

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт ядерных исследований Российской академии наук

На правах рукописи

Сидоренков Андрей Юрьевич

**Разработка жидкого сцинтиллятора на основе  
линейного алкилбензола для экспериментов следующего  
поколения в астрофизике частиц**

01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
доктор физико-математических наук  
Б.К. Лубсандоржиев

Москва 2021

Оглавление	
Введение.....	4
Глава 1. Жидкие сцинтилляторы в экспериментах в астрофизике частиц .....	10
1.1. Роль жидких сцинтилляторов в физике нейтрино.....	10
1.2. Эксперименты с реакторными нейтрино.....	12
1.2.1. Эксперимент Double Chooz.....	12
1.2.2. Эксперимент Daya Bay .....	14
1.2.3. Эксперимент RENO .....	15
1.2.4. Эксперимент JUNO.....	17
1.3. Эксперимент Borexino .....	20
1.4. Эксперимент KamLAND .....	23
1.5. Эксперимент SNO+.....	25
Глава 2. Жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола и новых сцинтилляционных добавок.....	28
2.1. Механизмы сцинтилляции в жидких органических сцинтилляторах. ...	28
2.2. Световыход органических сцинтилляторов.....	38
2.3. Измерительные стенды для исследования параметров жидких сцинтилляторов. ....	41
2.4. Оптимизация состава жидких органических сцинтилляторов.....	45
2.5. Сцинтилляционные параметры жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола и кремнийсодержащих сцинтилляционных добавок. ....	59
2.6. Дискриминация частиц по форме импульса в жидких органических сцинтилляторах .....	71
2.7. Проект нового нейтринного жидкосцинтилляционного детектора большого объема в БНО ИЯИ РАН .....	77

Глава 3. Очистка жидкого сцинтиллятора.....	82
3.1. Адсорбционная хроматография.....	82
3.2. Вакуумная дистилляция и водная экстракция .....	87
3.3. Содержание изотопа $^{14}\text{C}$ в жидких органических сцинтилляторах. Низкофоновая лаборатория в шахте Пюхасалми .....	89
Глава 4. Фотоэлектронные умножители для использования в жидких сцинтилляционных детекторах.....	99
4.1. Измерительные стенды для исследования параметров фотоэлектронных умножителей.....	101
4.2. Исследование параметров разработанных полусферических фотоэлектронных умножителей для крупномасштабных сцинтилляционных экспериментов. ....	106
4.3. Исследования параметров фотоэлектронного умножителя HZC PHOTONICS XP72B22 диаметром 3 дюйма для эксперимента JUNO. ....	114
Глава 5. Высокоэффективные и быстрые неорганические сцинтилляционные кристаллы для исследования нелинейных эффектов в жидких сцинтилляторах. ....	118
Заключение .....	127
Литература .....	130

## Введение

### Актуальность темы исследований

Жидкие сцинтилляторы играют поистине выдающуюся роль в современной экспериментальной астрофизике частиц, в особенности в нейтринной физике. Жидкий сцинтилляционный детектор сыграл исключительную роль уже при экспериментальном открытии нейтрино в эксперименте Райнеса и Коэна [1]. Именно гений Ф. Райнеса привел к осознанию значимости и потенциала жидких сцинтилляторов. Эпоха прецизионных измерений параметров нейтринных осцилляций началась с началом работы экспериментов KamLAND [2] и Borexino [3], которые являются жидкосцинтилляционными детекторами. Эта замечательная эпоха продолжилась экспериментами с реакторными антинейтрино Double Chooz [4], Daya Bay [5] и RENO [6], в которых с удивительной точностью измерен угол смешивания нейтрино  $\theta_{13}$ . И снова, все эти эксперименты являются жидкосцинтилляционными детекторами. Замечательно, ненулевое значение угла смешивания  $\theta_{13}$  открывает возможности для экспериментов по измерению CP-нарушающей фазы  $\delta$ , в которых важную роль снова будут играть жидкие сцинтилляторы. Сегодня можно говорить о наступлении эры крупномасштабных многокилотонных жидкосцинтилляционных экспериментов. Активно ведутся работы по международному нейтринному эксперименту JUNO (Jiangmen Underground Neutrino Observatory) с 20 кт жидкого сцинтиллятора [7]. Одной из основных задач этого эксперимента является решение фундаментального вопроса – измерение иерархии масс нейтрино. Физический пуск эксперимента планируется уже в 2021 году. Обсуждался и проект с 50 кт жидкого сцинтиллятора LENA шахте Пюхасалми в Финляндии [8]. Активно работает и ряд жидкосцинтилляционных экспериментов по поиску стерильных нейтрино (NEUTRINO-4 [9], NEOS [10]). Таким образом, разработку и создание

высокоэффективных жидких сцинтилляторов является одной из наиболее актуальных задач современной экспериментальной физики.

### **Цель работы и методы исследований**

Цель работы состоит в разработке, создании и исследовании параметров высокоэффективных жидких сцинтилляционных детекторов на основе линейного алкилбензола и новых высокоэффективных сцинтилляционных добавок. Также целями работы являются разработка и создание методов и средств исследования параметров разрабатываемых жидких сцинтилляторов, включая разработку специализированного 3-х дюймового фотоэлектронного умножителя для жидкосцинтилляционных детекторов, разработку электронной регистрирующей системы для установок по измерению концентрации радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах, исследование параметров высокоэффективных быстродействующих неорганических сцинтилляционных кристаллов для изучения эффектов нелинейности отклика жидких сцинтилляторов.

### **Научная новизна и практическая ценность работы**

В рамках данной работы впервые в мире разработаны жидкие сцинтилляторы с высоким световыходом на основе линейного алкилбензола с кремнийорганическими сцинтилляционными добавками и исследованы их основные сцинтилляционные параметры. Показано, что световыход таких сцинтилляторов существенно превышает световыход сцинтилляторов с использованием традиционных сцинтилляционных добавок, например, PPO (2,5-дефинилоксазол). Разработанные жидкие сцинтилляторы с кремнийорганическими добавками, несомненно, представляют большой интерес для крупномасштабных экспериментов в астрофизике частиц, в нейтринной физике в особенности.

Также впервые в отечественной практике разработан и создан специализированный фотоэлектронный умножитель для использования в жидко-сцинтилляционных детекторах. Создание такого фотоумножителя открывает возможности решения проблемы импортозамещения и возрождения массового производства фотоумножителей в нашей стране.

### **Личный вклад автора**

Автор принимал активное участие в разработке новых эффективных сцинтилляционных добавок и жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола с этими добавками. Автором лично изготовлены все образцы сцинтилляторов и проведены все измерения сцинтилляционных параметров разработанных жидких сцинтилляторов. Автор сыграл определяющую роль в разработке и создании методов и средств исследования параметров разработанных жидких сцинтилляторов. Ключевая роль принадлежит автору и в разработке специализированного фотоэлектронного умножителя для использования в широкомасштабных жидкосцинтилляционных детекторах. Автором лично разработан и создан измерительный стенд для исследования параметров фотоумножителей и выполнены все измерения параметров, результаты которых представлены в диссертации. Автору принадлежит основная роль в разработке и создании детекторной системы низкофоновой установки по исследованию содержания радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах на основе линейного алкилбензола. Автором измерены сцинтилляционные параметры высокоэффективных неорганических сцинтилляторов GAGG(Ce) для использования в системе измерения нелинейности отклика жидких сцинтилляторов.

## **Основные положения, выносимые на защиту:**

1. Разработка и создание совместно с ИСПМ РАН жидких сцинтилляторов с повышенным световыходом на основе новых кремнийорганических сцинтилляционных добавок и линейного алкилбензола для экспериментов следующего поколения в астрофизике частиц.
2. Разработка и создание методов и средств исследования основных сцинтилляционных свойств жидких сцинтилляторов – относительного световыхода и кинетики свечения на базе быстродействующих фотоумножителей с фотокатодами с высокой квантовой эффективностью.
3. Разработка совместно с ООО «МЭЛЗ ФЭУ» полусферических 3-дюмовых фотоэлектронных умножителей для крупномасштабных жидко-сцинтилляционных детекторов следующего поколения.
4. Разработка методов и средств тестирования и исследования высокоэффективных быстрых неорганических сцинтилляционных кристаллов GAGG(Ce) для исследования нелинейных эффектов в жидких сцинтилляторах с использованием комптоновской спектрометрии.
5. Разработка и создание электронной регистрирующей системы для низкофоновой установки по исследованию содержания радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах на основе органических растворителей.

## **Апробация работы и публикации**

Основные результаты диссертационной работы представлялись автором в устных и стендовых докладах на международных и российских конференциях:

1. 35th International Cosmic Ray Conference ICRC 2017, Bexco, Busan, Korea, 12-20 July 2017.
2. 36th International Cosmic Ray Conference ICRC 2019, Madison, Wisconsin, USA, 24 July – 1 August 2019.

3. Международная конференция по астрофизике частиц «APP-2018», сентябрь 2018, Горячинск, Бурятия, Россия.

4. Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых “Ломоносов-2021”, Москва, Россия, 12-23 апреля 2021.

Основные положения, выносимые на защиту, опубликованы в 12 статьях, входящих в список ВАК, индексируемых в базах Web of Science и SCOPUS:

1. S. Lubsandorzhev, A. Sidorenkov, et al. Development of new liquid scintillators for neutrino experiments of next generation // PoS (ICRC2019) 946.

2. S. Lubsandorzhev, A. Sidorenkov, et al. Development of medium and small size photomultipliers for neutrino experiments // PoS (ICRC2019) 948.

3. S. Lubsandorzhev, ....., A. Sidorenkov, et al. A New Low Background Laboratory in the Pyhäsalmi Mine: Towards  $^{14}\text{C}$  free liquid scintillator for low energy neutrino experiments // PoS (ICRC2017) 1044.

4. L. V. Bezrukov, ....., A. Yu. Sidorenkov. New Low-Background Laboratory in the Pyhäsalmi Mine, Finland // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2018. Т.49. N.4. P.769-773.

5. И. Р. Барабанов, ....., А.Ю. Сидоренков и др. Детектор большого объема в Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН для исследования природных потоков нейтрино для целей гео- и астрофизики // Ядерная физика. 2017. Т.80. N.3. С.230-238.

6. И. Р. Барабанов, ....., А.Ю. Сидоренков и др. Измерение содержания  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах с помощью детектора малого объема в низкофоновой камере Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН // Ядерная физика. 2017. Т.80. N.6. С.665-672.

7. Bayarto Lubsandorzhev, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Studies of vacuum photomultipliers at extremely low thresholds, photoelectron backscattering and photon detection efficiency // PoS (PhotoDet2015)074.

8. Yu. Malyshkin, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Modeling of MeV-scale particle detector based on organic liquid scintillator // Nuclear Instruments and Methods A.

2020. V.951. 162920.

9. V.B. Petkov, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Baksan Large volume scintillation telescope: a current status // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V.1468. P.012244.

10. A. Abusleme, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Optimization of the JUNO liquid scintillator composition using a Daya Bay antineutrino detector // Nuclear Instruments and Methods A. 2021. Vol.988. P.164823.

11. Chuanya Cao, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Mass production and characterization of 3-inch PMTs for the JUNO experiment // Nuclear Instruments and Methods A. 2021. V.1005. P.165347.

12. Qi Wu, Sen Qian, Lishuang Ma, ....., Andrey Sidorenkov et al. Study of after-pulses in the 20-inch HQE-MCP-PMT for the JUNO experiment // Nuclear Instruments and Methods A, 1003. 2021. 165351.

## Глава 1. Жидкие сцинтилляторы в экспериментах в астрофизике частиц

### 1.1. Роль жидких сцинтилляторов в физике нейтрино

Различные детекторы на основе жидких сцинтилляторов, такие как Borexino, KamLAND, Double Chooz, Daya Bay и RENO внесли большой вклад в нейтринную физику и физику элементарных частиц, зарегистрировав нейтрино и антинейтрино с энергиями в диапазоне от нескольких сотен кэВ до нескольких десятков МэВ.

Наблюдение частиц с помощью детектора на основе жидкого сцинтиллятора основано на регистрации световой вспышки, произведенной заряженной частицей, проходящей через сцинтиллирующую среду. Заряженные частицы, распространяющиеся в среде, ионизируют и/или возбуждают молекулы и сцинтилляционные фотоны изотропно излучаются в последующем процессе снятия возбуждения молекул. Сцинтиллирующая среда обычно имеет основу из растворителя, содержащего органические ароматические молекулы, например, псевдокумол (PC), используемый в Borexino или линейный алкилбензол (LAB) в SNO+.

Чтобы избежать поглощения испущенных фотонов в растворитель обычно добавляют сцинтилляционные добавки. Эти добавки очень эффективно поглощают излучение основного сцинтиллятора и излучают свет на более длинных волнах. Это делает сцинтилляционный материал более прозрачным для фотонов, и они могут перемещаться на большие расстояния, что позволяет их детектировать с помощью фотоэлектронных умножителей, окружающих сцинтилляционный материал. Например, в Borexino и SNO+ в качестве сцинтилляционных добавок используют PPO (2,5-дифенилоксазол) с концентрациями 1,5 и 2 г/л, соответственно.

Обычно органический сцинтиллятор испускает порядка 10 000 фотонов на 1 МэВ накопленной энергии. Количество зарегистрированных фотонов устанавливает предел возможности восстановления энергии детектором. На

это влияют оптические свойства сцинтилляционной среды, покрытие фотокатода фотоэлектронного умножителя (ФЭУ), квантовая эффективность ФЭУ и эффективность считывающей электроники. Как правило, жидкие сцинтилляционные детекторы имеют хорошее энергетическое разрешение. Например, в Borexino энергетическое разрешение составляет примерно 5% на 1 МэВ накопленной энергии. Вследствие изотропной эмиссии сцинтилляционного света положение события и его энергия может быть восстановлена, используя измеренные разности времени и интенсивности на разных ФЭУ. Наиболее оптимальной формой для сбора света является сфера.

Другой важной особенностью жидких сцинтилляторов является низкая энергия возбуждения молекул ( $\sim 1$ эВ), создающих сцинтилляционный свет. Это, в принципе, позволило бы измерять относительно низкоэнергетические события без порога.

С другой стороны, нижний предел энергии нейтрино задается остаточной радиоактивностью, присущей материалам детектора. Уровень фона в большой степени зависит от материалов, используемых в детекторе, а также от материалов, окружающих детектор. Обычно нижний предел энергии имеет порядок  $\sim 200$  кэВ, из-за собственного радиоактивного фона жидкого сцинтиллятора. В этом случае жидкий сцинтиллятор должен быть подвергнут простым методам очистки для снижения этого фона.

Начиная с 1950 года детекторы на основе жидких сцинтилляторов сыграли решающую роль для многих проблем физики нейтрино:

- Наблюдение первого нейтрино Ф. Райнесом и К. Коэном в 1956 году.
- Подтверждение осцилляции нейтрино с использованием реакторных нейтрино экспериментом KamLAND.
- Наблюдение сигнала от геонейтрино экспериментами KamLAND и Borexino.
- Точное измерение потока солнечных бериллиевых нейтрино, доказательство существования солнечных рер-нейтрино и наблюдение

солнечных  $\nu$  $\nu$ -нейтрино еще более низких энергий экспериментом Borexino.

- Три независимых измерения угла смешивания нейтрино  $\theta_{13}$  реакторными нейтринными экспериментами Double Chooz, Daya Bay и RENO.

## 1.2. Эксперименты с реакторными нейтрино

### 1.2.1. Эксперимент Double Chooz

Double Chooz – эксперимент на реакторных антинейтрино, целью которого является измерение угла смешивания  $\theta_{13}$ . Эксперимент проводится в рамках международного сотрудничества на атомной электростанции Шо на севере Франции. В ядерном реакторе производится около  $10^{22}$  антинейтрино на 1 ГВт тепловой энергии. Чтобы определять вероятность осцилляций, два практически идентичных детектора построены на разных расстояниях (0,4 км и 1,05 км) от реактора.

Каждый из детекторов Double Chooz (рис.1.1) состоит из четырех концентрических цилиндров, внешнего вето и калибровочных устройств [4].

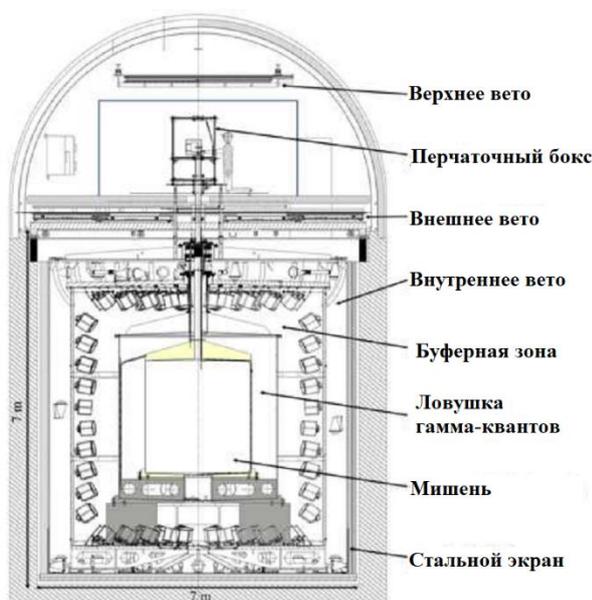


Рисунок 1.1. Схема детектора Double Chooz [4].

Самый внутренний цилиндр представляет собой нейтринную мишень объемом  $10,3 \text{ м}^3$ , состоящую из акрилового сосуда, заполненного жидким сцинтиллятором на основе фенил-ксилил-этана (PXE) с добавлением гадолиния (Gd) концентрацией  $1 \text{ г/л}$ . Гадолий повышает эффективность детектирования, обеспечивая большое сечение захвата нейтронов. Мишень окружена буферной зоной, заполненной аналогичным жидким сцинтиллятором без добавления гадолиния, объемом  $22,5 \text{ м}^3$ , которая собирает  $\gamma$ -кванты, выделившиеся при аннигиляции позитронов, а также  $\gamma$ -кванты, выделившиеся при захвате нейтронов. В свою очередь буферная зона окружена еще одним буферным слоем, заполненным несцинтиллирующим минеральным маслом толщиной  $105 \text{ см}$ , помещенным в резервуар из нержавеющей стали, который служит защитой от внешних  $\gamma$ -квантов. Свет от мишени собирается 390 ФЭУ размером  $10 \text{ дюймов}$ , установленными на внутренней стенке стального буферного резервуара. За пределами буфера находится оптически изолированный от него слой жидкого сцинтиллятора толщиной  $50 \text{ см}$  в стальном резервуаре, оборудованном 78 ФЭУ размером  $8 \text{ дюймов}$ , который является внутренним вето от внешних событий. Над детектором находится внешнее мюонное вето. Система труб соединяет внутренние объемы с внешним и используется для введения калибровочных источников в детектор. Для калибровки используются  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{68}\text{Ge}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{252}\text{Cf}$  в сочетании со светодиодной системой.

Первые результаты эксперимента были представлены в ноябре 2011 года, тогда же было объявлено об экспериментальном обнаружении ненулевого значения угла  $\theta_{13}$ . В статье за 2012 год, в которой использовались данные за 228 дней по результатам измерения угла  $\theta_{13}$  гипотеза об отсутствии осцилляций была исключена при статистической значимости  $2,9\sigma$  [11].

Улучшенное измерение угла смешивания  $\theta_{13}$  с учетом фоновых событий и систематической неопределенности после  $467,90$  дней набора

данных было опубликовано в 2014 году [12]. Согласно этим данным,  $\sin^2(2\theta_{13}) = 0,090^{+0,032}_{-0,029}$ .

