-ЖС: PPO – 3 г/л;
bis-MSB – 15 мг/л;
массовая доля Gd – 0,1%.
ЖС-2: PPO – 3 г/л;
bis-MSB – 15 мг/л.

Высота слоя образца, см	Эффективность регистрации нейтронов, %, для $E_n < 0,4$ эВ	
	Gd-ЖС	ЖС-2
1	12 ± 2	–
2	19 ± 3	–
3,5	29 ± 4	–
4,5	35 ± 5	17 ± 3

Зависимость эффективности регистрации нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ) от высоты слоя Gd-ЖС.



Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Гадолинийсодержащий ЖС

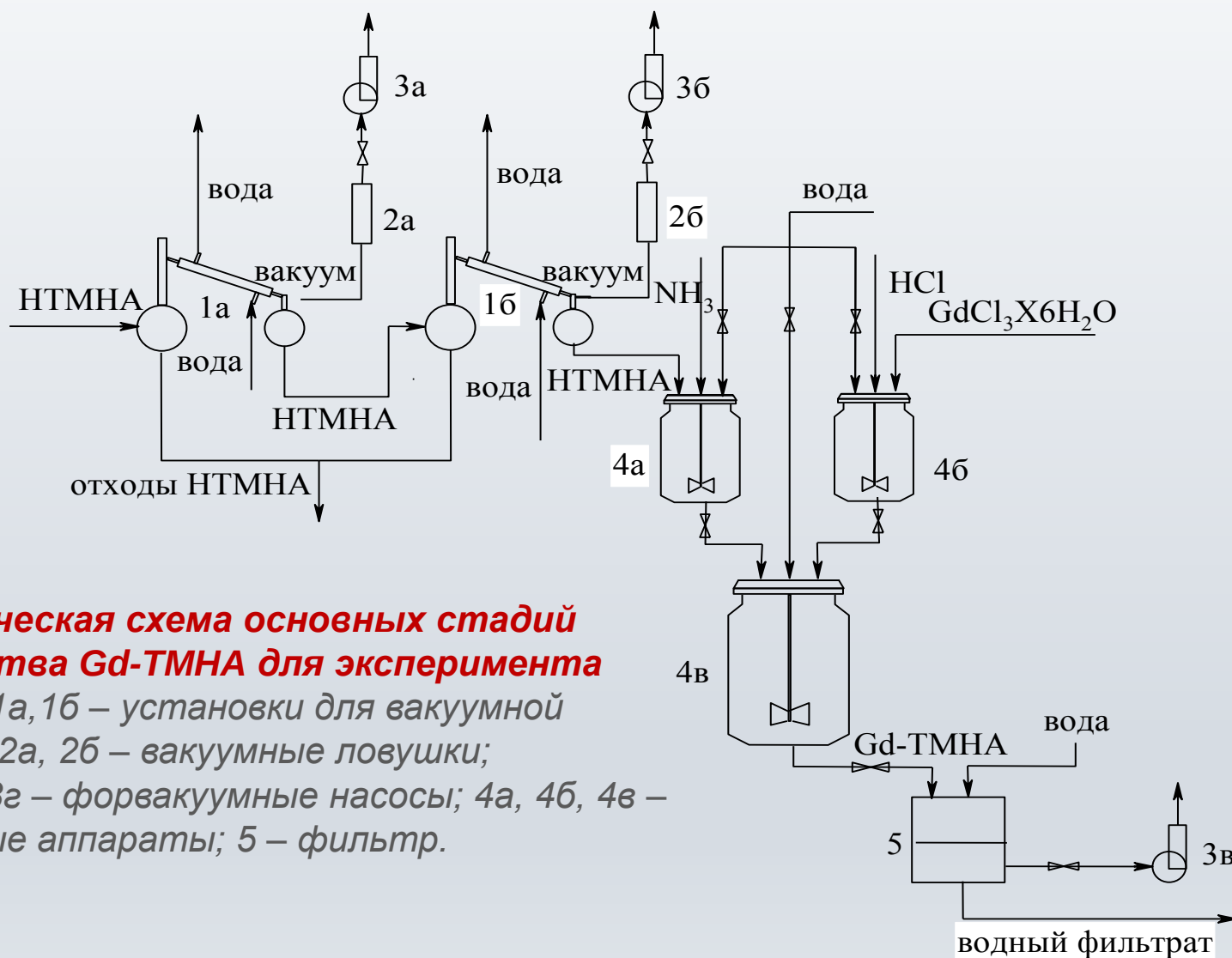
Стадии производства Gd-ТМНА :

- первая вакуумная перегонка НТМНА (3,5,5-триметилгексановая кислота);
- вторая вакуумная перегонка НТМНА;
- приготовление водного раствора хлорида гадолиния;
- получение аммонийной соли НТМНА;
- получение Gd-ТМНА;
- фильтрация и промывка Gd-ТМНА.

Требования к технологическому процессу получения гадолинийсодержащей добавки (3,5,5-триметилгексаноата гадолиния, Gd-ТМНА):

- безопасность;
- простота;
- невысокая стоимость оборудования;
- отсутствие необходимости утилизации отходов;
- возможность масштабирования для увеличения производственной мощности.

Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Гадолинийсодержащий ЖС

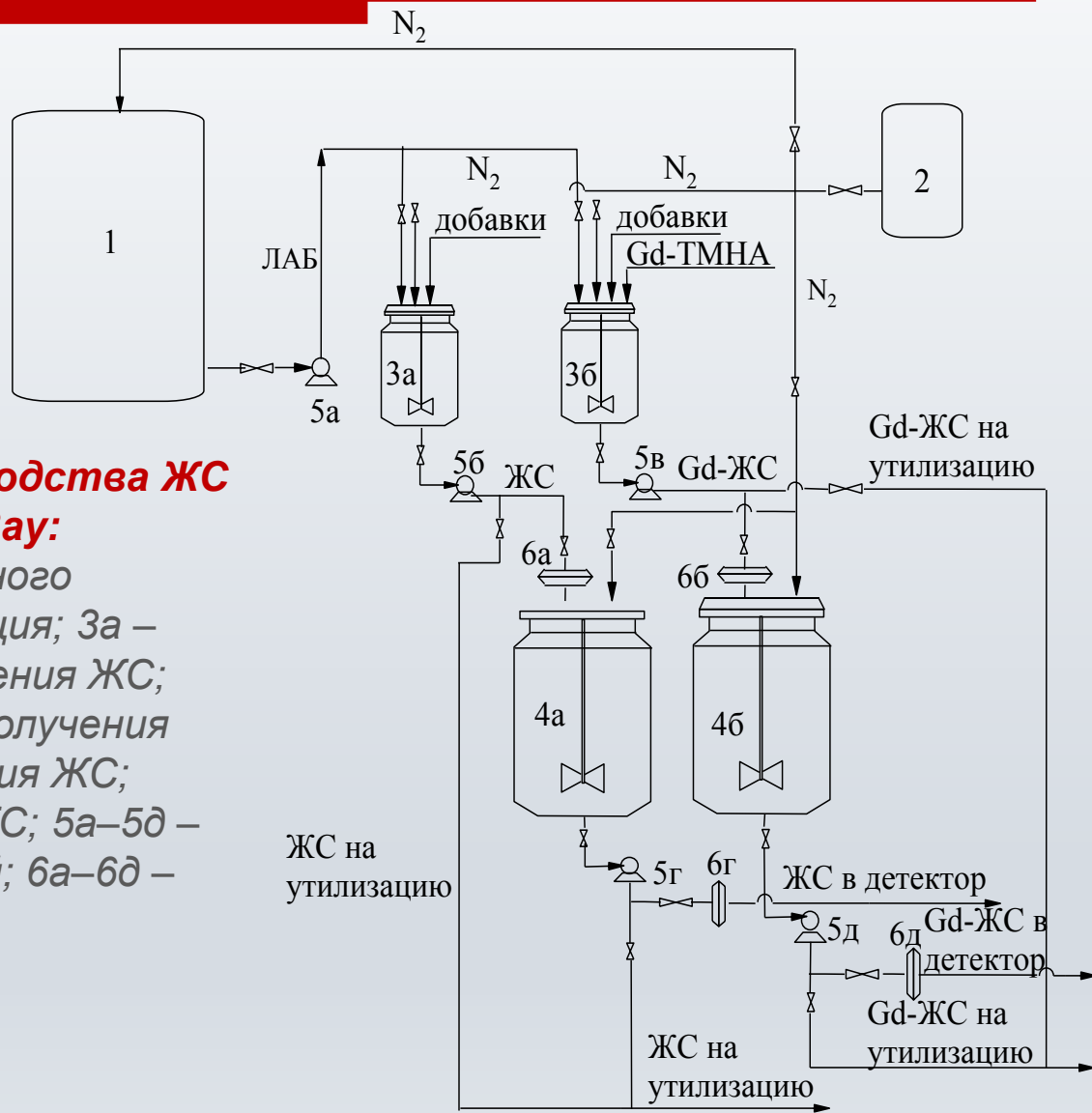


Технологическая схема основных стадий производства Gd-TMHA для эксперимента Daya Bay: 1а, 1б – установки для вакуумной перегонки; 2а, 2б – вакуумные ловушки; 3а, 3б, 3в, 3г – форвакуумные насосы; 4а, 4б, 4в – реакционные аппараты; 5 – фильтр.

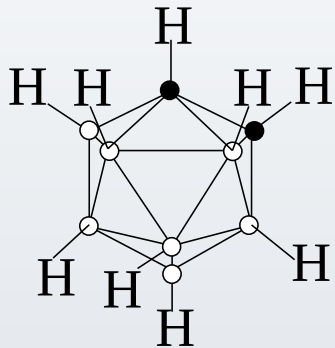
Жидкие сцинтилляторы для нейтринного эксперимента DAYA BAY. Гадолинийсодержащий ЖС

Технологическая схема производства ЖС и Gd-ЖС эксперимента Daya Bay:

1 – емкость для хранения линейного алкилбензола; 2 – азотная станция; 3а – реакционный аппарат для получения ЖС; 3б – реакционный аппарат для получения Gd-ЖС; 4а – емкость для хранения ЖС; 4б – емкость для хранения Gd-ЖС; 5а–5д – насосы для перекачки жидкостей; 6а–6д – фильтры.



Борсодержащие органические сцинтилляторы



Впервые в качестве борсодержащей добавки предложено использование о-карборана.

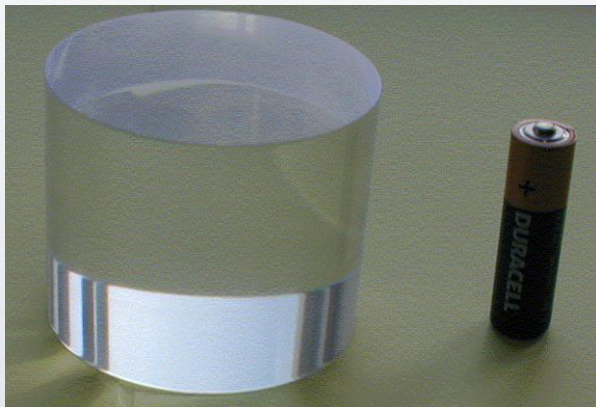
о-Карборан (белыми кружками обозначены атомы бора, черными – атомы углерода) устойчив к теплу, к атмосферному кислороду, к влаге, к действию кислот, оснований, окислителей.

Преимущества по сравнению с изопропенил-о-карбораном*:

- массовая доля бора в о-карборане (75 %) выше по сравнению с изопропенил-о-карбораном (60 %), что позволило ожидать меньшего снижения световыходов В-ПС по сравнению с ПС «стандартного состава»;
- о-карборан в отличие от изопропенил-о-карборана не способен образовывать ковалентные связи в результате сополимеризации с исходным мономером. Следовательно, не приходится ожидать ухудшения механических свойств В-ПС, по сравнению с ПС «стандартного состава»;
- о-карборан имеет более низкую стоимость.

*Анисимова, Г.И. Пластические борсодержащие сцинтилляторы / Г.И. Анисимова, Л.С. Данелян, А.Ф. Жигач и др. // Приборы и техника эксперимента – 1969. – № 1. – С. 49-51.

Борсодержащие пластмассовые сцинтилляторы



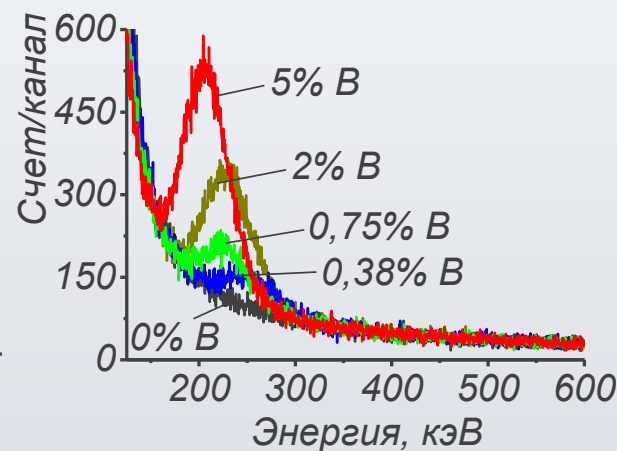
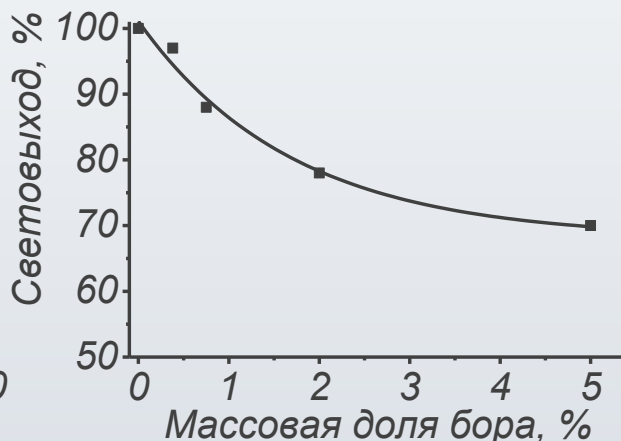
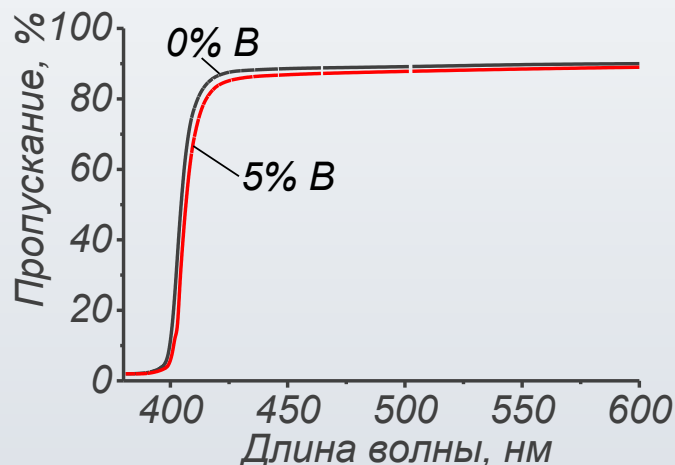
$D - 70$ мм, $H - 57$ мм. Массовая доля бора – 5%.

Экспериментальные образцы В-ПС: $D - 30$ мм, $H - 9$ мм. Состав: полистирол, п-терфенил – 1,5%, РОРОР – 0,015%.

Показатели	Массовая доля бора, %				
	0	0,38	0,75	2,00	5,00
Плотность, г/см ³	1,05	1,05	1,05	1,05	1,05
Количество атомов бора в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	–	0,02	0,04	0,12	0,28
Количество атомов водорода в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	4,85	4,85	4,85	4,86	4,86

Борсодержащие пластмассовые сцинтилляторы

Экспериментальные образцы В-ПС: $D = 30$ мм, $H = 9$ мм. Состав: полистирол, p -терфенил – 1,5%, РОРОР – 0,015%.