### 1.2.2. Эксперимент Daya Bay

Нейтринный реакторный эксперимент Daya Bay [5] предназначен для точного определения угла смешивания  $\theta_{13}$  посредством относительного измерения. Эксперимент проводится на атомной электростанции Дайя Бей в Шэньчжэне на юге Китая, примерно в 55 км от Гонконга. Общая мощность всех 6 реакторов составляет 17,4 ГВт. На территории электростанции располагаются три экспериментальных зала с 8 действующими детекторами антинейтрино, общая масса материала мишени всех детекторов составляет 160 тонн. Детали планировки эксперимента можно найти в статье [13].

Каждый из детекторов антинейтрино (рис. 1.2) состоит из трех концентрических цилиндрических емкостей. Внутренняя центральная емкость диаметром 3,1 метра заполнена 20 тоннами жидкого сцинтиллятора с добавлением гадолиния, который служит мишенью для антинейтрино.

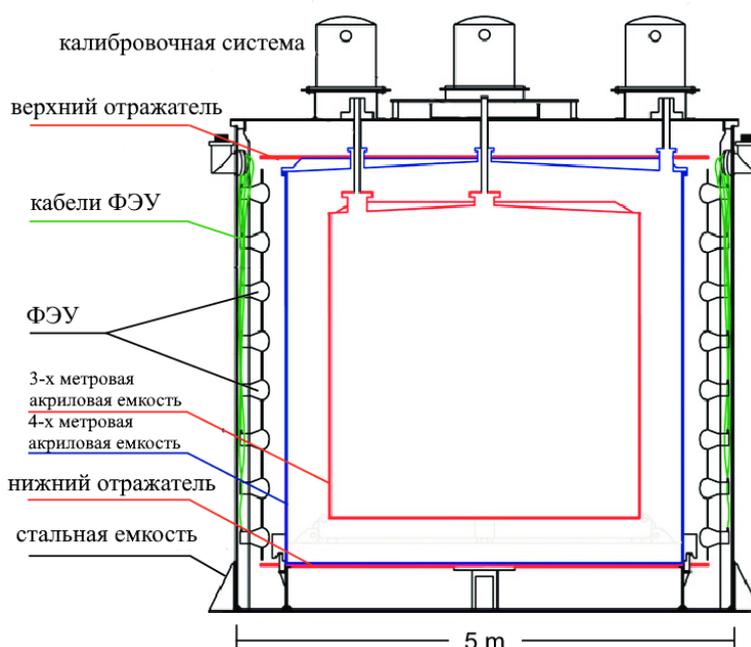


Рисунок 1.2. Схема детектора антинейтрино эксперимента Daya Bay [14].

Промежуточная емкость диаметром 4 метра заполнена жидким сцинтиллятором для регистрации гамма-квантов, покидающих центральную зону детектора. Наружная емкость диаметром 5 метров содержит минеральное масло для защиты от радиационного фона окружающих материалов. Восемь рядов ФЭУ, по 24 ФЭУ в каждом ряду, установлены на вертикальной стене внутри каждого детектора антинейтрино. Сверху и снизу каждого детектора установлены оптические отражатели, чтобы максимально увеличить светосбор. В верхней части каждого детектора установлены три автоматических калибровочных блока, которые позволяют разворачивать источники калибровки в разных областях детектора. Все детекторы в пределах одного экспериментального зала погружены в водный бассейн, который выступает в роли водного черенковского детектора.

8 марта 2012 года коллаборация Daya Bay объявила об обнаружении [5] того, что угол  $\theta_{13}$  отличен от нуля, со статистической значимостью  $5,2\sigma$ . Согласно измерениям коллаборации,  $\sin^2(2\theta_{13}) = 0,092 \pm 0,016$  (стат.)  $\pm 0,005$  (сист.).

Этот значимый результат согласуется с более ранними, но менее статистически значимыми результатами работы таких экспериментов, как T2K, MINOS и Double Chooz.

В эксперименте Daya Bay также был измерен энергетический спектр антинейтрино и было обнаружено превышение наблюдаемого потока антинейтрино с энергией около 5 МэВ, по сравнению с предсказанием теоретической модели. Это неожиданное несоответствие между наблюдениями и предсказаниями позволило предположить, что стандартная модель физики элементарных частиц нуждается в улучшении [15].

### 1.2.3. Эксперимент RENO

RENO – эксперимент на реакторных антинейтрино с короткой базой, расположенный в Южной Корее. Эксперимент был разработан для измерения

или установления предела угла смешивания нейтрино  $\theta_{13}$ . Эксперимент RENO имеет два идентичных детектора, расположенных на расстоянии 294 м и 1383 м, которые регистрируют электронные антинейтрино, производимые шестью реакторами на атомной электростанции Ханбит в Южной Корее.

Детектор RENO состоит из 4 слоев, начиная с центра: мишени, ловушки гамма-квантов, буферной емкости и вето. Каждый слой представляет собой концентрический цилиндр. Схема детектора RENO представлена на рис. 1.3.

Мишень представляет собой цилиндр радиусом 1,4 м и высотой 3,2 м, и содержит 16,3 тонны жидкого сцинтиллятора на основе LAB с 0,1% содержанием гадолиния. Чтобы повысить эффективность обнаружения сигнала от захвата нейтронов внутри мишени, добавлен второй слой, представляющий собой ловушку гамма-квантов, толщина этого слоя составляет 60 см. Эффективность обнаружения нейтрино с ловушкой гамма-квантов толщиной 60 см составляет  $(93,0 \pm 0,6) \%$ .

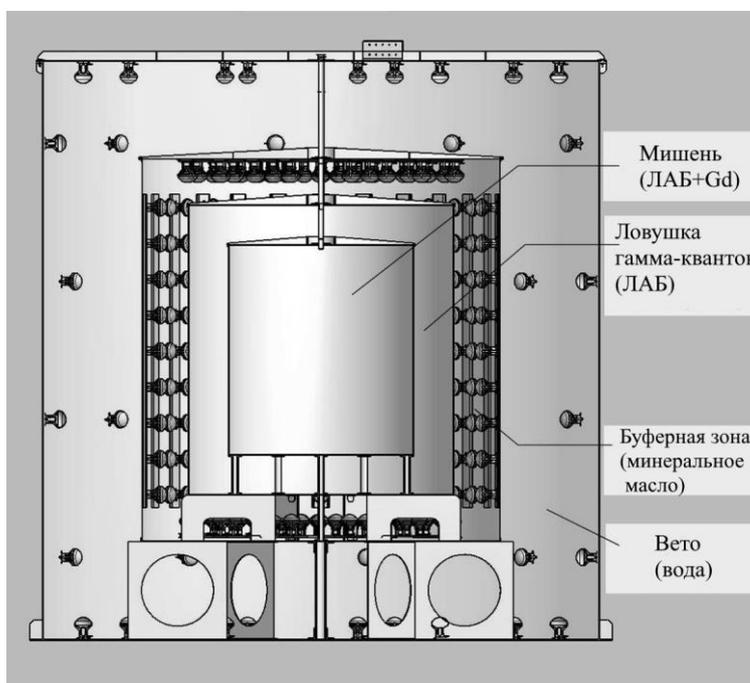


Рисунок 1.3. Схема детектора RENO [16].

Буферная емкость заполнена несцинтиллирующим минеральным маслом. На стенке буферной емкости равномерно установлены 342 ФЭУ размером 10-дюймов, а толщина слоя минерального масла составляет 0,7 м, чтобы эффективно уменьшить радиоактивный фон от ФЭУ. Наружный слой детектора RENO представляет собой слой вето, заполненный чистой водой. Его целью является уменьшение фона от гамма-квантов и нейтронов из окружающей среды. Толщина слоя воды составляет 1,5 м.

По результатам работы эксперимента RENO было получено более точное значение угла смешивания  $\theta_{13}$  и впервые значение разности квадратов массы нейтрино  $|\Delta m_{ee}^2|$ . Также в измеренном спектре наблюдался избыток реакторных антинейтрино с энергией около 5 МэВ, что соответствует наиболее часто используемым в настоящее время моделям. Будущий реакторный эксперимент RENO-50, который находится на стадии планирования, позволит определить иерархию масс нейтрино и провести высокоточные измерения  $\theta_{12}$ ,  $\Delta m_{12}^2$  и  $|\Delta m_{ee}^2|$ .

#### 1.2.4. Эксперимент JUNO

Эксперимент JUNO (Jiangmen Underground Neutrino Observatory) – это крупномасштабный детектор реакторных нейтрино, строящийся на юге Китая. Целью эксперимента является определение иерархии масс нейтрино и измерение некоторых параметров осцилляций нейтрино с беспрецедентной точностью.

Местоположение детектора было выбрано с учетом оптимального среднего расстояния (53 км) до активных зон двух атомных электростанций (Янцзян и Тайшань). Данное местоположение обеспечит максимальную чувствительность к иерархии масс нейтрино. Детектор будет развернут в подземной лаборатории.

Центральный детектор [17] состоит из 20 кт жидкого сцинтиллятора, линейного алкилбензола (LAB), в акриловой сфере диаметром 35,4 м, как

показано на рис. 1.4. Жидкий сцинтиллятор имеет такой же состав, как в детекторе Daya Bay, и представляет собой LAB с добавлением PPO (2,5 г/л) в качестве сцинтилляционной добавки и bis-MSB (15 мг/л) в качестве шифтера. Акриловая сфера окружена водным бассейном (глубиной 44 м и диаметром 43,5 м), который будет использоваться в качестве черенковского вето и в качестве защиты от внешних фоновых излучений. Над водным бассейном расположен другой мюонный детектор для точного измерения треков мюонов.

Для эффективной регистрации сцинтилляционного света детектор JUNO имеет систему из 18000 больших ФЭУ диаметром 20 дюймов и 25000 маленьких ФЭУ диаметром 3 дюйма, которые дополняют друг друга и покрывают более 78% поверхности детектора. Большие ФЭУ будут иметь большой динамический диапазон от одного фотоэлектрона (ф. э.) до 100 ф. э., в то время как маленькие ФЭУ будут находиться в режиме счета одиночных фотонов.

Система больших ФЭУ обеспечит покрытие около 75%, а система маленьких ФЭУ всего около 3%. При этом маленькие ФЭУ быстрее и будут характеризоваться лучшим однофотоэлектронным разрешением и будут иметь меньший темновой ток по сравнению с большими ФЭУ.

Основной целью физической программы с детектором JUNO является определение иерархии масс нейтрино с хорошей чувствительностью ( $3\sigma$  через 6 лет) и точное измерение параметров смешивания нейтрино. В эксперименте JUNO планируется измерить параметры  $\sin^2 \theta_{12}$ ,  $\Delta m_{21}^2$  и  $\Delta m_{ee}^2$  с точностью ниже 1%.

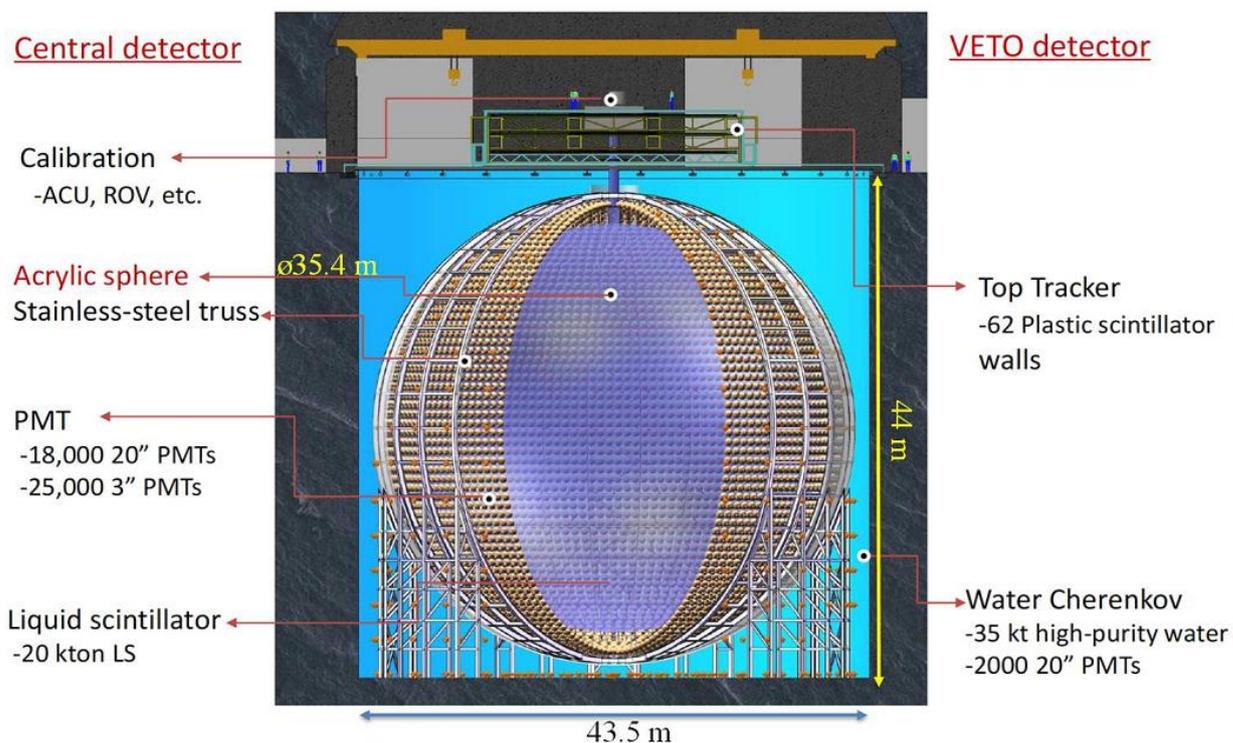


Рисунок 1.4. Схематичное изображение детектора JUNO. Основные части детектора: центральный детектор, состоящий из жидкого сцинтиллятора; акриловая сфера, фотоэлектронные умножители; вето, представляющее собой водный черенковский детектор [17].

С помощью детектора JUNO могут быть изучены многие другие аспекты физики нейтрино, такие как нейтрино от вспышек сверхновых и диффузные нейтрино от сверхновых, которые предоставят информацию о стандартной модели нейтрино. Из солнечных нейтрино можно получить информацию о потоках  ${}^7\text{Be}$ - и  ${}^8\text{B}$ -нейтрино, в то время как из геонейтрино может быть получена информация об отношении U/Th. JUNO может также предоставить информацию о косвенных методах поиска темной материи и может использоваться для изучения атмосферных нейтрино.

### 1.3. Эксперимент Borexino

Borexino – это крупномасштабный жидко-сцинтилляционный детектор, основной целью которого является измерение низкоэнергетических солнечных нейтрино (около 1 МэВ) в режиме реального времени. Он расположен глубоко под землей (около 3800 метров водного эквивалента) в подземной лаборатории Гран Сассо.

Детектор Borexino состоит из сферического внутреннего детектора (мишени), окружающего его внешнего детектора, большого резервуара с водой, действующего как в качестве пассивного экрана, так и в качестве активного мюонного вето [3]. Общая схема представлена на рис. 1.5. Внутренний детектор представляет собой жидкий сцинтиллятор, который состоит из псевдокумола (1,2,4-триметилбензол) с добавлением PPO (2,5-дифенилоксазол) в количестве 1,5 г/л. Номинальная масса мишени составляет 278 тонн. Сцинтиллятор содержится в тонком (125 мкм) нейлоновом сосуде радиусом 4,25 м и экранируется двумя концентрическими неактивными буферными зонами, заполненными псевдокумолем (массой 323 т и 567 т, с добавлением сцинтилляционного гасителя – диметилфталата).

Буферные зоны разделены тонкой нейлоновой мембраной, чтобы предотвратить диффузию радона в направлении сцинтиллятора. Сцинтиллятор и буферные зоны помещены в сферу из нержавеющей стали диаметром 13,7 м. Стальная сфера заключена в куполообразный резервуар с водой диаметром 18,0 м, содержащий 2100 тонн сверхчистой воды. Сцинтилляционный свет регистрируется с помощью 2212 ФЭУ диаметром 8 дюймов, равномерно распределенных по внутренней поверхности стальной сферы. Дополнительные 208 ФЭУ диаметром 8 дюймов закреплены на внешней стороне стальной сферы и служат для регистрации черенковского света, излучаемого мюонами в водном слое.

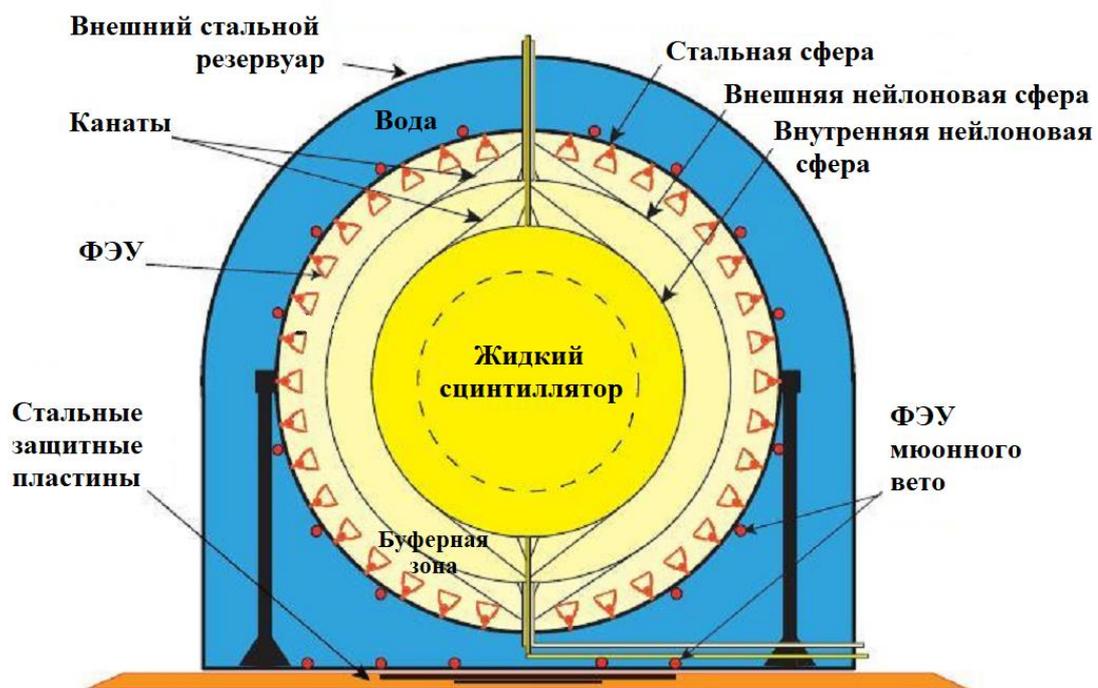


Рисунок 1.5. Схематичное изображение детектора Borexino.

В Borexino низкоэнергетические нейтрино всех ароматов обнаруживаются с помощью их упругого рассеяния на электронах или, в случае электронных антинейтрино, с помощью обратного бета-распада на свободных протонах. Borexino чувствителен к нейтрино с энергией по меньшей мере около 100 кэВ, в то время как обратный бета-распад, вызванный антинейтрино, требует минимальной энергии нейтрино 1,8 МэВ.

Чтобы наблюдать очень малые и редкие сигналы (типичные сигналы от солнечных нейтрино составляют десятки импульсов в день или меньше), Borexino должен был выполнить очень строгие требования с точки зрения радиационной чистоты. Проблема была решена путем разработки подходящих методов очистки сцинтиллятора, воды и азота, путем тщательного отбора материалов, путем создания и эксплуатации прототипа детектора. Программа была успешной, так, например, конечное содержание урана и тория стало меньше, чем изначальные значения на стадии проектирования.