Эффективность регистрации нейтронов В-ПС

Массовая доля бора, %	Эффективность регистрации, %, нейтронов с энергией (эВ)	
	0,3	< 0,4
0,38	$2,7 \pm 0,6$	$3 \pm 0,5$
0,75	$6 \pm 0,15$	5 ± 1
2,00	$16 \pm 0,4$	13 ± 3
5,00	26 ± 6	22 ± 5

Спектры α -частиц, возникающих при захвате В-ПС нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ) от источника Pu-Be.

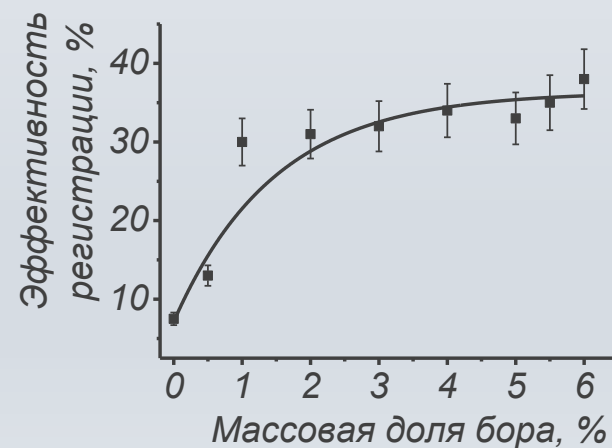
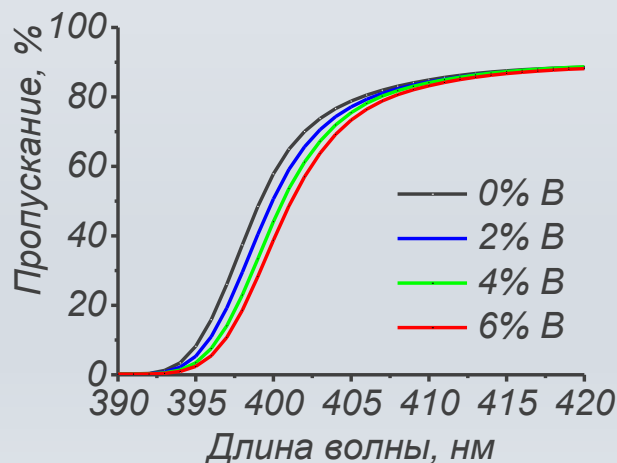
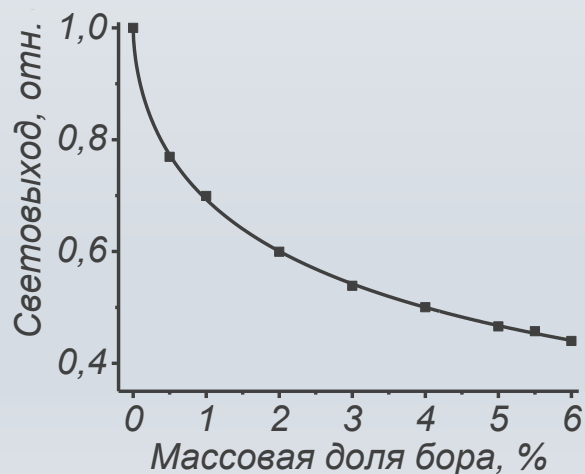
Борсодержащие жидкие сцинтилляторы

Состав В-ЖС: линейный алкилбензол, РРО – 0,5%, РОРОР – 0,0025%, о-карборан.

Безопасность использования, устойчивость

Характеристика	Массовая доля бора, %						
	0	1	2	3	4	5	6
Плотность, г/см ³	0,87	0,88	0,89	0,90	0,91	0,93	0,94
Световыход*, %	100	70	60	54	50	47	44
Количество атомов бора в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	–	0,04	0,07	0,11	0,15	0,19	0,23
Количество атомов водорода в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	6,32	6,38	6,44	6,52	6,59	6,66	6,73
Эффективность регистрации нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ)*, %	7,5 $\pm$ 0,8	30 $\pm$ 3,0	31 $\pm$ 3,1	32	34 $\pm$ 3,4	33	38

*Для толщины слоя 20 мм



Органические сцинтилляторы, содержащие редкоземельные элементы

ОС, содержащие РЗЭ

Gd-ОС

Nd-ОС

Gd-ПС

Gd-ЖС

Nd-ПС

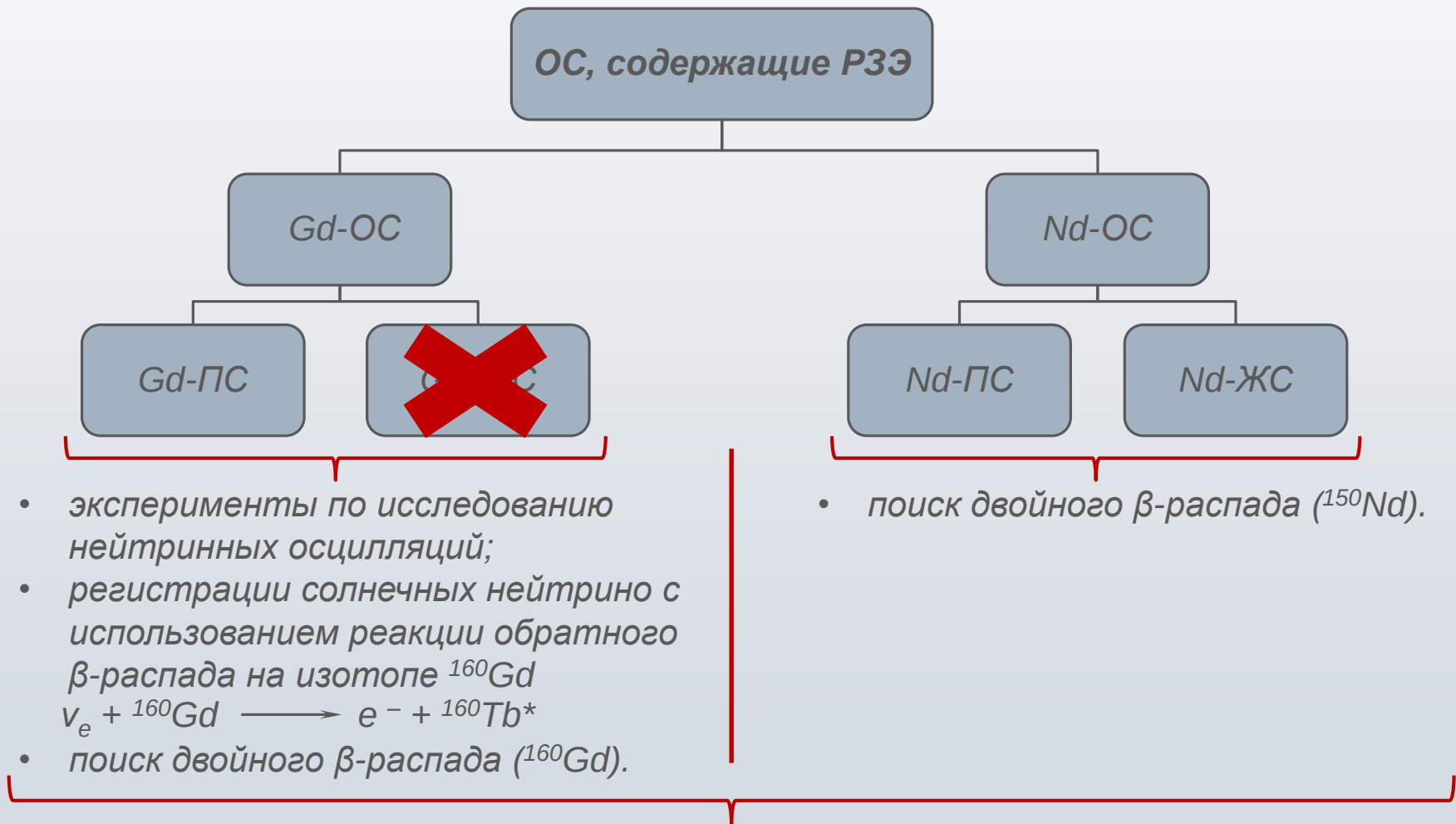
Nd-ЖС

- эксперименты по исследованию нейтринных осцилляций;
- регистрации солнечных нейтрино с использованием реакции обратного β -распада на изотопе ^{160}Gd
$$\nu_e + ^{160}\text{Gd} \longrightarrow e^- + ^{160}\text{Tb}^*$$
- поиск двойного β -распада (^{160}Gd).

- поиск двойного β -распада (^{150}Nd).

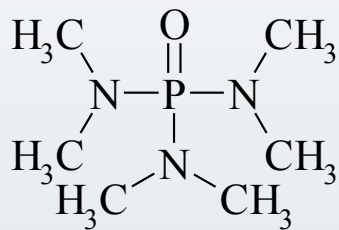
Основная проблема получения Gd-ОС и Nd-ОС заключается в выборе подходящих элементосодержащих добавок.

Органические сцинтилляторы, содержащие редкоземельные элементы



Основная проблема получения Gd-ОС и Nd-ОС заключается в выборе подходящих элементосодержащих добавок.

Гадолиний- и неодимсодержащие пластмассовые сцинтилляторы



НМРА

Впервые в качестве элементосодержащих добавок предложено использование соединений состава: $[Ln(HMPA)_3]X_3$, где Ln – Gd^{3+} или Nd^{3+} , X – ион NO_3^- или Cl^- .

Состав образцов:

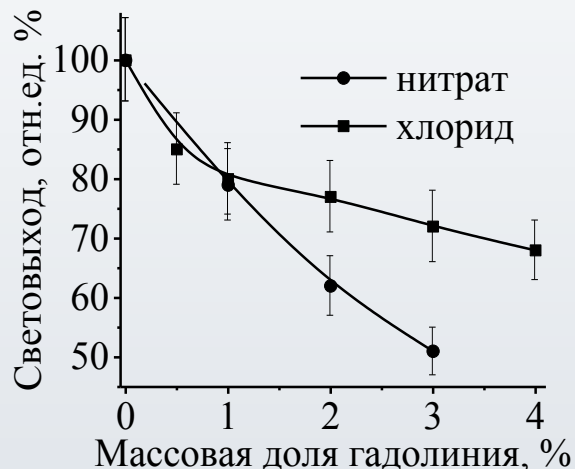
- полиметилметакрилат;
- РРО – 1,5%;
- РОРОР – 0,08%;
- нафталин – 15%;
- $[Ln(HMPA)_3]X_3$.

**Получены Gd-ПС с рекордной концентрацией металла – 4%.
Впервые получены Nd-ПС.**

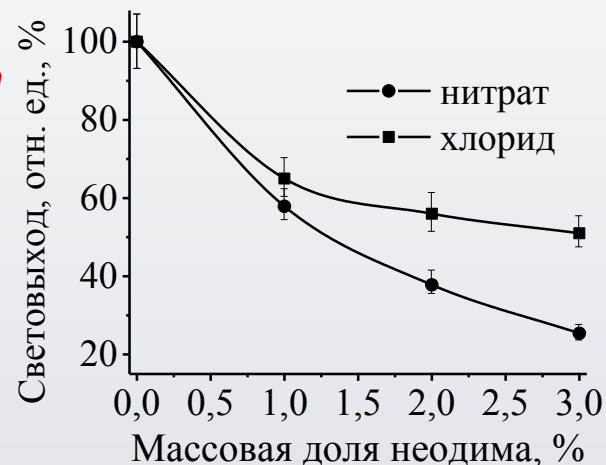
Образцы: D – 30 мм, H – 10 мм.



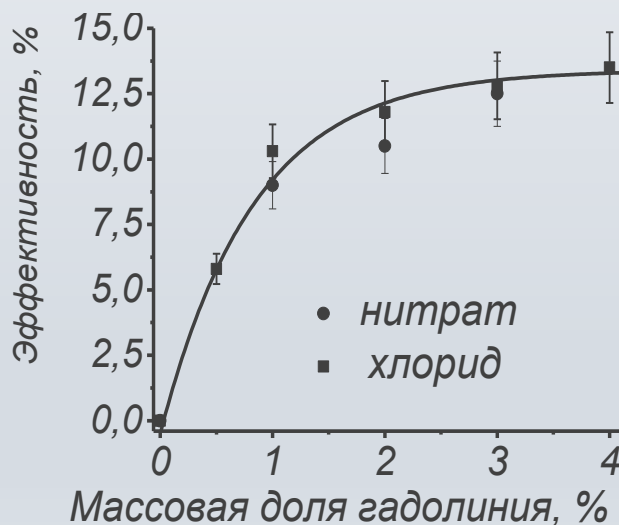
Гадолиний- и неодимсодержащие пластмассовые сцинтилляторы



Зависимость световыхода Gd-ПС, содержащих комплексы хлорида или нитрата гадолиния с НМРА, от массовой доли металла.

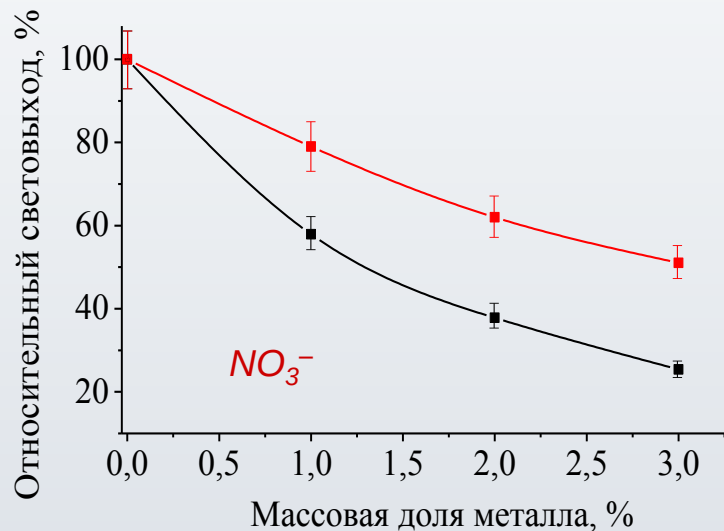


Зависимость эффективности регистрации нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ) Gd-ПС, содержащими комплексы хлорида или нитрата гадолиния с НМРА, от массовой доли металла.

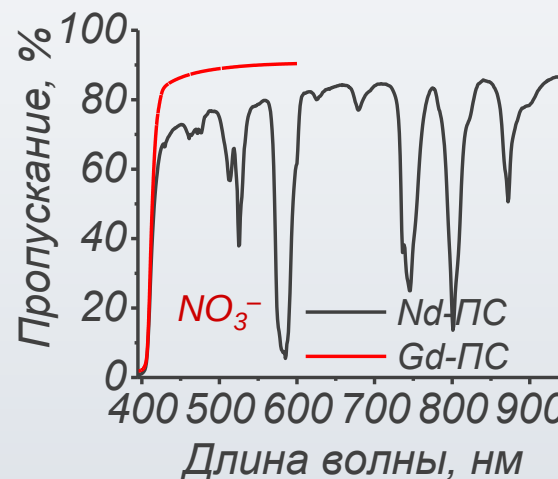


Зависимость световыхода Nd-ПС, содержащих комплексы хлорида или нитрата неодима с НМРА, от массовой доли металла.

Гадолиний- и неодимсодержащие пластмассовые сцинтилляторы



Зависимость световыхода образцов Gd-ПС (красный) и Nd-ПС (черный) от концентрации металла.



Спектры пропускания образцов Gd-ПС и Nd-ПС, содержащих 1% металла, относительно воздуха.