Эксперимент Borexino работал непрерывно с мая 2007 года и проводил измерения спектра энергии солнечных нейтрино с постоянно возрастающей точностью. В рамках первой фазы Borexino получил следующие результаты:

- измерен поток солнечных  ${}^7\text{Be}$ -нейтрино с точностью более 5%, то есть лучше, чем неопределенность стандартной солнечной модели;
- была исключена с высокой чувствительностью любая асимметрия день-ночь в потоке солнечных  ${}^7\text{Be}$ -нейтрино, установлен строгий предел регенерации электронного аромата для солнечных нейтрино, проходящих через Землю, и предоставлено дополнительное подтверждение достоверности модели MSW-LMA осцилляции солнечных нейтрино;
- представлены доказательства существования рер-нейтрино;
- получена верхняя граница для потока солнечных нейтрино, связанных с CNO-циклом;
- измерен поток солнечных  ${}^8\text{B}$ -нейтрино с низким энергетическим порогом;
- проверено существование множества редких, нестандартных процессов, таких как существование магнитного момента нейтрино.

Отчет о результатах первой фазы работы Borexino можно найти в работе [18]. В течение следующих двух лет была проведена дополнительная очистка сцинтиллятора от радиоактивности, и в 2012 году началась вторая фаза эксперимента. Очистка позволила уменьшить содержание  ${}^{232}\text{Th}$ ,  ${}^{238}\text{U}$  до концентрации  $10^{-19}$  грамм на 1 грамм сцинтиллятора, что на три порядка ниже первоначальных характеристик сцинтиллятора Borexino. В рамках второй фазы эксперимента получены следующие результаты:

- впервые измерен спектр рр-нейтрино [19];

- получено доказательства того, что изменение потока  ${}^7\text{Be}$ -нейтрино связано с сезонной модуляцией, которая согласуется с изменяющимся телесным углом между Землей и Солнцем [20];
- были зарегистрированы геонейтрино [21]
- осуществлены поиски нейтринных сигналов в совпадении с гамма-всплесками и гравитационными волнами [22] [23].

#### 1.4. Эксперимент KamLAND

KamLAND – эксперимент на реакторных антинейтрино с длинной базой, расположенный в Японии.

Детектор KamLAND расположен в шахте Камиока на глубине около 2700 метров водного эквивалента. Внутренний детектор состоит из 1 кт ультрачистого жидкого сцинтиллятора, который является мишенью для взаимодействия с нейтрино, рис. 1.6. Жидкий сцинтиллятор состоит из 80% додекана и 20% псевдокумола с добавлением PPO в количестве  $1,36 \pm 0,03$  г/л в качестве сцинтилляционной добавки. Жидкий сцинтиллятор содержится в сферической емкости диаметром 13 м, изготовленной из прозрачной композитной нейлоновой пленки толщиной 135 мкм. Нейлоновая сфера погружена в несцинтиллирующее очищенное минеральное масло, используемое в качестве буфера. Внутренний детектор находится внутри сферического резервуара из нержавеющей стали диаметром 18 м. К внутренней части резервуара прикреплены 1325 быстрых ФЭУ диаметром 20 дюймов и 554 ФЭУ диаметром 20 дюймов, просматривающих внутренний объем внутреннего детектора. Покрытие ФЭУ составляет около 34%. Внутренний детектор окружен водным черенковским внешним детектором объемом 3200 тонн, который служит мюонным вето от космических лучей и обеспечивает дополнительное экранирование от внешних источников радиоактивности.

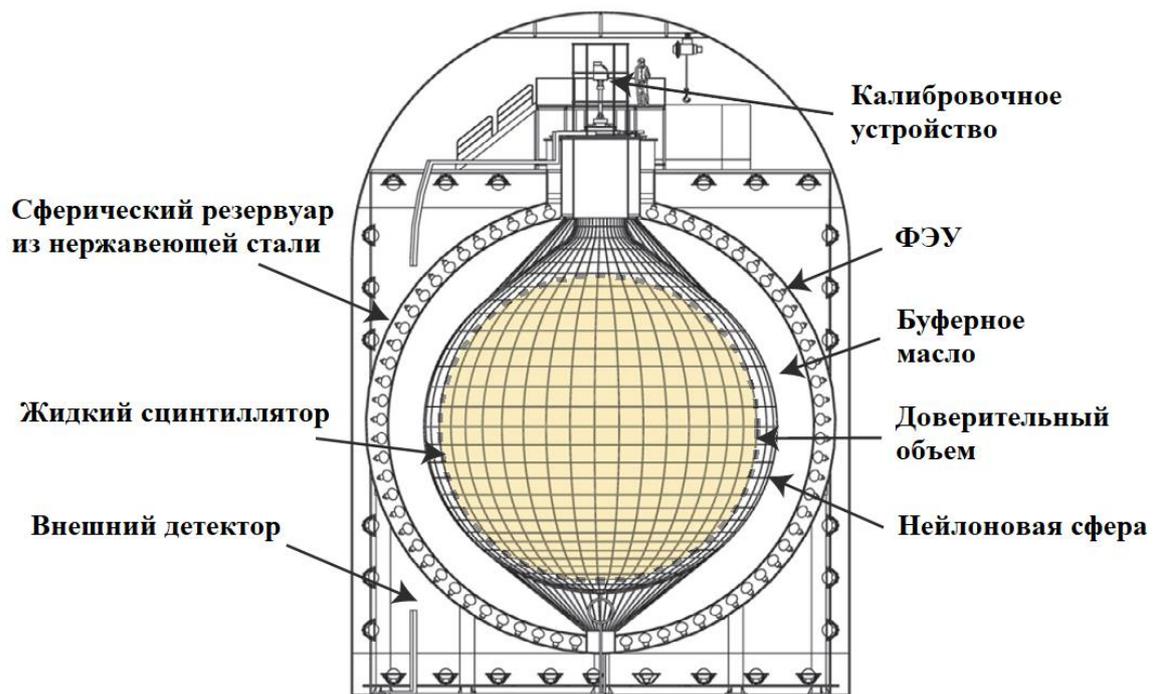


Рисунок 1.6. Схематичное изображение детектора KamLAND.

Первые результаты эксперимента KamLAND были опубликованы в декабре 2002 г. [24], вскоре после первого наблюдения осцилляций солнечных нейтрино экспериментом SNO [25]. Первоначальные результаты KamLAND показали доказательства дефицита антинейтрино от реакторов, расположенных на среднем расстоянии в 180 км от детектора. Этот результат подтвердил решение LMA-MSW для параметров смешивания нейтрино в качестве объяснения проблемы солнечных нейтрино. В последующее десятилетие KamLAND смог получить более точные значения параметров осцилляции для солнечных нейтрино. Более детальный обзор основных результатов эксперимента в период с 2002 по 2013 года изложен в статьях [24], [26], [27], [28], [29].

## 1.5. Эксперимент SNO+

Эксперимент SNO+ представляет собой многоцелевой нейтринный эксперимент, расположенный в лаборатории SNOLAB в Садбери в Канаде. SNOLAB – это научный объект, расположенный на глубине 2 070 метров под землей (около 6010 м в. э.) в никелевом руднике Вейл Крейтон [30], [31]. Новый эксперимент SNO+ является расширением существующей нейтринной обсерватории SNO, которая способствовала открытию осцилляций нейтрино [25], [32]. Расположение установки под землей обеспечивает экранирование от космических лучей. Использование ультрачистых материалов в сочетании с защитой от космических лучей делает ее идеальной для проведения экспериментов, требующих высокой чувствительности, а также для изучения редких взаимодействий и распадов.

Научная работа в SNOLAB в основном сосредоточена на исследованиях и обнаружении нейтрино и экспериментов по обнаружению темной материи.

Основной целью эксперимента SNO+ является обнаружение безнейтринного двойного бета-распада, в особенности от изотопа  $^{130}\text{Te}$  (теллур-130), который должен растворяться в жидком сцинтилляторе.  $^{130}\text{Te}$  был выбран из-за его высокой естественной распространенности, возможности подавления фонов урана и тория, отсутствию поглощения в оптическом диапазоне и относительно его низкой стоимости [33].

Центральная часть детектора SNO+ состоит из сферической акриловой емкости диаметром 12 метров, которая будет заполнена 780 тоннами жидкого сцинтиллятора. Вокруг акриловой сферы расположена сферическая поддерживающая конструкция диаметром 18 метров из нержавеющей стали, на которую будут крепиться около 9500 ФЭУ, направленных в центр акриловой сферы.

Область между акриловой и стальной сферами будет заполнена сверхчистой водой, выступающей в качестве защиты от излучения

материалов детектора и окружающей породы. Кроме того, для удержания детектора в устойчивом положении оборудована система удерживающих канатов. Схема детектора SNO+ приведена на рис. 1.7.

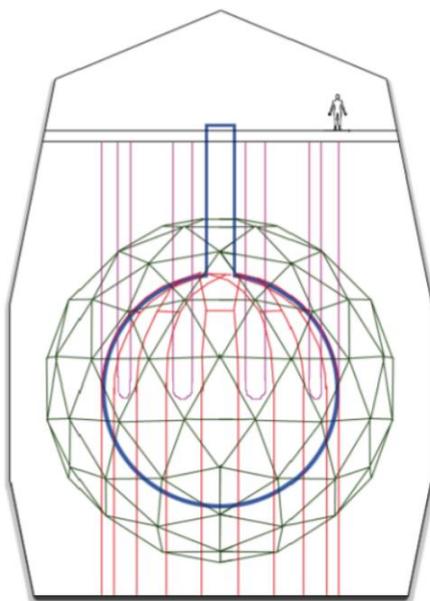


Рисунок 1.7. Схема детектора SNO+. Эскиз, взятый из статьи [34], акриловая сфера с цилиндрической горловиной изображена синим цветом, опорная стальная конструкция зеленым цветом, удерживающие канаты фиолетовым и красным цветом.

Акриловая сфера будет заполнена 780 тоннами жидкого сцинтиллятора, который состоит из линейного алкилбензола (LAB) с добавлением PPO в количестве 2 г/л в качестве сцинтилляционной добавки. Для регистрации двойного безнейтринного бета-распада в сцинтилляторе будет также растворено 2,3 тонны природного теллура в форме теллуровой кислоты.

Эксперимент SNO+ помимо поиска двойного безнейтринного бета-распада также имеет ряд других научных целей [34]. В эксперименте будет предпринята попытка обнаружить солнечные рер- и SNO-нейтрино с низкой энергией. Будут изучаться нейтрино из цепочек распада урана и тория в

Земле, так называемые геонейтрино. Будут детектироваться антинейтрино от ядерных реакторов для изучения нейтринных осцилляций. SNO+ сможет обнаруживать нейтрино и антинейтрино от галактических сверхновых. Кроме того, эксперимент SNO+ сможет изучать некоторые другие аспекты, выходящие за рамки физики Стандартной модели, такие как ненаблюдаемый распад нуклона и поиск аксионов.

## Глава 2. Жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола и новых сцинтилляционных добавок

### 2.1. Механизмы сцинтилляции в жидких органических сцинтилляторах

Основным материалом для изготовления жидких органических сцинтилляторов являются ароматические углеводороды. Сцинтилляция становится возможной благодаря наличию в ароматических молекулах делокализованных электронов. При  $sp^2$ -гибридизации одна  $p$ -орбиталь остается неизменной, тогда как две других  $p$ -орбитали и одна  $s$ -орбиталь смешиваются и образуют плоскость, которая ортогональна неизменной  $p$ -орбитали. Такое расположение является основой для образования гексагональной кольцевой структуры молекулы бензола ( $C_6H_6$ ). На рис. 2.1 показано, как  $\sigma$ -связи образуют кольцо из атомов углерода с присоединенными атомами водорода, и как остальные  $p$ -орбитали образуют симметричную узловую плоскость. В то время как  $\sigma$ -электроны хорошо локализованы и их трудно возбудить, так называемые  $\pi$ -электроны из шести  $p$ -орбиталей взаимодействуют друг с другом слабо и поэтому становятся делокализованными.

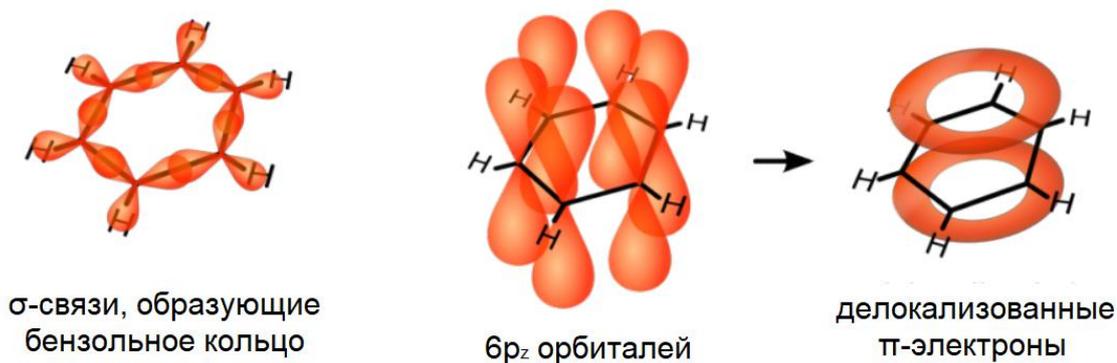


Рисунок 2.1. Иллюстрация структуры электронных орбиталей молекулы бензола ( $C_6H_6$ ).

Эти  $\pi$ -электроны могут легко возбуждаться. Модель, описывающая основные особенности механизмов возбуждений, была разработана Платтом [35] еще в 1949 году. Она является основой для более полного расчета энергетических состояний электронов, как показано на рис. 2.2. Здесь также необходимо учитывать ориентацию спина возбужденного электрона относительно неспаренного электрона в основном состоянии. Для антипараллельно ориентированных электронных спинов генерируются так называемые синглетные состояния, которые лежат над основным состоянием  $S_0$  и обозначаются  $S_1, S_2, \dots S_n$ . Возбужденные состояния с параллельной ориентацией спинов называются триплетными состояниями и обозначаются  $T_1, T_2, \dots T_n$ . Триплетные состояния всегда расположены ниже соответствующего синглетного состояния (правило Хунда), т. е. имеют более меньшую энергию. Кроме того, каждый уровень расщепляется на колебательные подуровни, например,  $S_{10}, S_{11}, S_{12}, \dots$  для первых возбужденных синглетных подуровней. В то время как колебательные уровни находятся на расстоянии  $\pm 0,1$  эВ друг от друга, расстояние между основными энергетическими уровнями составляет около 1 - 4 эВ. Верхний предел схемы ограничен энергией ионизации  $\pi$ -электронов  $I_\pi$ .

Как только молекула возбуждается в синглетное состояние или его колебательный подуровень, происходит внутренняя конверсия (а также деградация) на очень малых временных масштабах порядка  $10^{-12}$  с, т.е. безызлучательная релаксация в колебательные подуровни первого возбужденного состояния  $S_{1j}$  через столкновение с соседними молекулами. Последующая колебательная релаксация в состояние  $S_{10}$  происходит так же быстро и наблюдается другой безызлучательный переход посредством рассеивания тепла.

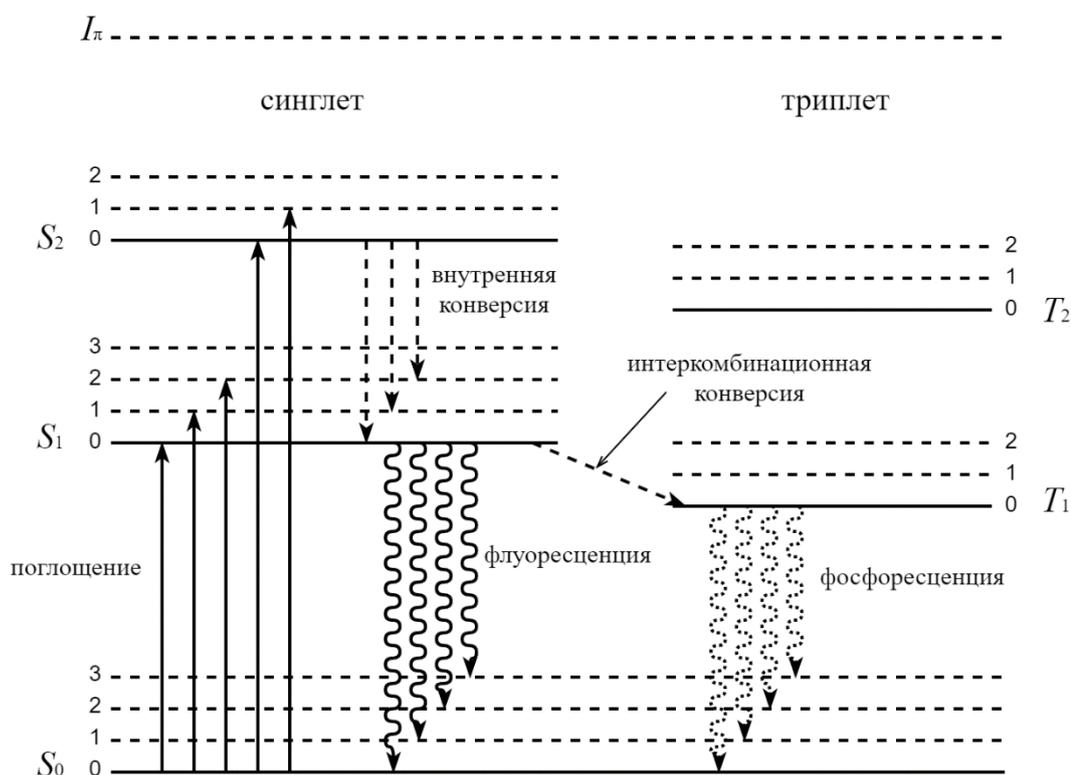


Рисунок 2.2. Энергетические уровни  $\pi$ -электронов в органической молекуле [36].

Поскольку прямое заселение триплетных состояний из синглетного состояния  $S_{0j}$  через поглощение запрещено из-за необходимого переворота спина, возможны только два косвенных перехода. Во-первых, может произойти так называемая интеркомбинационная конверсия, когда состояние  $S_{10}$  (которое всегда лежит выше) релаксирует посредством переворота спина электрона в состояние  $T_{10}$ , опять же безызлучательно. И, во-вторых, если ионизированные молекулы рекомбинируют с электронами, 75% из них переходят в триплетные состояния из-за правил отбора мультиплетности спина.

Существуют три возможных процесса снятия возбуждения уровней  $S_1$  и  $T_1$  в основное состояние: флуоресценция, фосфоресценция и задержанная флуоресценция.

Флуоресценция описывает обычный переход из состояния  $S_{10}$  в основное состояние  $S_{0j}$ , при этом происходит излучение фотонов. Поскольку

заселенность уровня  $S_{10}$  уменьшается экспоненциально, интенсивность излучаемого света может быть описана формулой

$$I(t) = \left(-I_0 e^{-\frac{t}{\tau_r}}\right) \left(I_0 e^{-\frac{t}{\tau_d}}\right), \quad (2.1)$$

где  $\tau_r$  определяет время нарастания интенсивности света, а  $\tau_d$  является мерой времени жизни состояния и для флуоресценции составляет порядка  $10^{-9}$  с. Вероятность достижения первых колебательных подуровней  $S_{0j}$  выше, поэтому излучаемый свет имеет меньшую энергию и, следовательно, большую длину волны, чем та, что потребуется для поглощения, например при переходе  $S_{00} \rightarrow S_{1j}$ . Этот эффект называется сдвигом Стокса, и поэтому органический сцинтиллятор в основном является прозрачным для собственного света.

Фосфоресценция является запрещенным переходом из состояния  $T_1$  в состояние  $S_{0j}$ , поскольку включает переворот спина электрона. Следовательно, данное снятие возбуждения сильно подавляется, что приводит к более длительным временам высвечивания вплоть до  $10^{-4}$  с или даже дольше, в зависимости от фактической молекулярной структуры. Чтобы учесть фосфоресценцию в уравнении (2.1), обычно добавляется еще один экспоненциальный член с соответствующими временами нарастания и высвечивания.

Задержанная флуоресценция объединяет в себе несколько процессов, которые происходят на временных масштабах, соответствующих фосфоресценции, не подчиняются экспоненциальному закону и обычно вносят незначительный вклад в общий световой поток. Одна из компонент возникает в результате перехода из состояния  $T_{10}$  или другого метастабильного состояния обратно в состояние  $S_{10}$ , например, в процессе столкновений с другими молекулами или если сама молекула имеет достаточно тепловой энергии, чтобы преодолеть энергетический барьер

между состояниями  $T_{10}$  и  $S_{1j}$ . В этом случае последующий переход от  $S_{10}$  к  $S_{0j}$  такой же, как и в случае нормальной флуоресценции. Поскольку энергетический барьер велик для ароматических углеводородов, здесь важен еще один эффект, так называемое образование эксимеров. Эксимеры (возбужденные димеры) образуются в результате столкновения молекул, где, по крайней мере, одна из них находится в триплетном возбужденном состоянии. Они могут термически диссоциировать на возбужденные синглетные мономеры и впоследствии возбуждение снимается переходом  $S_{10} \rightarrow S_{0j}$  [37], [38].

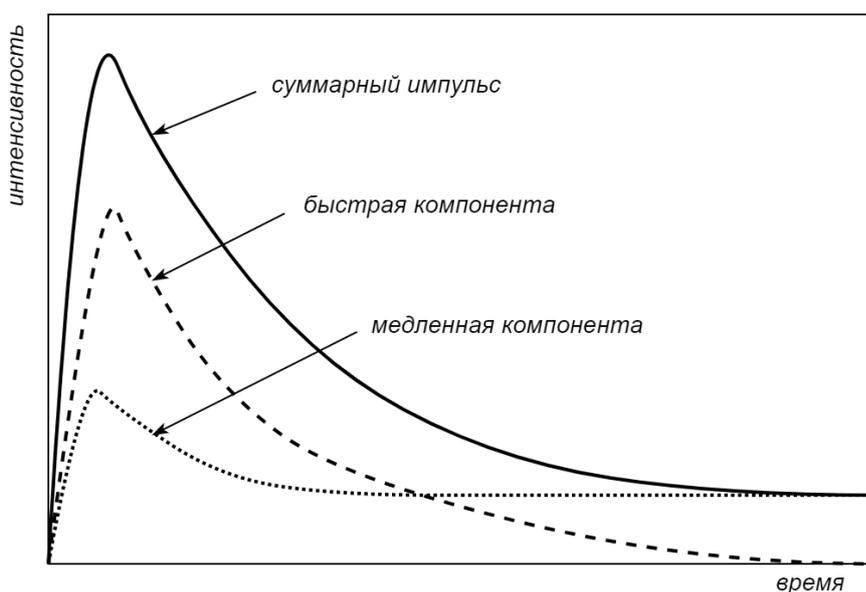


Рисунок 2.3. Форма сцинтилляционного импульса.

Одним из практических аспектов комбинации этих трех процессов изображен на схеме на рис. 2.3, поскольку он показывает, что сцинтилляционный импульс состоит в основном из двух компонент. Быстрая компонента возникает в результате прямой флуоресценции, а медленная представляет собой комбинацию фосфоресценции и задержанной флуоресценции. Поскольку вероятность рекомбинации ионизированных молекул, находящихся в триплетных состояниях, сильно повышается, соотношение между быстрой и медленной компонентами в значительной степени зависит от силы ионизации падающего излучения.

Чтобы выработать всесторонний взгляд на процессы, происходящие в органических сцинтилляторах, необходимо рассматривать не только чистые сцинтилляторы, такие как антрацен, LАВ или полистирол. Также очень важны и на самом деле широко используются системы с вторичными сцинтилляционными добавками, так называемые бинарные системы. Так же в качестве добавки используют третий спектросмещающий компонент («шифтер»). Эти составные сцинтилляторы оказываются полезными главным образом по следующим двум причинам.

Во-первых, даже при том, что во всех сцинтилляторах присутствует сдвиг Стокса и, следовательно, они в некоторой степени прозрачны для своего собственного света, часто наблюдается перекрытие спектров излучения и поглощения. Этот эффект самопоглощения может значительно снизить общую эффективность сцинтиллятора. При добавлении в смесь другой совместимой сцинтилляционной добавки потери света могут быть уменьшены. В идеальном случае эти первичные добавки очень эффективно поглощают излучение основного сцинтиллятора и излучают свет на более длинных волнах. Обычно в качестве основного сцинтиллятора или растворителя используют 1,2,4-триметилбензол, также известный как псевдокумол (РС), и LАВ. Они могут быть смешаны с 2,5-дифенилоксазолом (РРО) и 1,4-ди-[2-(5-фенилоксазолил)]-бензолом (РОРОР) в качестве сцинтилляционных добавок.

И, во-вторых, смещение конечной излучаемой длины волны может иметь другие положительные эффекты, такие как улучшение соответствия чувствительности фотоумножителя, отражательной способности или прозрачности других материалов детектора. Это в основном осуществляется за счет добавления вторичной спектросмещающей добавки («шифтера»), например, 1,4-бис(2-метилстирил)бензола (bis-MSB).

В такой жидкосцинтилляционной системе, состоящей из растворителя и двух добавок, происходят различные процессы. Первичный процесс передачи энергии происходит между молекулами растворителя. Теория,

описывающая механизмы передачи энергии, была предложена Бирксом [39], [40] и основана на образовании эксимеров. Возбужденная молекула растворителя  $X^*$  взаимодействует с невозбужденной соседней молекулой растворителя  $X$  и образует эксимер:  $X^* + X \rightarrow X^*X$ .

Вероятность данного процесса зависит от взаимного расположения двух молекул. Эксимеры образуются, когда молекулы почти параллельны друг другу. Вероятность образования эксимеров уменьшается с увеличением угла между молекулами. Эксимер очень короткоживущий и диссоциирует за время порядка наносекунд. Когда он распадается, энергия возбуждения может передаваться от возбужденной молекулы к невозбужденной. Процесс переноса энергии можно описать следующей реакцией:  $X^* + X \rightarrow X + X^*$ .

Этот процесс повторяется со следующей соседней молекулой, и энергия возбуждения эффективно передается через среду. Передача энергии между молекулами растворителя осуществляется за время, которое очень мало по сравнению со временем высвечивания сцинтиллятора, на расстоянии порядка нескольких диаметров молекулы.

Процессы переноса энергии растворитель-растворитель являются моноэнергетическими. Возбужденное состояние, ответственное за обмен энергией, наиболее вероятно является первым возбужденным синглетным состоянием. Перенос энергии происходит между одинаковыми возбужденными состояниями в двух молекулах растворителя. Упрощенная схема механизма показана на рис. 2.4, где изображены только основное состояние  $S_0$  и возбужденные состояния  $S_1$  и  $S_2$ .

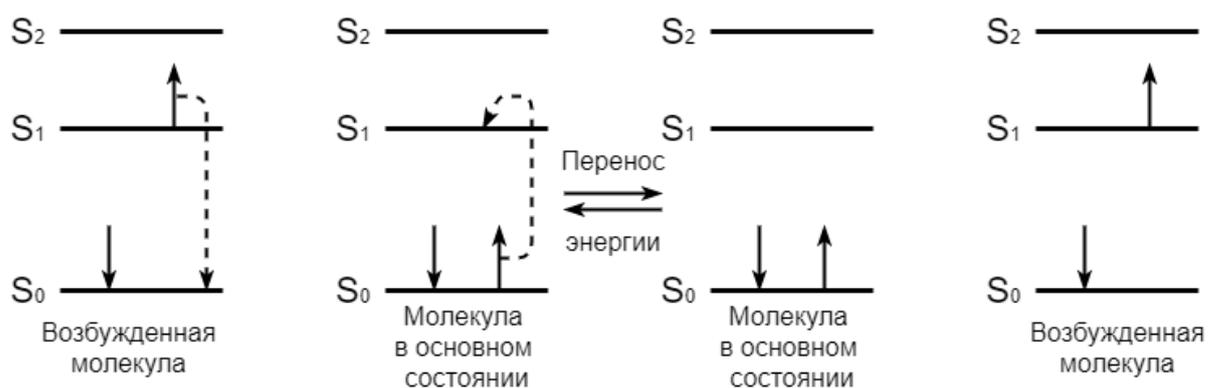


Рисунок 2.4. Упрощенная диаграмма, показывающая перенос энергии между двумя молекулами растворителя [41].

По мере того, как энергия будет передаваться от одной молекулы растворителя к другой, она будет перемещаться по всему объему. Сцинтилляционные добавки обычно присутствуют в относительно низких концентрациях 3-10 г/л, и маловероятно, что возбужденная молекула растворителя будет иметь прямой контакт с молекулой растворенного вещества. Однако даже при таких низких концентрациях растворенного вещества энергия количественно переносится от возбужденных молекул растворителя к молекулам растворенного вещества [42], [43].

Передача энергии от растворителя к растворенному веществу происходит безызлучательно: никакие фотоны не испускаются молекулой растворителя и впоследствии не поглощаются молекулами растворенного вещества. Передача энергии происходит за время  $10^{-11}$  с, тогда как время высвечивания растворителя составляет порядка десятков наносекунд.

Передача энергии в данном случае происходит в процессе резонансного переноса и связана с диполь-дипольными взаимодействиями. Теория взаимодействия диполей двух молекул была разработана Фёрстером в нескольких статьях [44]. Фёрстер показал, что сила диполь-дипольного взаимодействия связана со степенью перекрытия спектра излучения молекулы-донора (растворителя) и спектра поглощения молекулы-акцептора

(растворенного вещества). Кроме того, расстояние, на котором будет происходить перенос, связано с коэффициентом экстинкции молекул акцепторов в области перекрытия двух спектров (испускание донора и поглощение акцептора).

Фёрстер определил критическое расстояние переноса  $R_0$  как расстояние между акцептором и донорной молекулой, при котором вероятность резонансного переноса равна вероятности всех других процессов выделения энергии донорной молекулой (испускание фотонов, гашение, безызлучательная дезактивация и т. д.) [45]. Скорость переноса энергии  $k$ , когда донорная и акцепторная молекулы разделены расстоянием  $R$ , определяется как

$$k = \frac{1}{\tau_0} \left( \frac{R_0}{R} \right)^6 \quad (2.2)$$

и  $R_0$  можно рассчитать по формуле

$$R_0^6 = \frac{(9000 \ln 10) K^2}{128 \pi^5 n^4 N_A} \int_0^{\infty} F_D(\bar{\nu}) \epsilon_A(\bar{\nu}) \frac{d\bar{\nu}}{\bar{\nu}^4} \quad (2.3)$$

где  $\tau_0$  – время жизни возбужденного состояния молекулы-донора,  $K$  – коэффициент взаимной ориентации молекул,  $n$  – показатель преломления растворителя,  $N_A$  – число Авогадро,  $F_D(\bar{\nu})$  – спектр излучения молекулы-донора, а  $\epsilon_A(\bar{\nu})$  – молярный коэффициент экстинкции молекулы-акцептора.

Для большинства молекул диполь-дипольное взаимодействие происходит на межмолекулярных расстояниях, которые являются большими по сравнению с расстоянием столкновения. Диаметр большинства органических молекул составляет около 6 Å. Две молекулы, которые просто соприкасаются друг с другом, будут иметь расстояние столкновения, равное

сумме радиусов каждой молекулы, или около 6 Å. Радиус Фёрстера для органических веществ, которые используются в качестве сцинтилляторов, составляет порядка 20-60 Å.

В жидких сцинтилляторах энергия возбуждения проявляется в форме кинетической энергии ионизирующей частицы. По существу, все первичные возбуждения приводят к образованию возбужденных молекул растворителя, который представляет собой основу сцинтиллятора. Далее энергия мигрирует от одной молекулы растворителя к другой, пока эта энергия не будет захвачена молекулой первичной добавки. Если имеется вторичная добавка («шифтер»), энергия впоследствии передается от первичной добавки к вторичной. Наконец, энергия выделяется в виде фотонов флуоресценции. На рис. 2.5 показана упрощенная схема множества процессов, происходящих в трехкомпонентном жидком органическом сцинтиляторе.

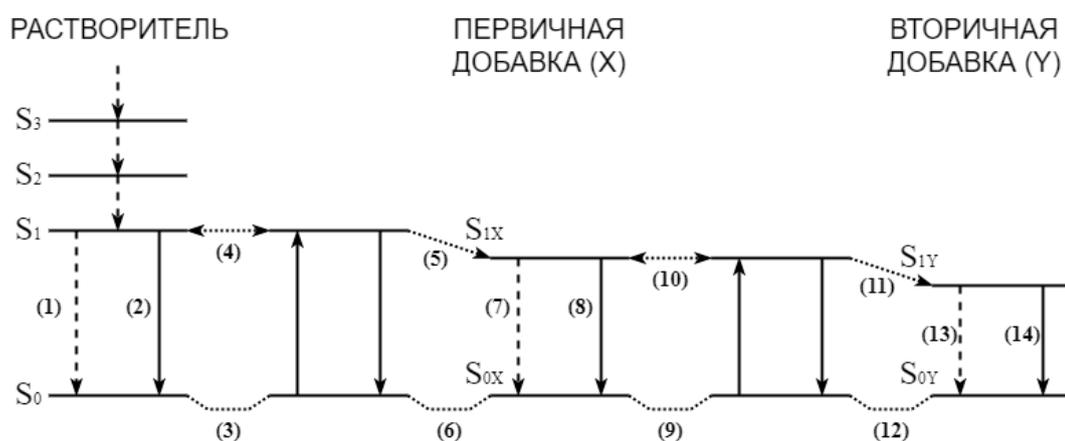


Рисунок 2.5. Процессы передачи энергии в трехкомпонентном жидком органическом сцинтиляторе. (1, 13) Внутреннее гашение, (2, 8, 14) испускание фотонов, (3, 6, 9, 12) поглощение и переизлучение фотонов, (4, 10) безызлучательная миграция энергии, (5) диполь-дипольное взаимодействие, безызлучательная передача энергии от растворителя к первичной добавке, (7) внешнее гашение, (11) диполь-дипольное взаимодействие, безызлучательная передача энергии от первичной добавки к вторичной [41].

## 2.2. Световыход органических сцинтилляторов

Только небольшая доля кинетической энергии, которую теряет заряженная частица в веществе, преобразуется в энергию флуоресценции. Остальная часть энергии рассеивается без излучения света, в основном в виде колебаний решетки или тепла. Доля энергии частиц, которая преобразуется в сцинтилляционный свет (эффективность сцинтилляции), зависит как от типа частицы, так и от ее энергии. В некоторых случаях эффективность сцинтилляции может быть независима от энергии, что приводит к линейной зависимости световыхода от начальной энергии.

Для органических сцинтилляторов, таких как антрацен, стильбен и многих коммерчески доступных жидких и пластиковых сцинтилляторов, отклик на электроны линеен для энергий частиц больше примерно 125 кэВ [46]. Отклик на тяжелые заряженные частицы, такие как протоны или альфа-частицы, всегда меньше для эквивалентных энергий и становится нелинейным при более высоких начальных энергиях. В качестве примера на рис. 2.6 показан сцинтилляционный отклик типичного пластикового сцинтиллятора. При энергиях в несколько сотен кэВ отклик на протоны в 10 раз меньше по сравнению со световыходом электронов с эквивалентной энергией. При более высоких энергиях расхождение меньше, но отклик от протона всегда ниже отклика от электрона.

Отклик органических сцинтилляторов на заряженные частицы может быть лучше всего описан соотношением между  $dL/dx$ , энергией флуоресценции, излучаемой на единицу длины пути (или дифференциальным световыходом), и  $dE/dx$ , плотностью ионизации для заряженной частицы. Широко используемое соотношение, впервые предложенное Бирксом [38], основано на предположении, что высокая плотность ионизации вдоль трека частицы приводит к гашению от поврежденных молекул и снижению эффективности сцинтилляции.

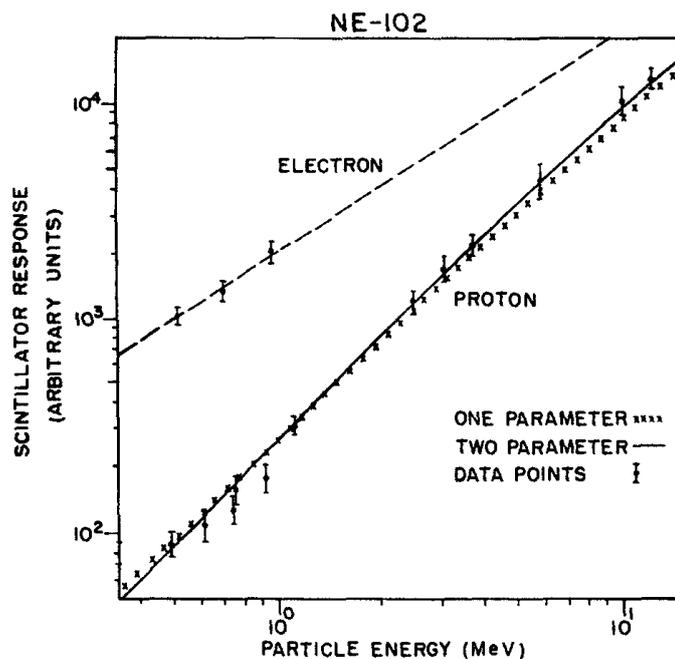


Рисунок 2.6. Зависимость световыхода пластикового сцинтиллятора от энергии и типа ионизирующего излучения [47].

Если предположить, что плотность поврежденных молекул вдоль трека частицы прямо пропорциональна плотности ионизации, мы можем представить их плотность как  $B(dE/dx)$ , где  $B$  - константа пропорциональности. Биркс предположил, что некоторая доля  $k$  из них приведет к гашению. Еще одно предположение состоит в том, что в отсутствие гашения световыход пропорционален плотности ионизации:

$$\frac{dL}{dx} = S \frac{dE}{dx} \tag{2.4}$$

где  $S$  – эффективность сцинтилляции. Если учесть вероятность гашения, формула (2.4) примет вид

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \tag{2.5}$$

Уравнение (2.5) обычно называют формулой Биркса. Произведение  $kB$  называется коэффициентом Биркса и рассматривается как регулируемый параметр, характеризующий сцинтиллятор и не зависящий от типа и энергии частицы [48].

При возбуждении быстрыми электронами (напрямую или от гамма-излучения)  $dE/dx$  мала для достаточно больших значений  $E$  и формула Биркса принимает вид

$$\left. \frac{dL}{dx} \right|_e = S \frac{dE}{dx} \quad (2.6)$$

или прирост световыхода на единицу энергии является постоянным

$$\left. \frac{dL}{dE} \right|_e = S \quad (2.7)$$

Это режим, в котором световыход

$$L \equiv \int_0^E \frac{dL}{dE} dE = SE \quad (2.8)$$

линейно связан с начальной энергией частицы  $E$ .

С другой стороны, для альфа-частицы  $dE/dx$  очень велика, так что насыщение происходит вдоль трека, и формула Биркса принимает следующий вид

$$\left. \frac{dL}{dx} \right|_\alpha = \frac{S}{kB} \quad (2.9)$$

Поэтому соответствующее значение  $kB$  можно определить, подставив  $S$  из выражения (2.7) в (2.9):

$$kB = \left. \frac{dL}{dE} \right|_e / \left. \frac{dL}{dx} \right|_\alpha \quad (2.10)$$

Отношение альфа-бета является широко используемым параметром для описания разницы световыхода органического сцинтиллятора для электронов и заряженных частиц одинаковой энергии. Световыход для электронов всегда больше, чем для заряженной частицы с той же кинетической энергией, поэтому отношение альфа-бета всегда меньше 1.

### **2.3. Измерительные стенды для исследования параметров жидких сцинтилляторов**

Для изучения параметров жидких органических сцинтилляторов были проведены лабораторные эксперименты с использованием образцов, приготовленных на основе ароматических растворителей с добавлением сцинтилляционных добавок.