Неодимсодержащие жидкие сцинтилляторы

Состав:

- растворитель – линейный алкилбензол;
- Nd-содержащие добавки: 4-метилоктаноат (Nd-МО), 2-этилгексаноат (Nd-ЕН) и 3,5,5-триметилгексаноат (Nd-ТМНА).

Технология:

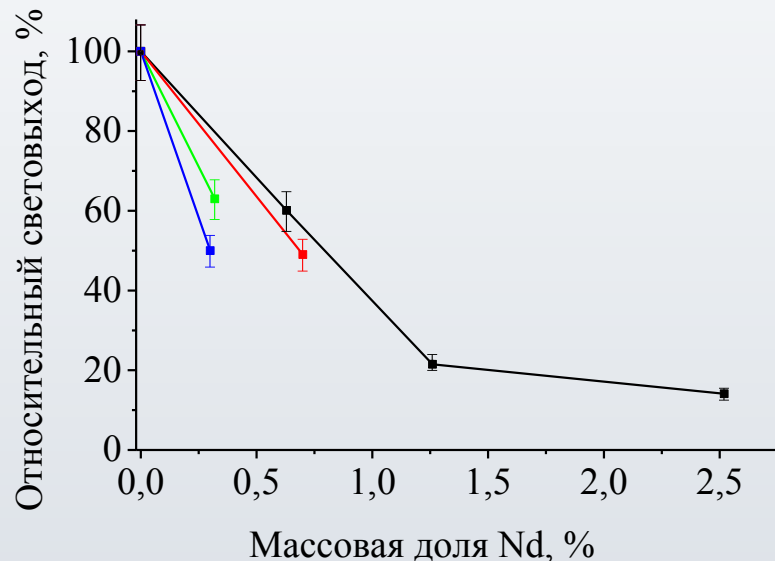
- жидкостная экстракция, в процессе которой неодим переходит из водной фазы в органическую по мере образования карбоксилата;
- непосредственное растворение предварительно полученной добавки.

Сцинтилляционные добавки:

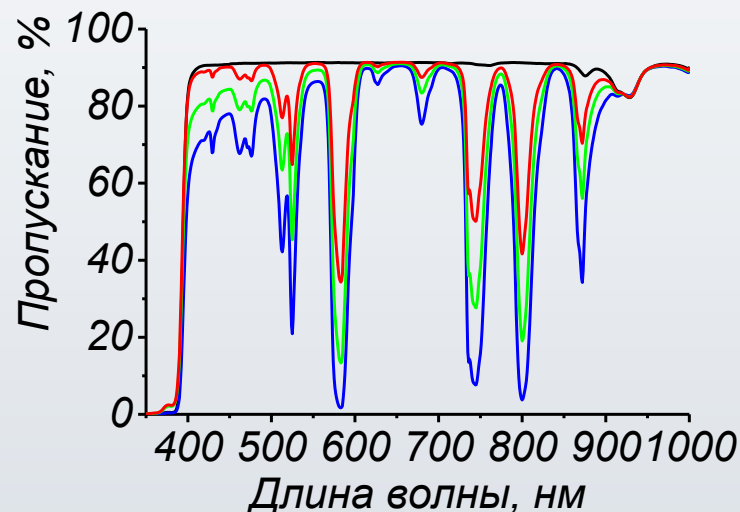
- 0,5% PPO + 0,025%POPOP;
- 0,5% BPO.

Nd-содержащая добавка	Сцинтилляционные добавки	
	0,5% PPO + 0,025%POPOP	0,5% BPO
Nd-МО, экстракция	0,32%	0,32%
Nd-ЕН, экстракция	0,30%	—
Nd-ТМНА, экстракция	0,70%	—
Nd-ТМНА, растворение	0,63%; 1,26%; 2,52%	0,63%; 1,26%; 2,52%

Неодимсодержащие жидкие сцинтилляторы



Зависимость световыхода Nd-ЖС, содержащих РРО и РОРОР от концентрации неодима: черный – Nd-ТМНА, растворение; красный – Nd-ТМНА, экстракция; зеленый – Nd-МО, экстракция; синий – Nd-ЕН, экстракция.

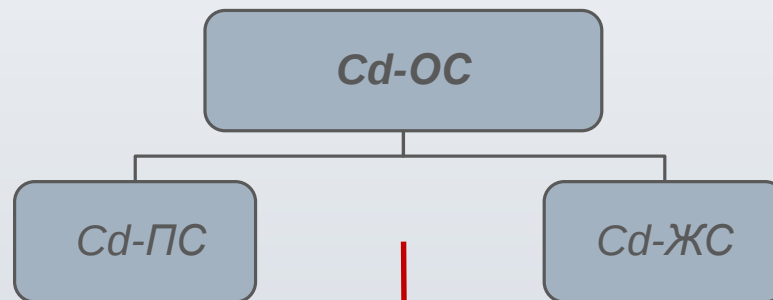


Спектры пропускания Nd-ЖС на основе ЛАБ, содержащие Nd-ТМНА (растворение), измеренные в 1 см кварцевой кювете относительно воздуха: черный – 0% Nd, красный – 0,63% Nd, зеленый – 1,26% Nd, синий – 2,52% Nd. Сцинтилляционные добавки – РРО и РОРОР.

Кадмийсодержащие органические сцинтилляторы

Кадмийсодержащие органические сцинтилляторы (Cd-ОС):

- альтернатива Gd-содержащим детекторам тепловых нейтронов (12% ^{113}Cd , сечение захвата – $2,0 \cdot 10^4$ барн, каскад γ -квантов с суммарной энергией до 9 МэВ);
- исследование двойного β -распада – ^{116}Cd .



Впервые

Состав (массовая доля Cd до 2%):

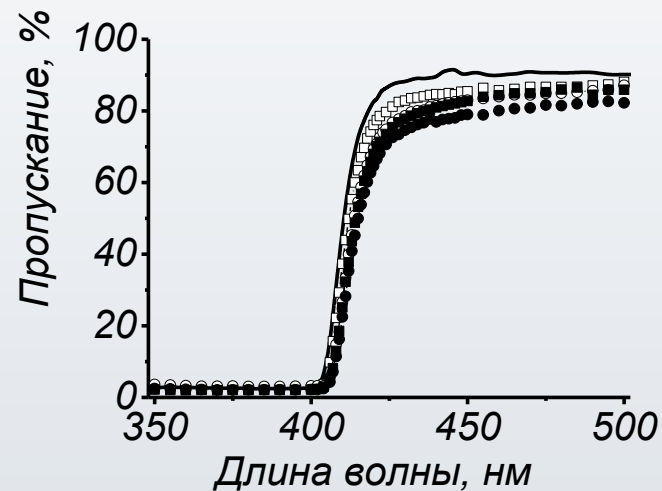
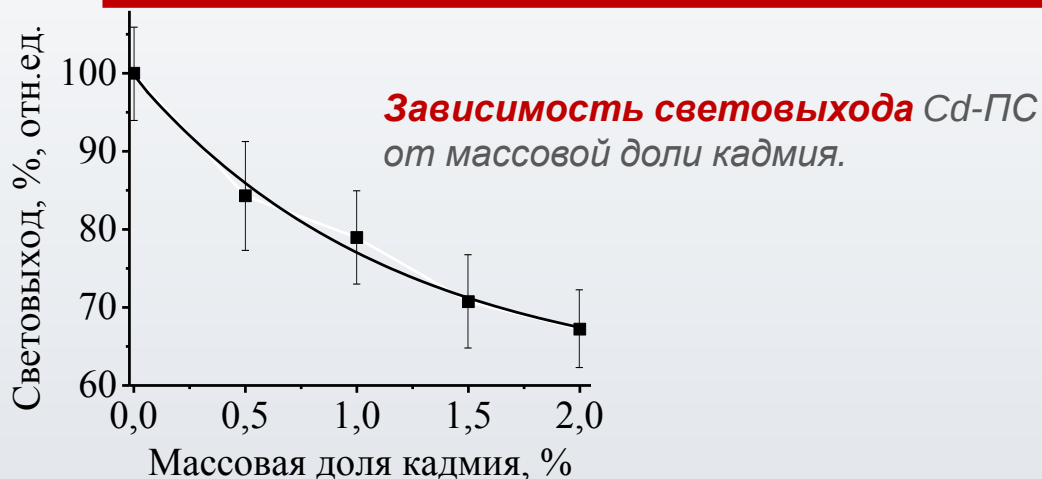
- полиметилметакрилат;
- хлорид кадмия;
- НМТА;
- нафталин;
- РРО;
- РОРОР.