Основными параметрами жидких сцинтилляторов, которые были исследованы в данной работе, являются световыход и кинетика сцинтилляционного свечения.

Световыход является важнейшим параметром для крупномасштабных сцинтилляционных детекторов, поскольку сцинтилляционные фотоны должны пройти большое расстояние, прежде чем достигнуть фотоэлектронных умножителей. Более высокий световой поток позволяет получить больше информации о событии, зарегистрированном детектором.

Время высвечивания сцинтиллятора оказывает влияние на временное разрешение детектора и эффективность регистрации совпадений.

Для измерения световыхода жидких сцинтилляторов был разработан измерительный стенд, схема которого изображена на рис. 2.7. Исследуемый сцинтиллятор наливается в кварцевую кювету К цилиндрической формы длиной 10 и диаметром 20 мм. Кювета просматривается фотоэлектронным умножителем с высокой квантовой эффективностью XP5301В производства фирмы Photonis). Оптический контакт между входным стеклом фотоумножителя и торцом кюветы осуществляется при помощи оптической смазки. Анодный сигнал фотоумножителя поступает на вход линейного разветвителя ЛР (LeCroy 428А), где он разделяется на два сигнала. Один из сигналов через кабельную линию задержки ЛЗ поступает на вход зарядовоцифрового преобразователя ЗЦП (LeCroy 2249W), второй подается на дискриминатор Д (LeCroy 621BL). Выходной сигнал с дискриминатора используется в качестве строба и подается на соответствующий вход ЗЦП. Результаты преобразования ЗЦП считываются через крейт-контроллер КАМАК (КК-009), на рисунке не показан, персональным компьютером ПК. Кювета со сцинтиллятором облучалась гамма-квантами с энергией ~ 662 кэВ от радиоактивного источника  $^{137}\text{Cs}$ . В процессе измерения всех образцов сцинтилляторов фиксируется постоянная величина порога дискриминатора и контролируется коэффициент усиления фотоумножителя.

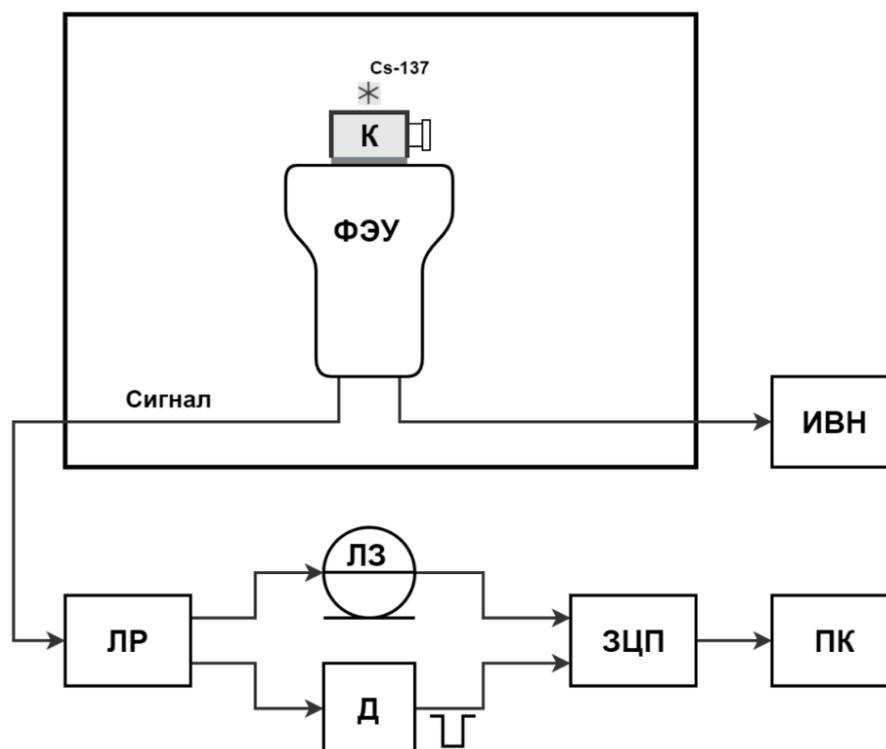


Рисунок 2.7. Функциональная схема стенда для измерения световыхода жидких сцинтилляторов. К – кювета с исследуемым образцом жидкого сцинтиллятора; ФЭУ – фотоумножитель XP5301В; ЛР – линейный разветвитель LeCroy 428А; ЛЗ – кабельная линия задержки; Д – дискриминатор импульсов LeCroy 621ВL; ЗЦП – зарядовоцифровой преобразователь LeCroy 2249W; ИВН – источник высоковольтного напряжения питания фотоумножителя; Cs-137 – источник гамма-квантов  $^{137}\text{Cs}$ ; ПК – персональный компьютер.

Для изучения кинетики свечения жидких сцинтилляторов на основе LАВ был оборудован измерительный стенд, функциональная схема которого показана на рис. 2.8. Измерения проводились методом счета коррелированных во времени фотонов [49], [50]. Исследуемый сцинтиллятор наливается в кварцевую кювету К цилиндрической формы длиной 10 и диаметром 20 мм. Кювета с одного торца просматривается быстродействующим фотоэлектронным умножителем ФЭУ1 (R6427 производства фирмы Hamamatsu Photonics). Остальные грани кюветы

обмотаны белой тефлоновой лентой. Оптический контакт между входным стеклом фотоумножителя и торцом кюветы осуществляется при помощи оптической смазки. Анодный сигнал фотоумножителя ФЭУ1 через быстродействующий усилитель У1 (LeCroy 612AM) поступает на вход дискриминатора Д1 (LeCroy 621BL), выходной сигнал которого подается на вход СТАРТ времяцифрового преобразователя ВЦП (БПТ-12А1) с максимальным диапазоном измеряемых временных интервалов 5 мкс и шириной канала 75 пс. Уровень дискриминации сигналов в Д1 устанавливается равным  $\sim 3Q_1$ , где  $Q_1$  – средний заряд однофотозлектронного импульса фотоумножителя ФЭУ1. Противоположный торец кюветы со сцинтиллятором просматривается быстродействующим фотоумножителем ФЭУ2 (XP3112В/РА производства фирмы Photonis), при этом в обмотке кюветы сделано небольшое отверстие. Расстояние между торцом кюветы и входным окном этого фотоумножителя, а также диаметр отверстия регулируются так, чтобы достичь однофотозлектронного уровня засветки фотокатода фотоумножителя ФЭУ2. Выходной сигнал ФЭУ2 через усилитель У2 (LeCroy 612А) подается на вход дискриминатора Д2 (LeCroy 621BL). Уровень дискриминации сигналов в Д2 устанавливается равным  $\sim 0,25Q_2$ , где  $Q_2$  – средний заряд однофотозлектронного импульса фотоумножителя ФЭУ2, чтобы с высокой эффективностью регистрировать однофотозлектронные импульсы. Выходной сигнал дискриминатора Д2 через линию задержки ЛЗ поступает на вход СТОП времяцифрового преобразователя ВЦП. Результаты преобразования ВЦП считываются через крейт-контроллер КАМАК (КК-009), на рисунке не показан, персональным компьютером ПК. Кювета с сцинтиллятором облучалась гамма-квантами с энергией  $\sim 662$  кэВ от источника  $^{137}\text{Cs}$ .

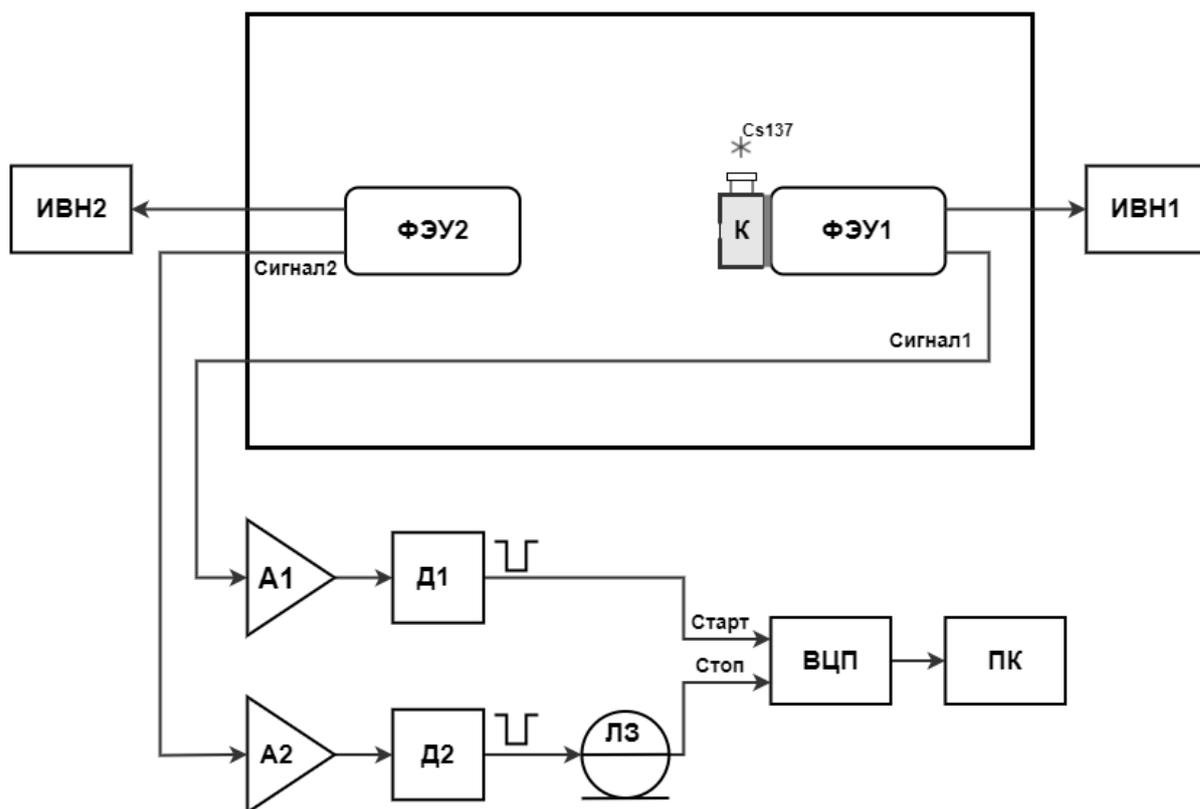


Рисунок 2.8. Функциональная схема измерительного стенда для исследования кинетики свечения жидких сцинтилляторов. К – кювета с исследуемым образцом; Cs137 – источник гамма-квантов  $^{137}\text{Cs}$ ; ФЭУ1 – фотоумножитель R6427; ФЭУ2 – фотоумножитель XR3112B/PA; ИВН1 – высоковольтный источник питания HARSHAW NV-25A; ИВН2 – высоковольтный источник питания ORTEC 478; А1 и А2 – быстродействующие усилители LeCroy 612A; Д1 и Д2 – дискриминаторы импульсов LeCroy 621BL; ЛЗ- линия задержки; ВЦП – времяцифровой преобразователь БПТ12А1; ПК – персональный компьютер.

#### 2.4. Оптимизация состава жидких органических сцинтилляторов

Ароматические растворители являются основой любого жидкого органического сцинтиллятора. К качественным растворителям предъявляют ряд ключевых требований. Они должны хорошо растворять

сцинтилляционные добавки, эффективно передавать энергию возбуждения молекулам сцинтилляционной добавки, быть прозрачными для сцинтилляционного света и обладать химической стабильностью.

Традиционно наиболее распространенным растворителем для сцинтилляторов был 1,2,4-триметилбензол (псевдокумол, РС), который характеризуется высоким световыходом. Недостатком данного растворителя является высокая токсичность и низкая температура вспышки. В настоящее время по соображениям безопасности псевдокумол (РС) почти не используется, и все большее применение находят растворители с высокой температурой вспышки, такие как линейный алкилбензол (LAV), фенилксилилэтан (PXE) и диизопропилнафталин (DIN). В таблице 2.1 представлены основные свойства представленных растворителей.

Таблица 2.1. Основные свойства ароматических растворителей.

Растворитель	LAV	PXE	DIN	PC
Формула	$C_{10-15}H_{21-31}$	$C_{16}H_{18}$	$C_{16}H_{20}$	$C_9H_{12}$
Плотность, кг/м <sup>3</sup>	863	986	949	876
Молекулярная масса, г/моль	239-243	210,2	212,33	120,19
Показатель преломления	1,484	1,565	1,561	1,503
Температура вспышки, °С	140	160	142,5	48

Из всех представленных выше растворителей в настоящее время все большее распространение получает линейный алкилбензол (LAV). LAV в нормальных условиях представляет собой бесцветную жидкость, почти не имеющую запаха, с плотностью 0,86 кг/л. Молекула LAV имеет одно бензольное кольцо и присоединенную к нему прямую цепочку  $C_{10-15}H_{21-31}$ . Количество атомов углерода варьируется от 10 до 15 в зависимости от производителя. Несмотря

на то, что LAB был известен и использовался в качестве растворителя уже в первые десятилетия физики сцинтилляторов, он привлек к себе большое внимания лишь в последние годы. LAB имеет относительно высокую температуру вспышки около 140°C, обладает низкой токсичностью и экологически безопасен. Он легкодоступен и довольно дешев, поскольку является компонентом стандартного процесса производства моющих средств в химической промышленности. Кроме того, он химически совместим с акрилом, что делает его пригодным для жидкосцинтилляционных детекторов больших объемов.

DIN также можно считать хорошим растворителем, поскольку он совместим с акрилом, имеет высокий световыход и его плотность сравнима с плотностью воды. Однако, по сравнению с LAB, DIN имеет меньшую длину затухания [51], что является критичным для крупномасштабных детекторов. PHE также обладает хорошими сцинтилляционными свойствами, но несовместим с акрилом [52]. По сравнению с LAB, никакая комбинация растворителей на данный момент не дает достаточных преимуществ, чтобы оправдать повышенную сложность состава сцинтиллятора.

Для полного понимания и отработки методов измерения сцинтилляционных параметров, используемых в данной работе, были подробно исследованы образцы сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола, а также других растворителей (DIN, PC), и сцинтилляционной добавки PPO (2,5-дефинилоксазол).

Первичная сцинтилляционная добавка PPO, уже давно зарекомендовала себя в крупномасштабных жидкосцинтилляционных экспериментах. Преимуществами PPO являются хорошая сцинтилляционная эффективность (квантовый выход) при умеренной концентрации, хорошая растворимость во многих органических растворителях, относительно низкая стоимость и химическая стабильность.

На рис. 2.9 представлены измеренные зарядовые энергетические спектры сцинтилляторов на основе LAB с различными концентрациями добавки PPO. На основе этих данных были получены значения световых выходов в относительных единицах и построена зависимость от концентрации PPO, рис. 2.10.

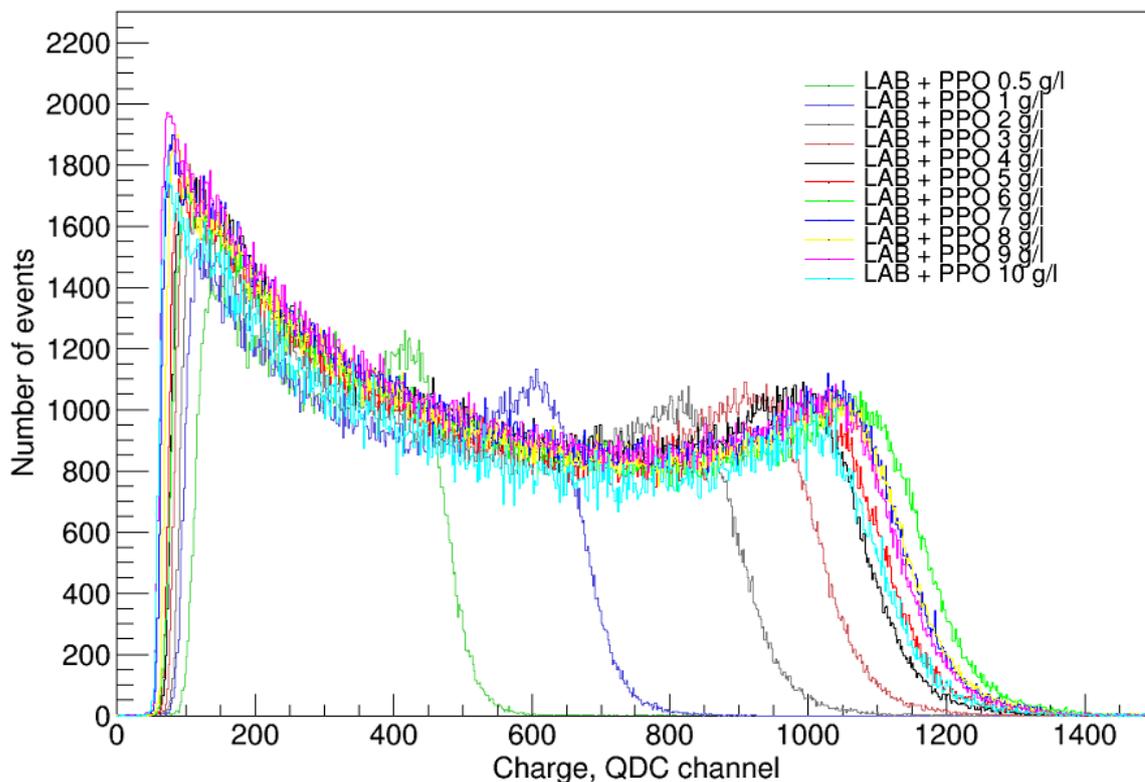


Рисунок 2.9. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе LAB и PPO гамма-квантами с энергией 662 кэВ от источника  $^{137}\text{Cs}$ .

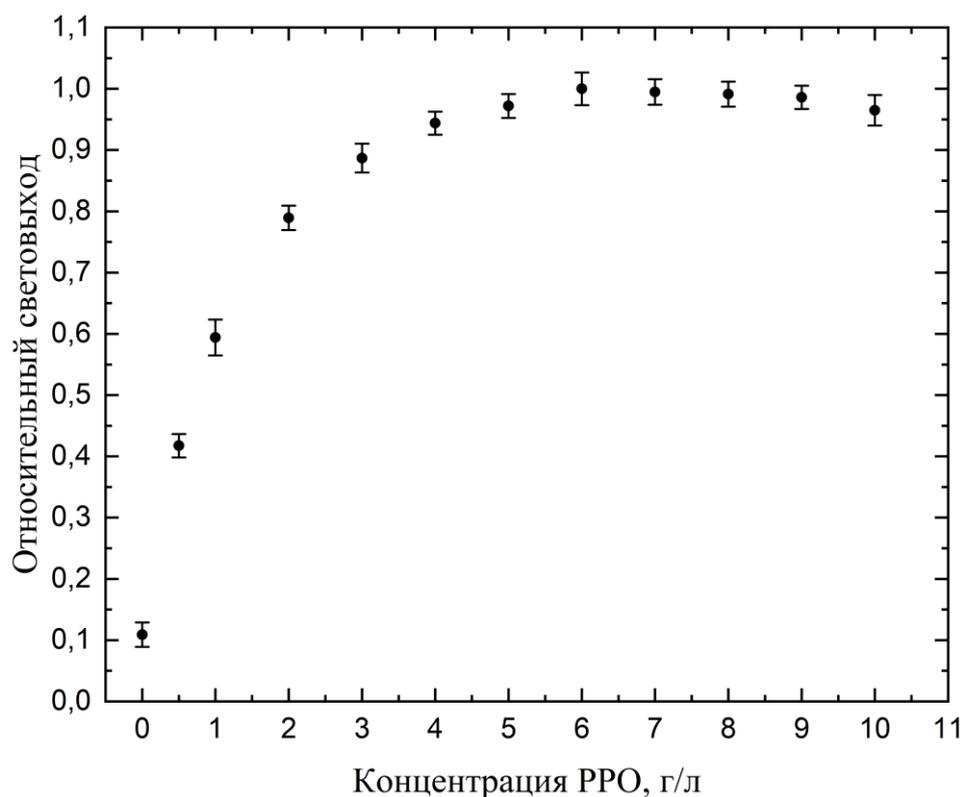


Рисунок 2.10. Зависимость относительного световыхода сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

Из полученных результатов можно сделать вывод, что при концентрации PPO равной 6 г/л световыход достигает максимального значения.

На рис. 2.11 представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционной добавки PPO, черным показана кинетика свечения чистого линейного алкилбензола без сцинтиллирующих добавок. Для каждого спектра были выделены три компонента с постоянными времени высвечивания  $\tau_1$ ,  $\tau_2$  и  $\tau_3$ .

На рис. 2.12 показана зависимость самой быстрой компоненты с постоянной времени  $\tau_1$  от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

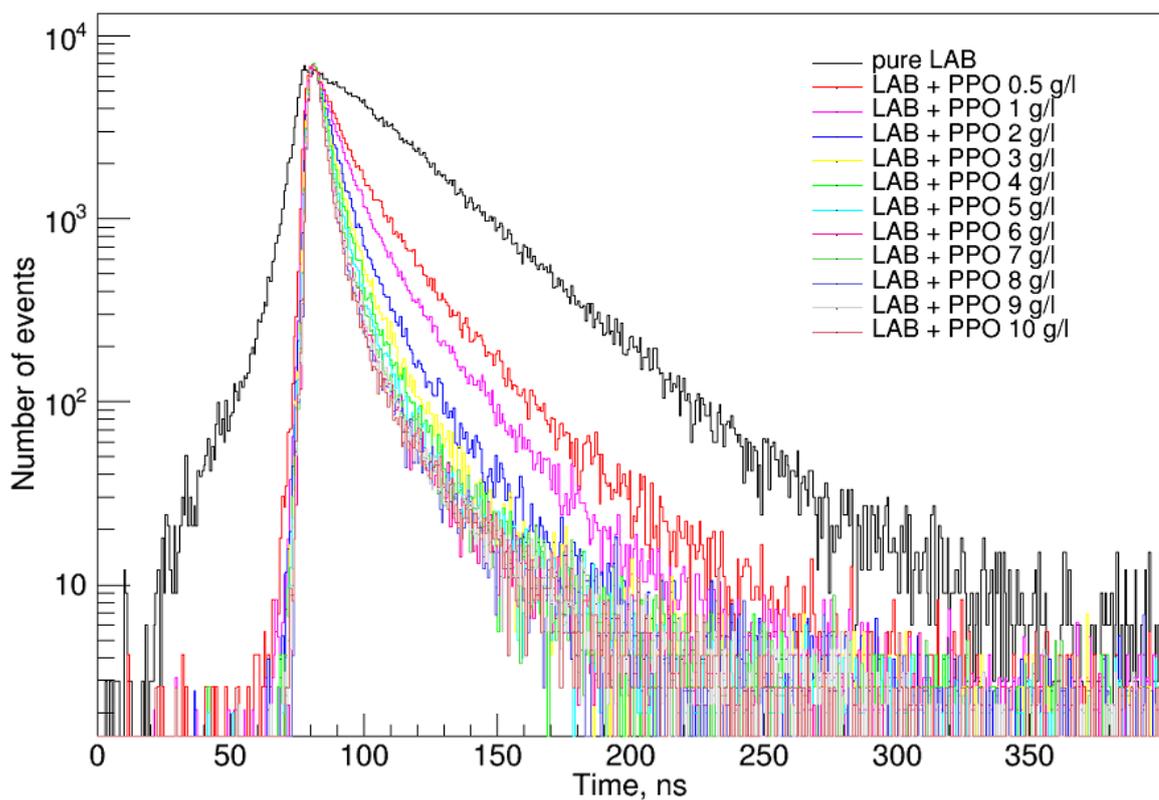


Рисунок 2.11. Кинетика сцинтилляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционной добавки PPO при облучении гамма-квантами с энергией 662 кэВ от источника  $^{137}\text{Cs}$ . Черным цветом выделена кинетика свечения чистого линейного алкилбензола без сцинтиллирующих добавок.

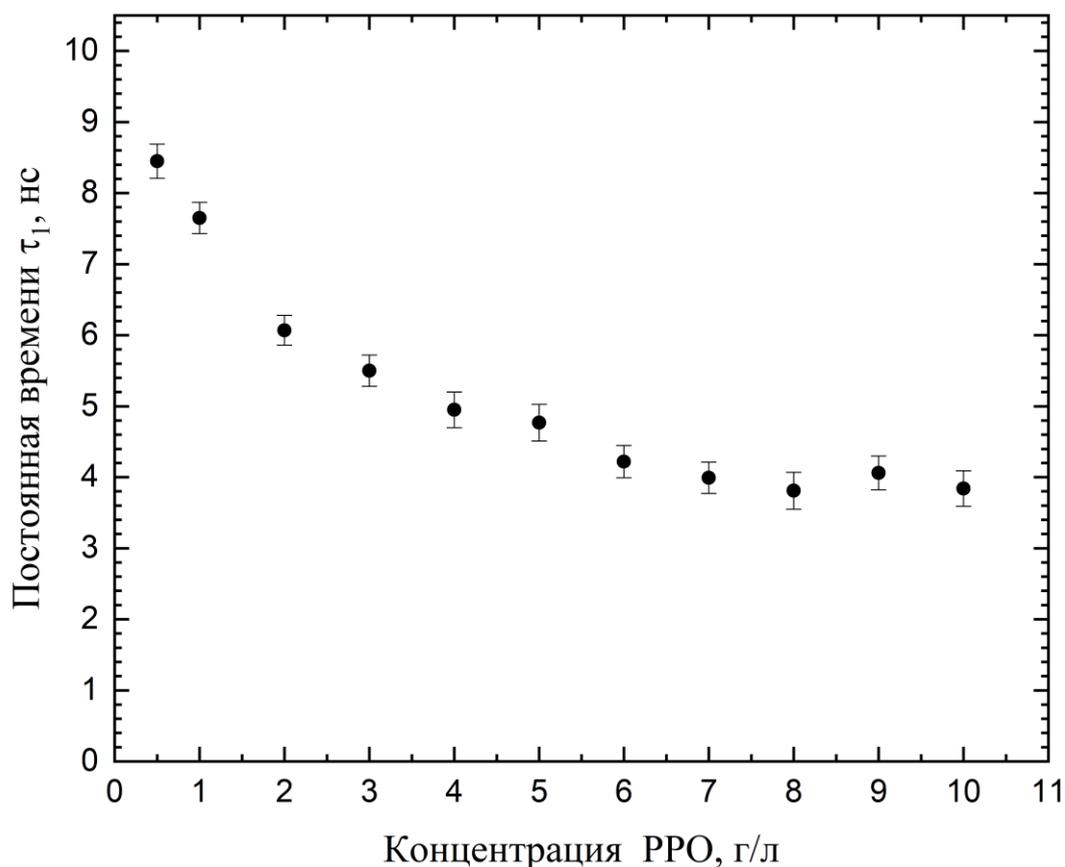


Рисунок 2.12. Зависимость постоянной времени  $\tau_1$  быстрой компоненты сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

В рамках диссертационного исследования также были измерены параметры жидкого сцинтиллятора на основе диизопропилнафталина (DIN) с добавлением PPO.

На рис. 2.13 представлены измеренные зарядовые энергетические спектры сцинтилляторов на основе DIN с различными концентрациями добавки PPO. На основе этих данных были получены значения световых выхода в относительных единицах в зависимости от концентрации PPO, рис. 2.14.

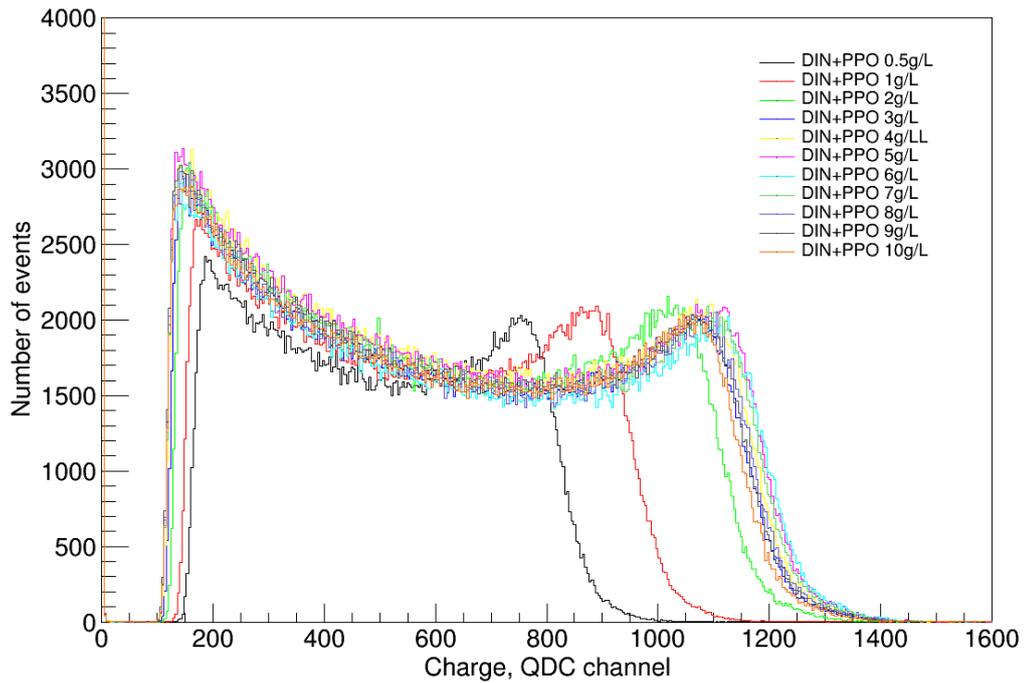


Рисунок 2.13. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе DIN и PPO гамма-квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ).

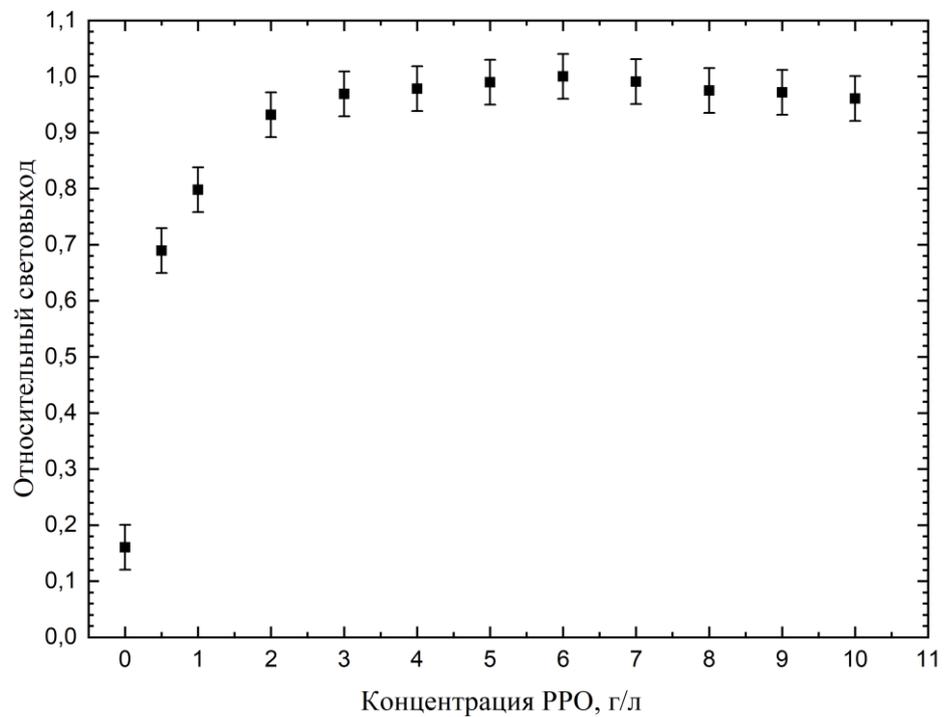


Рисунок 2.14. Зависимость относительного световыхода сцинтиллятора на основе DIN от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

Как видно из графика, представленного на рис. 2.14, концентрация PPO, при которой световыход для сцинтиллятора на основе DIN достигает максимального значения, составляет 4 г/л.

На рис. 2.15 представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе DIN и сцинтилляционной добавки PPO. Для чистого DIN без сцинтилляционной добавки PPO время высвечивания составило  $\tau_1 \sim 25$  нс. Для сцинтиллятора DIN+PPO 2 г/л основная быстрая компонента имеет время  $\tau_1 \sim 5$  нс. На рис. 2.16 показана зависимость самой быстрой компоненты с постоянной времени  $\tau_1$  для сцинтиллятора на основе DIN от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

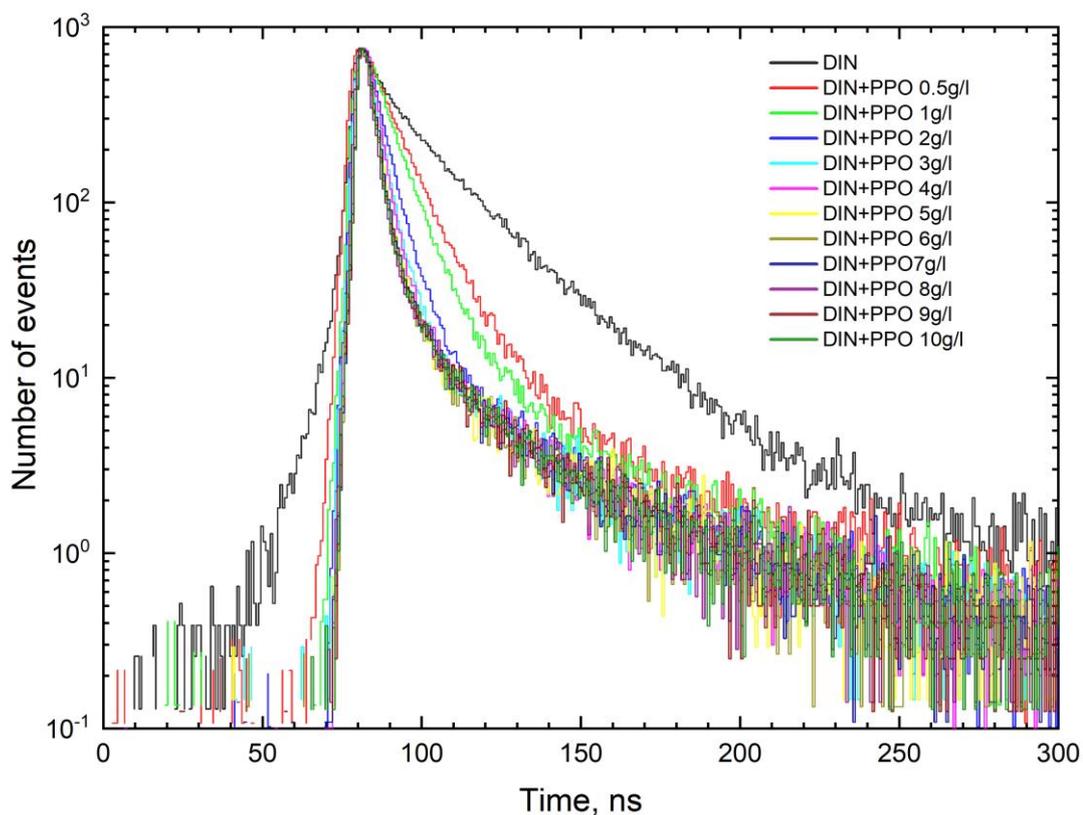


Рисунок 2.15. Кинетика сцинтилляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе DIN и сцинтилляционной добавки PPO. Черным цветом выделена кинетика свечения чистого DIN.

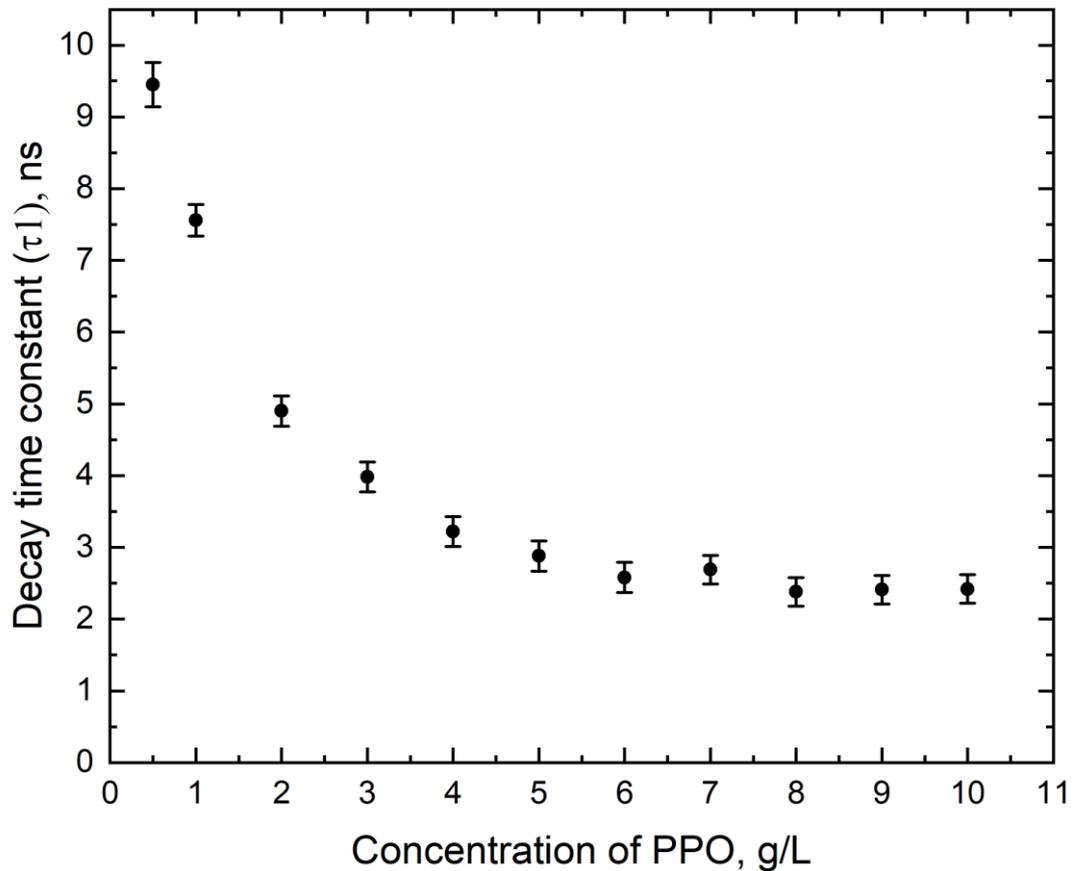


Рисунок 2.16. Зависимость постоянной времени  $\tau_1$  сцинтиллятора на основе DIN от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

Также нами было проведено сравнительное измерение световых выходов сцинтилляторов на основе растворителей LAB, DIN и псевдокумола (PC) с добавлением 1,5 г/л PPO. На рис. 2.17 представлены измеренные зарядовые энергетические спектры трех образцов сцинтилляторов на основе LAB, DIN и псевдокумола и 1,5 г/л PPO. Образец сцинтиллятора на основе PC и 1,5 г/л PPO использовался в эксперименте Vorexino.