Рекордная концентрация металла, безопасность использования

Состав (массовая доля Cd до 1,5%):

- линейный алкилбензол;
- трибутилфосфат (ТБФ);
- хлорид кадмия;
- РРО;
- РОРОР.

Кадмийсодержащие пластмассовые сцинтилляторы

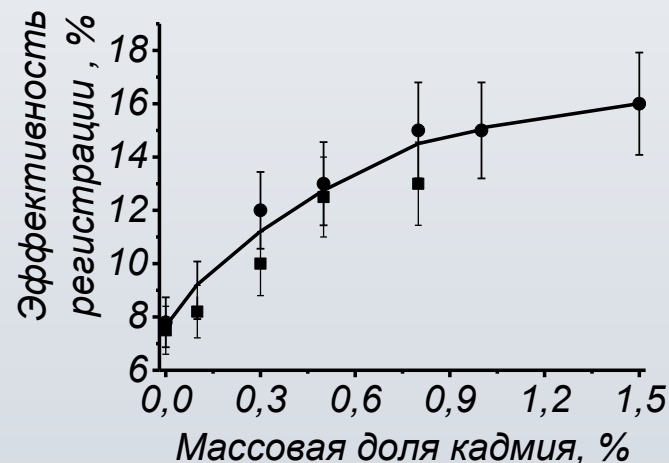
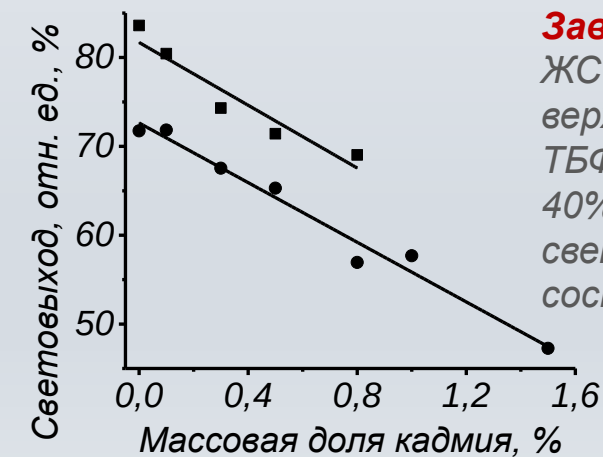
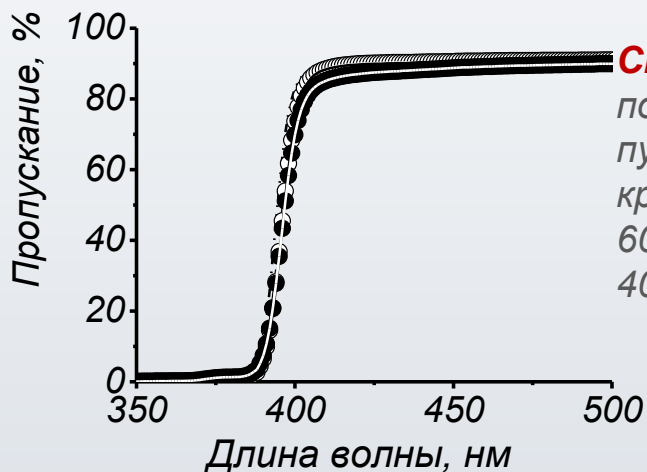


Образцы: D – 30 мм, H – 10 мм.



Кадмийсодержащие жидкие сцинтилляторы

Две серии образцов: 70% ЛАБ + 30% ТБФ и 60% ЛАБ + 40% ТБФ.



Зависимость эффективности регистрации нейтронов ($E_n < 0,4$ эВ) Cd-ЖС от массовой доли кадмия: кружки 60% ЛАБ + 40% ТБФ, квадраты — 70% ЛАБ + 30% ТБФ.

Пластмассовые сцинтилляторы «стандартного состава» на основе полистирола

Методы изготовления пластмассовых сцинтилляторов:

- радикальная полимеризация в массе;
- суспензионная полимеризация;
- методы переработки пластмасс.

Основные компоненты технологического оборудования экспериментального участка по производству пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола:

- установка для вакуумной ректификации стирола;
- стеклянный реакционный аппарат объемом 100 Л фирмы «Kavalier», снабженный стеклянной мешалкой с электроприводом, стеклянным змеевиковым теплообменником и ленточным электрическим нагревателем;
- полимеризатор представляющий собой ванну, встроенную в шкаф, снабженный вытяжной вентиляцией, и заполненную силоксановой жидкостью ПЭС-5 с высокой температурой вспышки (265 °С). Обогрев полимеризатора производится электрическими нагревателями общей мощности 12 кВт, герметично отделенными от рабочей камеры;
- эффективный обратный водяной холодильник – многоходовый кожухотрубный теплообменник, специально разработанный нами для уменьшения попадания паров стирола в атмосферу на этапе кипения, изготовленный из алюминиевого сплава.

Пластмассовые сцинтилляторы «стандартного состава» на основе полистирола

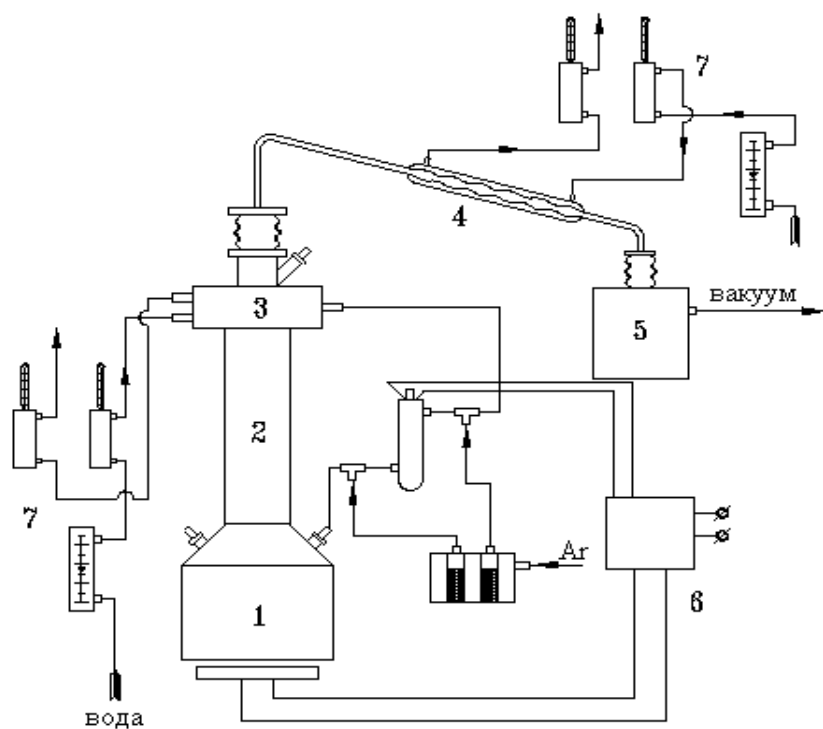
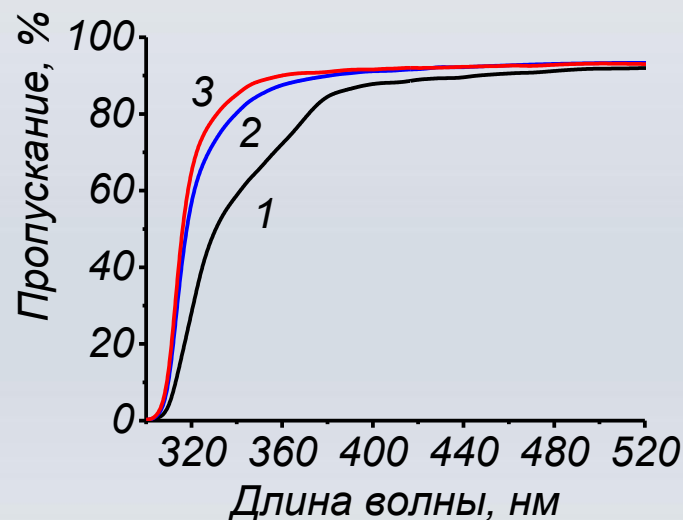


Схема установки для вакуумной ректификации стирола: 1 – куб; 2 – колонна с внутренней насадкой; 3 – дефлегматор; 4 – стеклянный конденсатор; 5 – вакуумный шкаф со стеклянными приемниками; 6 – система регулирования подачи тепла; 7 – система регулирования подачи воды.