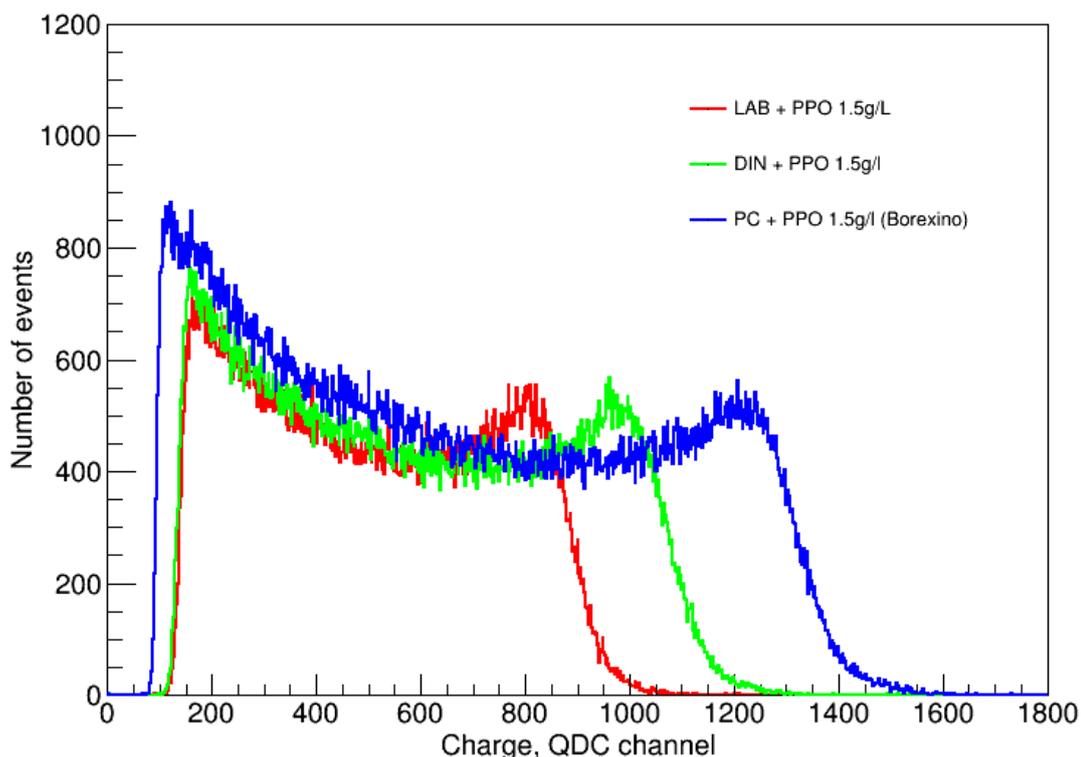


Рисунок 2.17. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC гамма-квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ).

В таблице 2.2 приведены результаты сравнения световых выходов сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC с добавлением 1,5 г/л PPO. На основании полученных результатов можно сделать вывод, что сцинтилляторы, в которых в качестве растворителя используются DIN и PC, имеют больший световой выход, чем сцинтиллятор на основе LAB при одной и той же концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

Таблица 2.2. Относительный световой выход сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC с добавлением PPO

Образец сцинтиллятора	Световой выход, отн. ед.
LAB + PPO 1,5 г/л	1
DIN + PPO 1,5 г/л	1,2
PC + PPO 1,5 г/л	1,49

В некоторых случаях может потребоваться изменить определенные свойства жидких сцинтилляторов, такие как световой выход, количество протонов, длину затухания или плотность, чтобы получить подходящий для конкретной задачи сцинтиллятор. Чтобы изменить свойства сцинтиллятора, его можно разбавить минеральным маслом, которое не является сцинтиллятором, но обладает выдающимися оптическими свойствами. Некоторые даже неочищенные минеральные масла имеют длину затухания от 9 до 12 м [53]. Кроме того, добавление минерального масла приводит к изменению соотношения между молекулами углерода и водорода в сцинтилляторе, и, следовательно, увеличивается количество возможных мишеней для обратного  $\beta$ -распада.

Для исследований нами были использованы додекан ( $C_{12}H_{26}$ ) и жидкий парафин (C14-C20 н-парафин). Были приготовлены образцы сцинтилляторов с различным соотношением LAB и минерального масла. При этом в каждом образце концентрация сцинтилляционной добавки PPO была фиксирована и составила 6 г/л.

На рис. 2.18 показаны измеренные зарядовые спектры жидких сцинтилляторов на основе LAB и PPO с добавлением минерального масла. На рис. 2.19 представлен относительный световыход в зависимости от соотношения LAB и минерального масла в сцинтилляционном растворе.

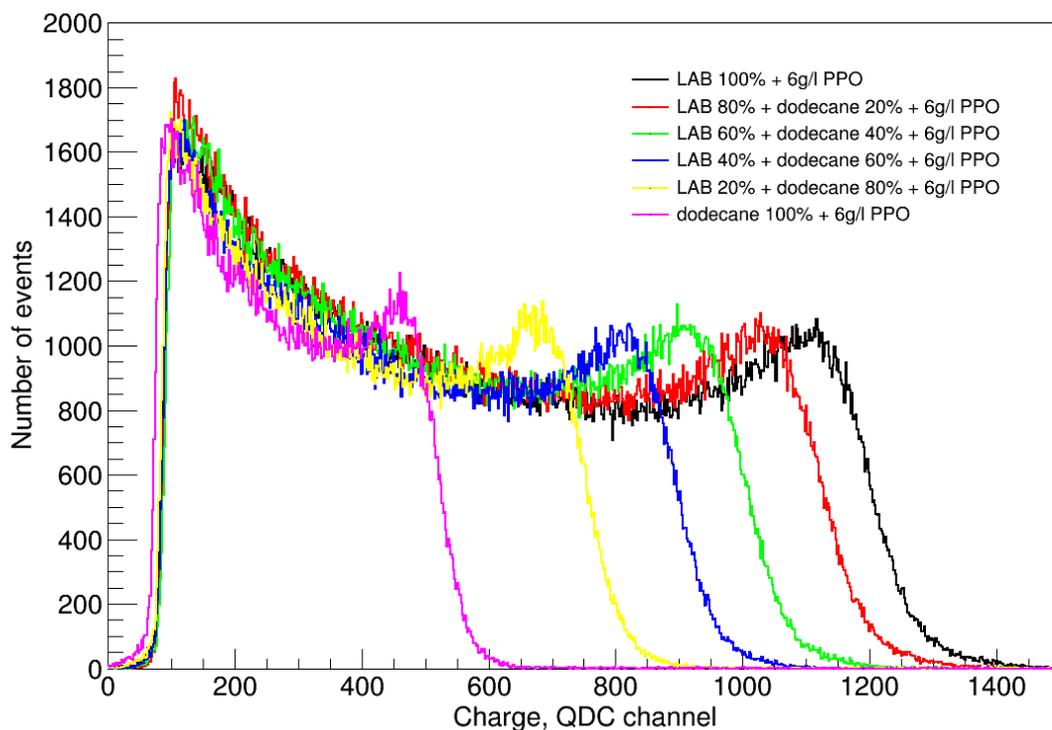


Рисунок 2.18. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе LAB и PPO с добавлением минерального масла (додекана) гамма-квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ) для разных долей LAB в сцинтилляторе. Концентрация PPO составляет 6 г/л для всех случаев.

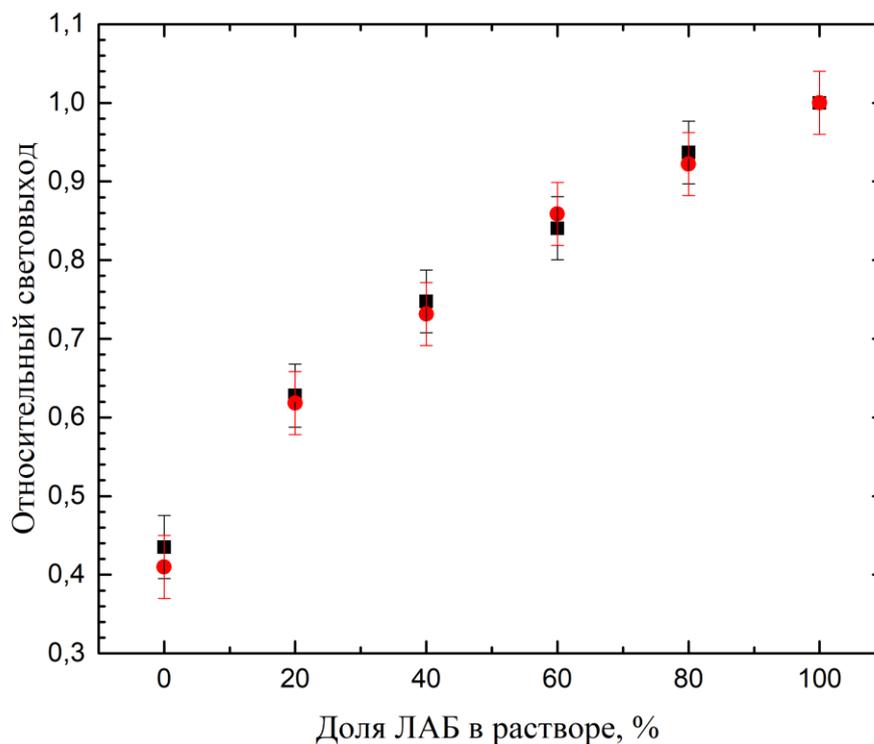


Рисунок 2.19. Зависимость относительного световыхода сцинтиллятора на основе LAB и PPO с добавлением минерального масла – додекана (черный цвет) и жидкого парафина (красный цвет) от доли LAB в сцинтилляторе. Концентрация PPO составляет 6 г/л для всех случаев.

На рис. 2.20 также представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB и PPO с добавлением минерального масла (додекана). Из полученных данных можно сделать вывод, что наличие додекана в сцинтилляционной смеси практически не влияет на время высвечивания.

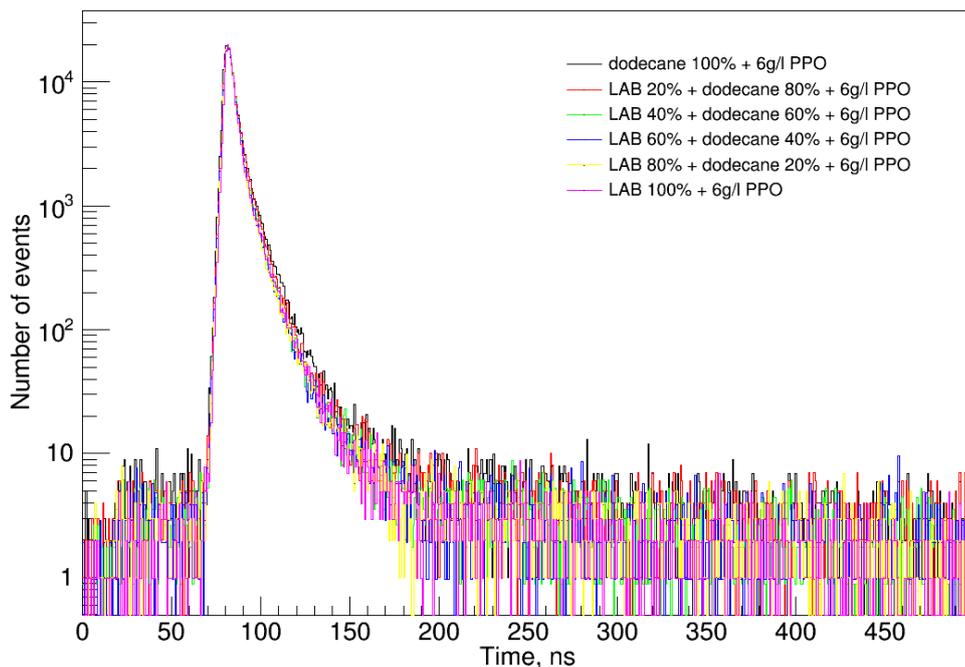


Рисунок 2.20. Кинетика сцинтилляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и PPO с добавлением минерального масла (додекана).

## 2.5. Сцинтилляционные параметры жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола и кремнийсодержащих сцинтилляционных добавок

Физические параметры жидких сцинтилляторов, такие как спектр излучения, световыход, кинетика свечения, сильно зависят от органического растворителя и сцинтилляционных добавок, используемых в сцинтилляторах [54]. Наиболее часто используемый подход при изготовлении жидких сцинтилляторов заключается в использовании двух сцинтилляционных добавок. Первая поглощает энергию возбуждения, выделяемую в органическом растворителе при прохождении ионизирующего излучения. Вторая добавка является спектросмещающей, и служит для согласования спектра сцинтилляционного излучения с прозрачностью сцинтиллятора и чувствительностью фотодетекторов.

Мы разработали новые сцинтилляционные добавки, которые можно использовать в качестве единственной добавки, т. е. без добавления вторичных спектросмещающих добавок. Такой подход позволяет повысить эффективность сцинтиллятора, поскольку нет потерь при переносе возбуждения от первичной добавки ко вторичной. Можно также подстраивать спектр излучения новых добавок так, чтобы он соответствовал чувствительности фотодетекторов[55].

Длина затухания сцинтилляционного света является одним из критических параметров для жидких сцинтилляторов в современных крупномасштабных экспериментах. Для экспериментов в масштабе килотонн длины затухания порядка десятков метров имеют решающее значение для надежного получения сигнала от детектора. Эти длины могут быть достигнуты путем увеличения так называемого сдвига Стокса или расстояния между пиками излучения и поглощения компонентов сцинтиллятора. Чтобы достичь требуемой длины затухания сцинтиллятора необходимо подбирать сцинтилляционные добавки с максимально большим сдвигом Стокса.

Разработанные сцинтилляционные добавки, которые представлены в данной работе, представляют собой кремнийорганические соединения. В структуре молекул данных добавок имеются донорные и акцепторные участки, которые могут эффективно продуцировать сцинтилляционный свет посредством резонансной передачи энергии Фёрстера [56].

Нами были разработаны жидкие сцинтилляторы на основе LAB и новых сцинтилляционных добавок Skm219 и Skm152. На рис. 2.21 можно увидеть фотографию образцов новых сцинтилляторов на основе LAB и новых сцинтилляционных добавок Skm219.



Рисунок 2.21. Фотография двух образцов жидких сцинтилляторов с новыми добавками Skm219 (справа и в центре) и стандартный сцинтиллятор с LAB+PPO (слева).

На рис. 2.22 представлен спектр люминесценции сцинтилляционной добавки Skm219. Максимум спектра излучения Skm219 лежит в области  $\sim 490-500$  нм, поэтому сразу встает вопрос об эффективности использования данной добавки с широко используемыми ФЭУ с бищелочными фотокатодами, максимальная чувствительность которых лежит в синей части спектра.

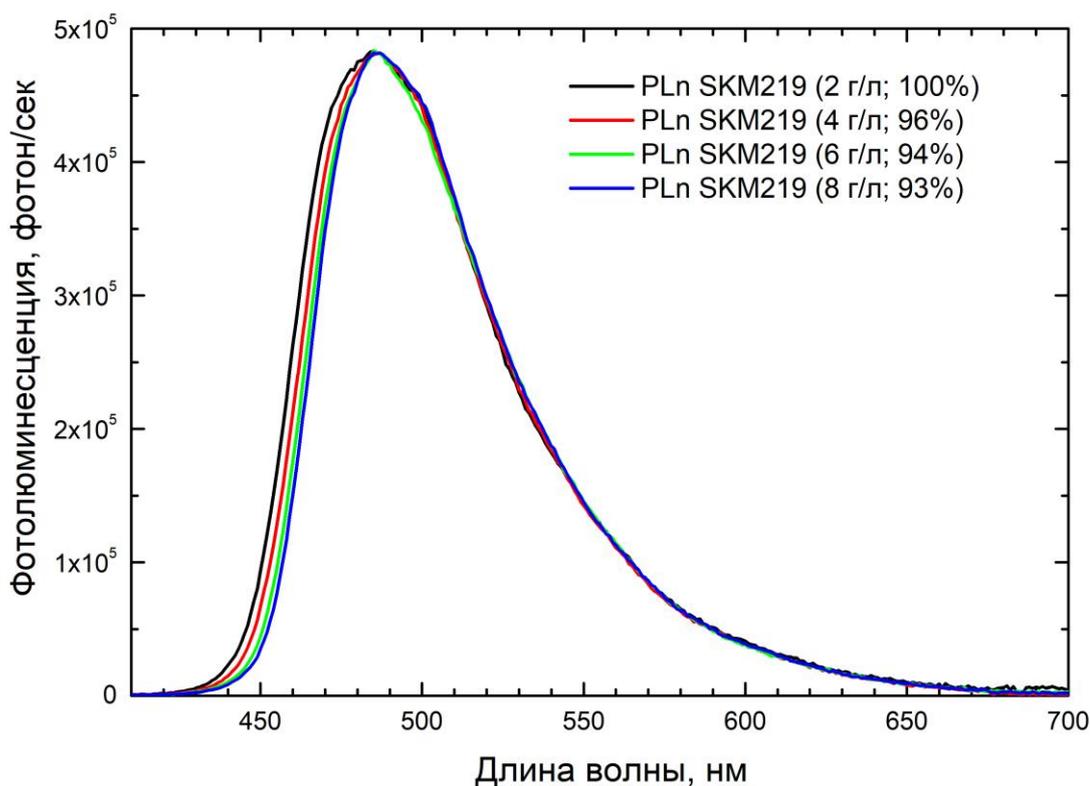


Рисунок 2.22. Спектры фотолюминесценции растворов в кварцевой кювете. Длина волны возбуждения 390 нм. В скобках указана площадь спектра (за 100% взят спектр при концентрации 2 г/л).

Чтобы оценить перспективность использования сцинтилляторов на основе LAV и сцинтилляционной добавки Skm219, были проведены измерения основных параметров: световыхода и времени высвечивания.

На рис. 2.23 представлены измеренные зарядовые энергетические спектры сцинтилляторов на основе LAV с различными концентрациями добавки Skm219.

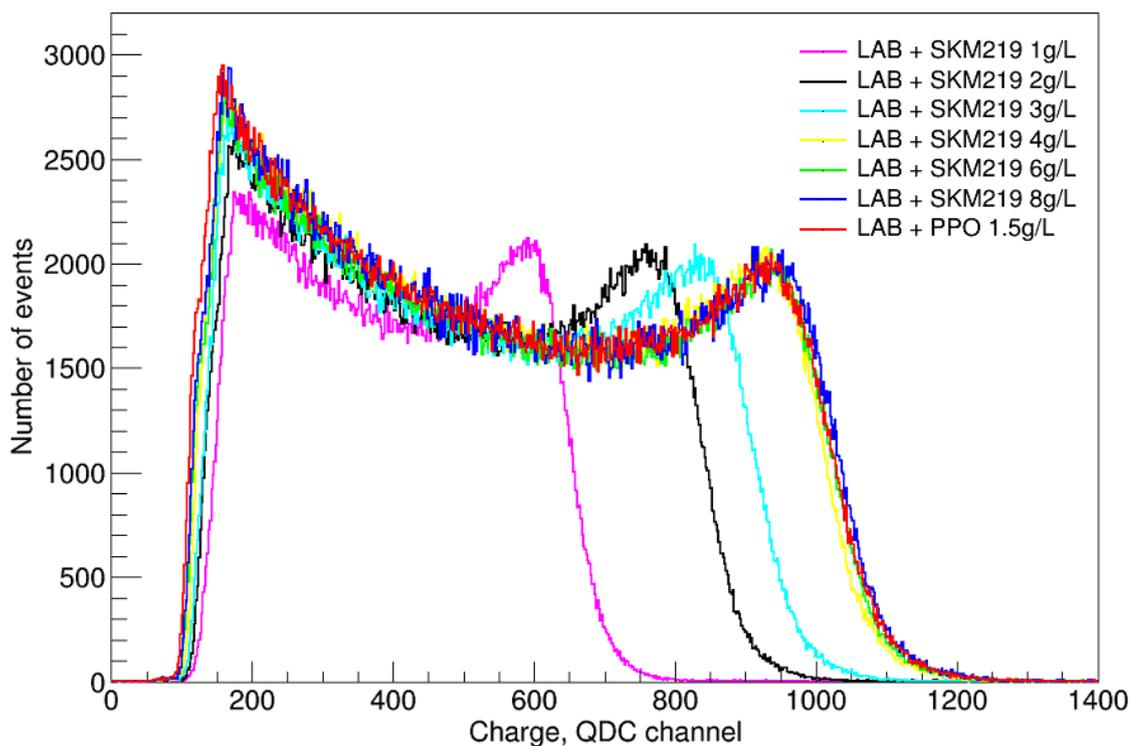


Рисунок 2.23. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе LAB и Skm219  $\gamma$ -квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ )[55].