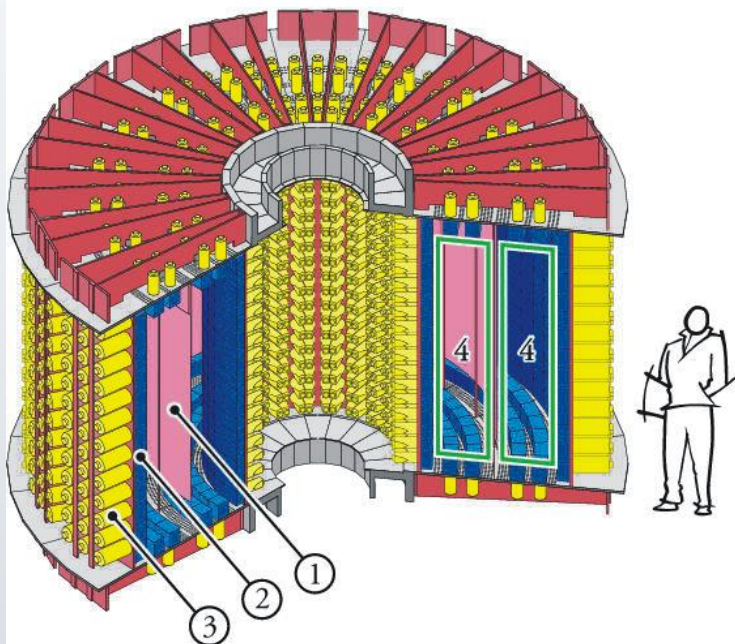
Производительность, безопасность, хорошее качество мономера.

Спектры пропускания стирола, измеренные в кварцевой кювете (5 см) относительно воздуха:
1 – технический стирол; 2 – стирол после вакуумной перегонки на лабораторной установке; 3 – стирол после вакуумной ректификации.



Пластмассовые сцинтилляторы «стандартного состава» на основе полистирола. NEMO-3

NEMO 3

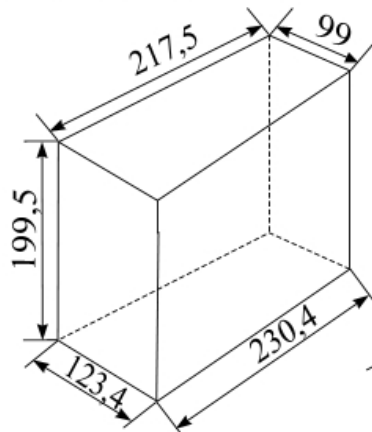


Общая схема детектора NEMO-3: 1 – радиоактивные источники; 2 – пластмассовые сцинтилляторы (калориметр); 3 – фотоэлектронные умножители, 4 – трековый объем.

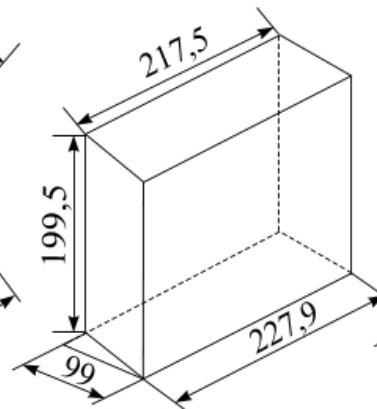
Полная масса сцинтилляторов боковых стен – 5600 кг, верхней и нижней частей – 1600 кг. Площадь поверхности всех сцинтилляторов ~ 50 м². Калориметрическая часть установки – 1940 оптических модулей (ПС + ФЭУ).

Сцинтилляционные блоки, использованные для цилиндрических стенок калориметра установки NEMO-3.

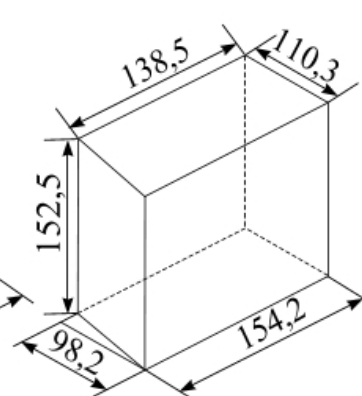
ЕЕ
Масса - 5,268 кг
Количество - 994



ЕС
Масса - 4,686 кг
Количество - 428



IN
Масса - 2,49 кг
Количество - 1093

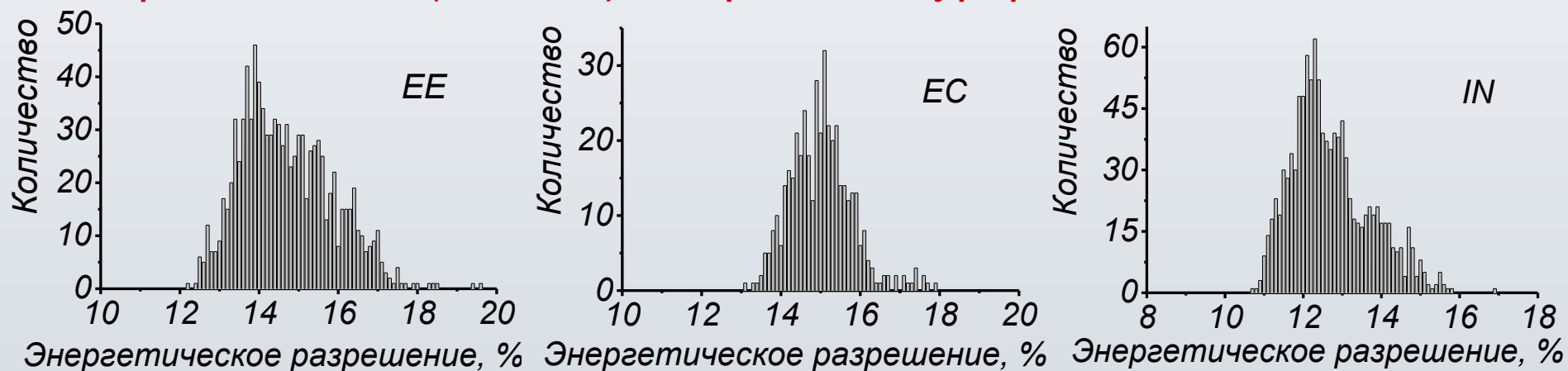


Пластмассовые сцинтилляторы «стандартного состава» на основе полистирола. NEMO-3

Для отбора сцинтилляторов использованы следующие критерии:

- FWHM для блоков EE-типа должно быть не хуже 14,6% ($e_k - 976$ кэВ, ^{207}Bi);
- FWHM для блоков EC-типа должно быть не хуже 14,6% ($e_k - 976$ кэВ, ^{207}Bi);
- FWHM для блоков IN-типа должно быть не хуже 12,8% ($e_k - 976$ кэВ, ^{207}Bi).

Распределение изготовленных для эксперимента NEMO-3 сцинтилляторов различных типов (EE, EC и IN) по энергетическому разрешению.



**Переработано
свыше 23 тонн
исходных
материалов**

Тип ПС	Изготовлено, шт.	Отобрано, шт.	Доля отобранных, %
IN	1093	680	62
EE	994	520	51
EC	428	260	61

Пластмассовые сцинтилляторы «стандартного состава» на основе полистирола

Разработка проекта и создание участка по производству высококачественных пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола позволили:

- улучшить условия труда персонала;
- увеличить производительность труда;
- обеспечить стабильный уровень качества сцинтилляторов;
- обеспечить изготовление высококачественных пластмассовых сцинтилляторов для:
 - эксперимента по исследованию двойного β -распада NEMO-3 (LSM, г. Модан, Франция);
 - создание нескольких поколений низкофонового детектора BiPO, предназначенного для измерения сверхнизких уровней естественной радиоактивности пленочных материалов (LSM, Canfranc, Испания);
 - создание вето-системы Демонстратора SuperNEMO для поиска безнейтринного двойного β -распада ^{82}Se (LSM, г. Модан, Франция);
 - экспериментов по исследованию широких атмосферных ливней: НЕВОД-ШАЛ (НИУ «МИФИ», г. Москва, Россия), в Чешском Техническом университете в Праге (г. Прага, Чехия).

Заключение

В ходе выполнения диссертационной работы разработана совокупность методов получения новых и улучшения технологии получения известных органических сцинтилляторов, предназначенных для экспериментального обеспечения проектов в области нейтринной физики.

Основные результаты работы:

1. Разработан состав и проведены подробные исследования жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» на основе линейного алкилбензола.

Показано, что хроматографическая очистка основного вещества сцинтиллятора приводит к значительному увеличению его прозрачности. В качестве сцинтилляционной добавки рекомендовано использовать 2,5-дифенилоксазол (PPO), в качестве вторичной сцинтилляционной добавки – 1,4-ди-(5-фенил-2-оксазолил)-бензол (POPOP) или 1,4-бис-(2-метилстирил)бензол (bis-MSB). Исследованы спектрометрические и временные характеристики сцинтиллятора. Установлено, что некоторые колебания состава промышленных партий линейного алкилбензола лишь незначительно влияют на характеристики сцинтиллятора на его основе.

Уникальные свойства жидкого сцинтиллятора стандартного состава на основе ЛАБ (высокий световыход, прозрачность, высокое содержание протонов в единице объема, высокая температура вспышки, нетоксичность и химическая инертность к полимерам акрилового ряда) послужили надежными аргументами для его использования в крупномасштабном подземном физическом эксперименте Daya Bay.

Заключение

2. Для использования в нейтринном эксперименте Daya Bay разработан новый жидкий гадолинийсодержащий сцинтиллятор, в котором в качестве основного вещества используется линейный алкилбензол. На основе анализа литературных данных и собственного опыта проведен выбор элементосодержащей добавки, соответствующей условиям длительного подземного эксперимента.

Изучены спектрометрические и временные свойства нового сцинтиллятора. Измерены значения эффективности регистрации им нейтронов с энергией менее 0,4 эВ. Совокупность характеристик и временная устойчивость нового сцинтиллятора полностью согласуются с критериями, выработанными для крупномасштабных подземных экспериментов.

Разработанные технологические схемы производства элементосодержащей добавки, жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» и гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора послужили основой для производства 200 тонн и 185 тонн каждого из сцинтилляторов, соответственно.

Разработана серия гадолинийсодержащих жидких сцинтилляторов с высокой температурой вспышки на основе α -метилнафталина и фенилциклогексана, содержащих в качестве вторичных растворителей трибутилфосфат и дифенилоксид, соответственно. Сцинтилляторы первой группы содержат высокую концентрации гадолиния, достигающую 85,9 г/л, второй – демонстрируют высокий световыход (34% относительно антрацена) при концентрации металла 0,1%.

Заключение

3. Впервые в качестве добавки для получения борсодержащих органических сцинтилляторов использован о-карборан, химически стабильное соединение с высоким содержанием бора, прозрачное в видимой области спектра.

Разработаны новые борсодержащие пластмассовые сцинтилляторы на основе полистирола, содержащие о-карборан в качестве борсодержащей добавки. Полученные материалы демонстрируют хорошие спектрометрические характеристики и лишь незначительное снижение световыхода при увеличении массовой доли бора. Высокие значения эффективности регистрации нейтронов с энергией менее 0,4 эВ позволяют использовать эти сцинтилляторы в составе нейтронных детекторов, а низкий собственный радиоактивный фон – в качестве основы крупномасштабных низкофоновых детекторов в различных областях нейтринной физики.

Впервые получены устойчивые во времени борсодержащие жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола с о-карбораном в качестве борсодержащей добавки. Эти сцинтилляторы прозрачны, имеют высокие световыход и эффективность регистрации нейтронов с энергией менее 0,4 эВ и могут быть использованы в составе крупномасштабных детекторов.

Заключение

4. Разработан новый метод получения пластмассовых сцинтилляторов, содержащих редкоземельные элементы на основе полиметилметакрилата. На его основе изготовлены новые гадолинийсодержащие пластмассовые сцинтилляторы с рекордным содержанием металла, достигающим 4%, и впервые получены неодимсодержащие пластмассовые сцинтилляторы. В качестве элементосодержащих добавок впервые использованы комплексные соединения минеральных солей гадолиния и неодима с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты.

Выполнено детальное исследование свойств новых сцинтилляторов: измерены спектры поглощения и люминесценции, зависимость световыхода от концентрации металла; для гадолинийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов дополнительно определены значения эффективности регистрации нейтронов в зависимости от содержания гадолиния. Показано, что использование в качестве элементосодержащих добавок комплексных соединений хлоридов этих металлов с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты приводит к более высокому световыходу сцинтилляторов, по сравнению с комплексами на основе их нитратов (полтора раза для гадолиния и два раза для неодима при массовой доле металла 3%).

Заключение

5. Впервые получены неодимсодержащие жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола с рекордным содержанием металла, составляющим 2,52%, в полной мере отвечающие требованиям крупномасштабных экспериментов.

Изучено влияние состава неодимсодержащих жидких сцинтилляторов на их свойства. Показано, что наилучшим кандидатом на роль неодимсодержащей добавки является 3,5,5-триметилгексаноат неодима. Установлено, что наилучшее значение световыхода (на 20% больше) достигается при получении сцинтиллятора методом растворения элементосодержащей добавки. Физико-химические характеристики новых сцинтилляторов позволяют рекомендовать их использование в экспериментах по поиску $0\nu 2\beta$ -распада ^{150}Nd .

6. Впервые получены кадмийсодержащие пластмассовые сцинтилляторы на основе полиметилметакрилата и разработаны новые кадмийсодержащие жидкие сцинтилляторы с высокой температурой вспышки на основе смесей линейного алкилбензола с трибутилфосфатом.

Исследованы спектральные и сцинтилляционные свойства новых детектирующих материалов. Показано, что увеличение массовой доли кадмия как в пластмассовых, так и в жидких сцинтилляторах приводит к снижению их световыхода. Полученные новые сцинтилляционные материалы обладают хорошей эффективностью регистрации нейтронов с энергией менее 0,4 эВ и могут быть использованы в ряде экспериментов.

Заключение

7. Разработан проект и введен в эксплуатацию участок по производству высококачественных пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола. Это позволило:

- обеспечить стабильный уровень качества сцинтилляторов;
- изготовить высококачественные пластмассовые сцинтилляторы для:
 - эксперимента по исследованию двойного β -распада NEMO-3 (LSM, г. Модан, Франция);
 - нескольких модификаций низкофонового детектора BiPO, предназначенного для измерения сверхнизких уровней естественной радиоактивности пленочных материалов (LSM, Canfranc, Испания);
 - veto-системы Демонстратора SuperNEMO для поиска безнейтринного двойного β -распада ^{82}Se (LSM, г. Модан, Франция);
 - экспериментов по исследованию широких атмосферных ливней: НЕВОД-ШАЛ (НИЯУ «МИФИ»), в Чешском Техническом университете в Праге.