Спектры были измерены с помощью фотоэлектронного умножителя (XP5301В производства фирмы Photonis) с бищелочным фотокатодом с высокой квантовой эффективностью. Здесь следует отметить, что чувствительность ФЭУ XP5301/В в большей степени согласуется со спектром излучения добавки PPO, максимум которого лежит в области  $\sim 360$  нм. А максимум спектра излучения Skm219, как указывалось выше, находится в области  $\sim 490$ -500 нм.

По результатам измерений для всех образцов SKM219 был рассчитан относительный световыход. В качестве точки отсчета был выбран сцинтиллятор на основе LAB с добавлением PPO (1,5 г/л), спектр которого также изображен на рис. 2.23. Для каждого спектра было определено положение комптоновского края и соответствующий ему заряд и получены значения световыхода в относительных единицах.

Для того, чтобы учесть в проведенных измерениях чувствительность ФЭУ, была рассчитана усредненная квантовая эффективность ФЭУ XP5301/B для спектров излучения PPO и Skm219. На рис. 2.24 на одном графике представлена квантовая эффективность ФЭУ и спектры излучения PPO и Skm219 в зависимости от длины волны. Усредненная квантовая эффективность  $\langle \eta \rangle$  для каждой отдельной сцинтилляционной добавки рассчитывалась по формуле среднего арифметического взвешенного:

$$\langle \eta \rangle = \frac{\sum_{\lambda=300}^{700} S_{\lambda} \cdot \eta_{\lambda}}{\sum_{\lambda=300}^{700} S_{\lambda}}, \quad (2.11)$$

где  $S_{\lambda}$  – интенсивность спектра излучения сцинтилляционной добавки для данной длины волны  $\lambda$ , а  $\eta_{\lambda}$  – соответствующая этой длине волны квантовая эффективность ФЭУ.

Усредненная квантовая эффективность ФЭУ XP5301/B составила  $\langle \eta \rangle_{PPO} = 45,85\%$  и  $\langle \eta \rangle_{Skm} = 20,83\%$  для спектров излучения PPO и Skm219 соответственно.

На рис. 2.25 показаны зависимости световыхода сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционных добавок Skm219 и PPO с поправкой, учитывающей квантовую эффективность ФЭУ для спектра излучения конкретной сцинтилляционной добавки.

На основании полученных результатов можно сделать вывод, что световыход сцинтиллятора при использовании сцинтилляционной добавки Skm219 почти в 2 раза превосходит световыход сцинтиллятора с PPO. Например, при концентрации 4 г/л сцинтилляционных добавок PPO и Skm219 отношение световыходов соответствующих сцинтилляторов составляет  $LY_{Skm219}/LY_{PPO} = 1,87 \pm 0,08$ .

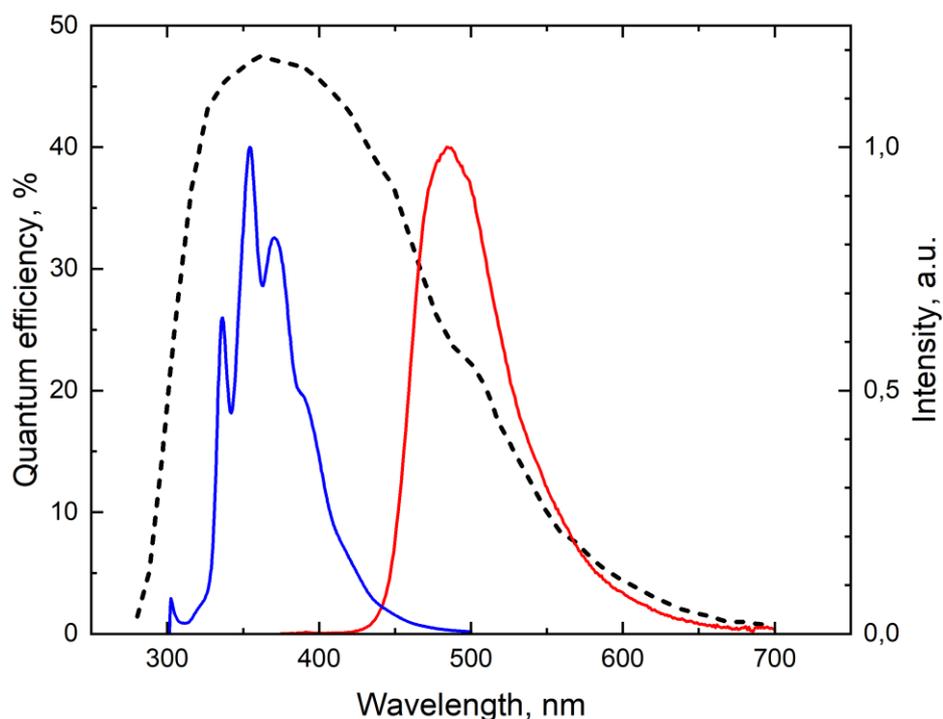


Рисунок 2.24. Зависимость квантовой эффективности ФЭУ XP5301/B от длины волны (черный цвет) и спектры излучения PPO (синий цвет) и Skm219 (красный цвет).

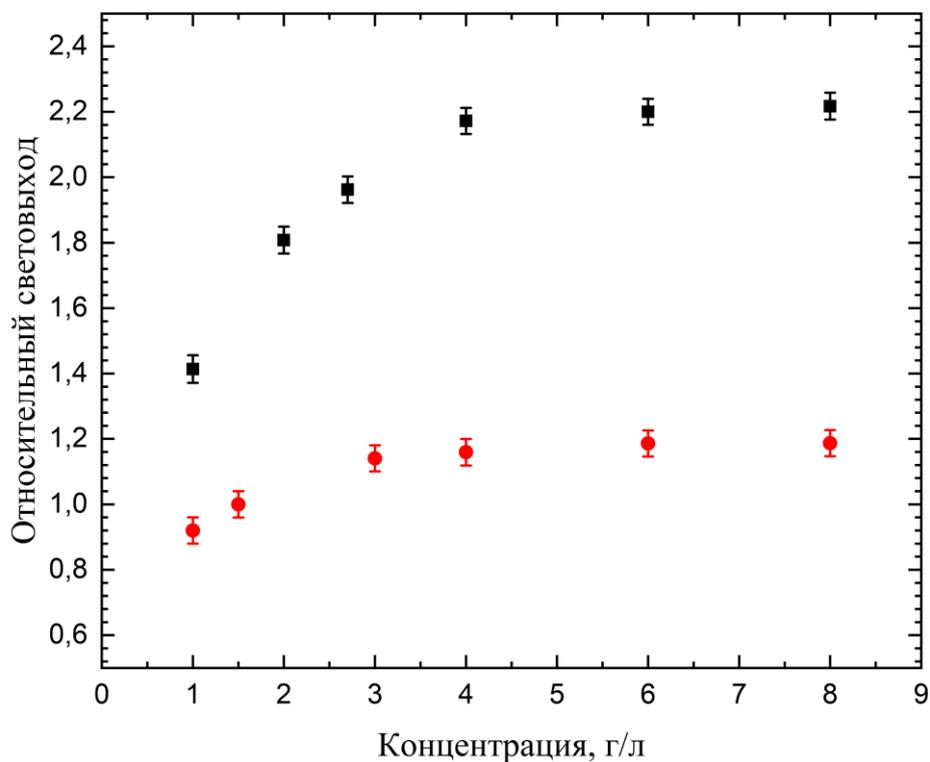


Рисунок 2.25. Зависимость световыхода от концентрации сцинтилляционной добавки SKM219 (черный цвет) в сравнении с аналогичной зависимостью для PPO (красный цвет).

Высокий световыход, несомненно, является преимуществом новой сцинтилляционной добавки Skm219. С другой стороны, для более эффективного применения данной добавки необходимо использовать фотоэлектронные умножители с мультищелочными фотокатодами или фотоэлектронные умножители с микроканальными пластинами, спектральная чувствительность которых больше соответствует спектру излучения добавки Skm219.

На рис. 2.26 представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm219 и PPO. Для каждого спектра были выделены три компонента с постоянными времени высвечивания  $\tau_1$ ,  $\tau_2$  и  $\tau_3$ . Более подробные результаты приведены в таблице 2.3. В скобках для каждой компоненты указан вклад в общий световыход в процентах. По результатам измерений можно сделать вывод, что сцинтилляторы с новыми добавками имеют более медленную кинетику свечения в сравнении с сцинтилляторами с PPO, но данное различие не является критичным. Также наблюдается уменьшение значения постоянной времени  $\tau_1$  с ростом концентрации добавки Skm219. На рис. 2.27 показана зависимость самой быстрой компоненты с постоянной времени  $\tau_1$  от концентрации сцинтилляционной добавки Skm219.

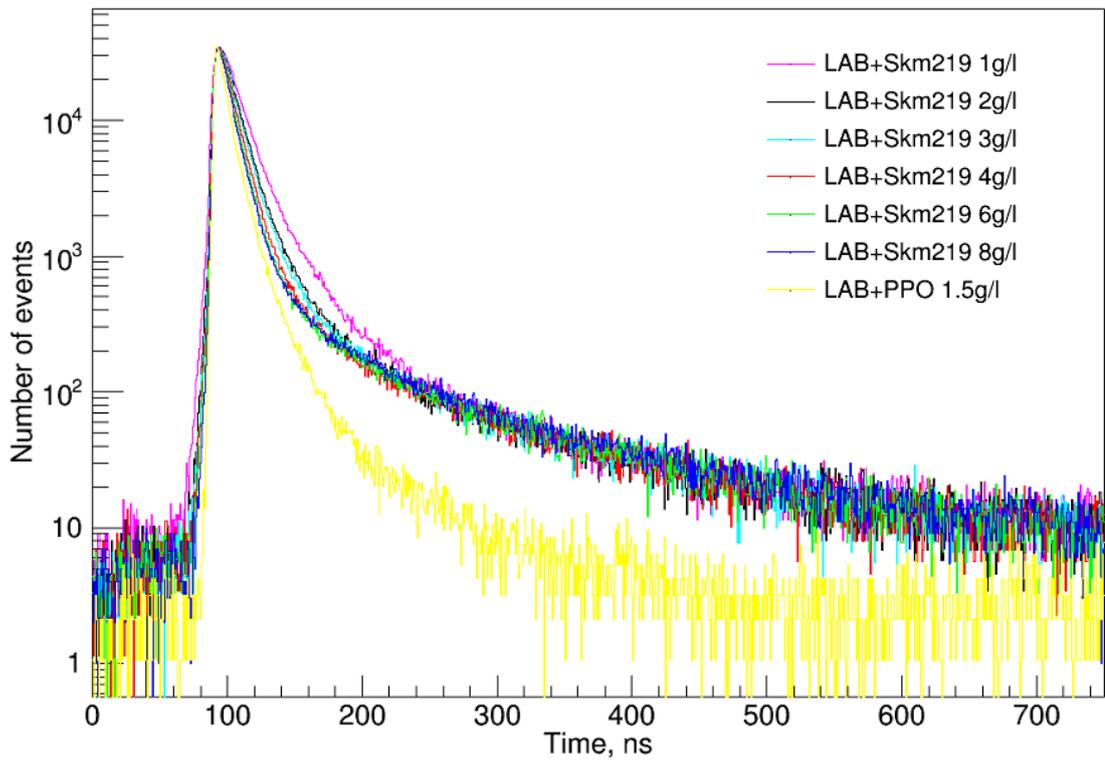


Рисунок 2.26. Кинетика сцинтилляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm219 [55].

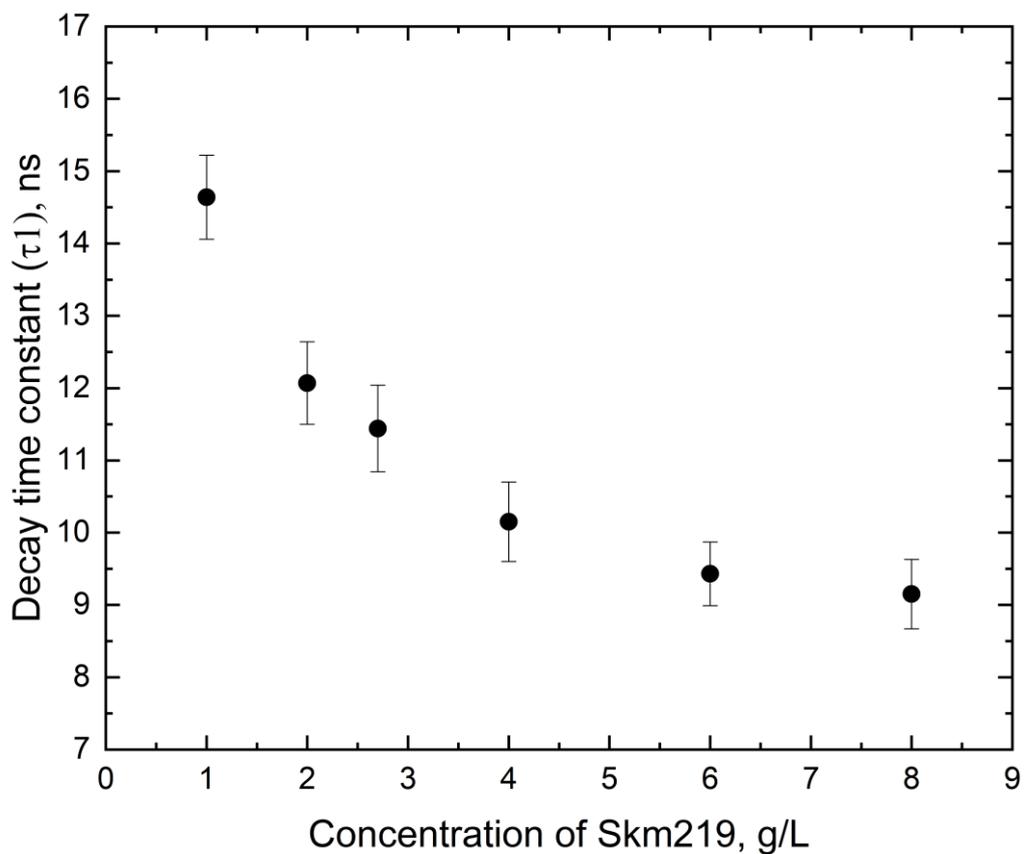


Рисунок 2.27. Зависимость постоянной времени  $\tau_1$  от концентрации сцинтилляционной добавки Skm219.

Таблица 2.3. Результаты измерения кинетики свечения сцинтилляторов на основе LAB

Образец сцинтиллятора	$\tau_1$ , нс	$\tau_2$ , нс	$\tau_3$ , нс
LAB + PPO(1 г/л)	7,5±0,51 (56,3%)	16,72±2,06 (38,6%)	61,18±5,61 (4,3%)
LAB + PPO(1,5 г/л)	6,79±0,48 (58,6%)	16,25±0,84 (36,8%)	63,84±3,65 (4%)
LAB + PPO(3 г/л)	5,98±0,66 (66,4%)	15,46±2,63 (27%)	58,93±4,8 (5,7%)
LAB + PPO(4 г/л)	5,71±0,32 (72,9%)	18,81±4,71 (21,3%)	53,24±11,83 (4,9%)
LAB + PPO(6 г/л)	4,72±0,11 (73,6%)	15,98±0,79 (21,3%)	57,07±3,29 (4,3%)
LAB + PPO(8 г/л)	4,33±0,25 (73,6%)	15,86±0,67 (22,2%)	61,57±4,03 (3,6%)
LAB + Skm219(1 г/л)	14,64±0,58 (81,8%)	52,43±5,86 (13,8%)	267,47±29,22 (3,9%)
LAB + Skm219(2 г/л)	12,07±0,7 (82,8%)	51,72±7,43 (11,9%)	225,68±21,34 (5,3%)
LAB + Skm219(3 г/л)	11,44±0,6 (82,5%)	56,29±6,58 (11,3%)	229,71±20,35 (5,7%)
LAB + Skm219(4 г/л)	10,15±0,55 (83,3%)	49,6±7,38 (9,6%)	190,13±13,04 (6,4%)
LAB + Skm219(6 г/л)	9,43±0,44 (82,5%)	51,76±6,08 (10,1%)	199,07±11,95 (6,9%)
LAB + Skm219(8 г/л)	9,15±0,48 (81,2%)	51,92±6,13 (10,8%)	200,61±11,91 (7,4%)

Новые кремнийсодержащие сцинтилляционные добавки могут также найти применение при изготовлении неодимсодержащих жидких сцинтилляторов. Неодимсодержащие сцинтилляторы могут использоваться в экспериментах по поиску двойного безнейтринного  $\beta$ -распада. Неодим имеет линии поглощения в широкой области спектра, что ухудшает прозрачность (длину затухания) сцинтиллятора. Поэтому была разработана сцинтилляционная добавка Skm152 для неодимсодержащих сцинтилляторов. На рис. 2.28 показана фотография образцов новых сцинтилляторов на основе LAB и новых сцинтилляционных добавок Skm152.

Для данной сцинтилляционной добавки также были проведены измерения световыхода и кинетики свечения. На рис. 2.29 показаны энергетические спектры сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm152. Также на этом графике представлены спектры LAB+PPO-1,5г/л, LAB+PPO-1,5г/л+Nd-4г/л и LAB+ВРО-2г/л (ВРО – 2-(4-бифенилил)-5-фенилоксазол). Как видно из спектров, представленных на рис. 2.29, добавление неодима (Nd) ухудшает световыход сцинтиллятора.

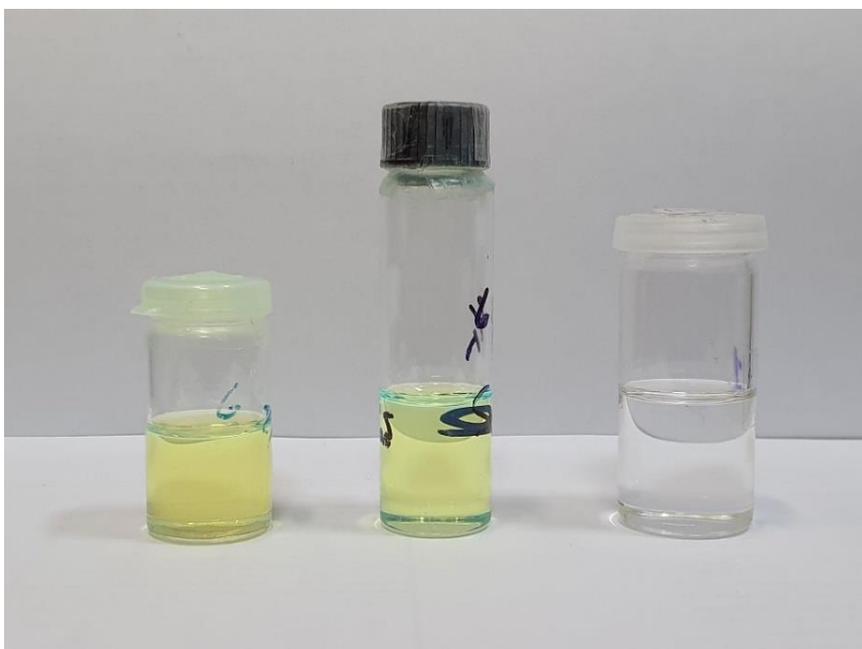


Рисунок 2.28. Фотография двух образцов жидких сцинтилляторов с новыми добавками Skm152 (слева и в центре) и стандартный сцинтиллятор с LAB+PPO (справа).

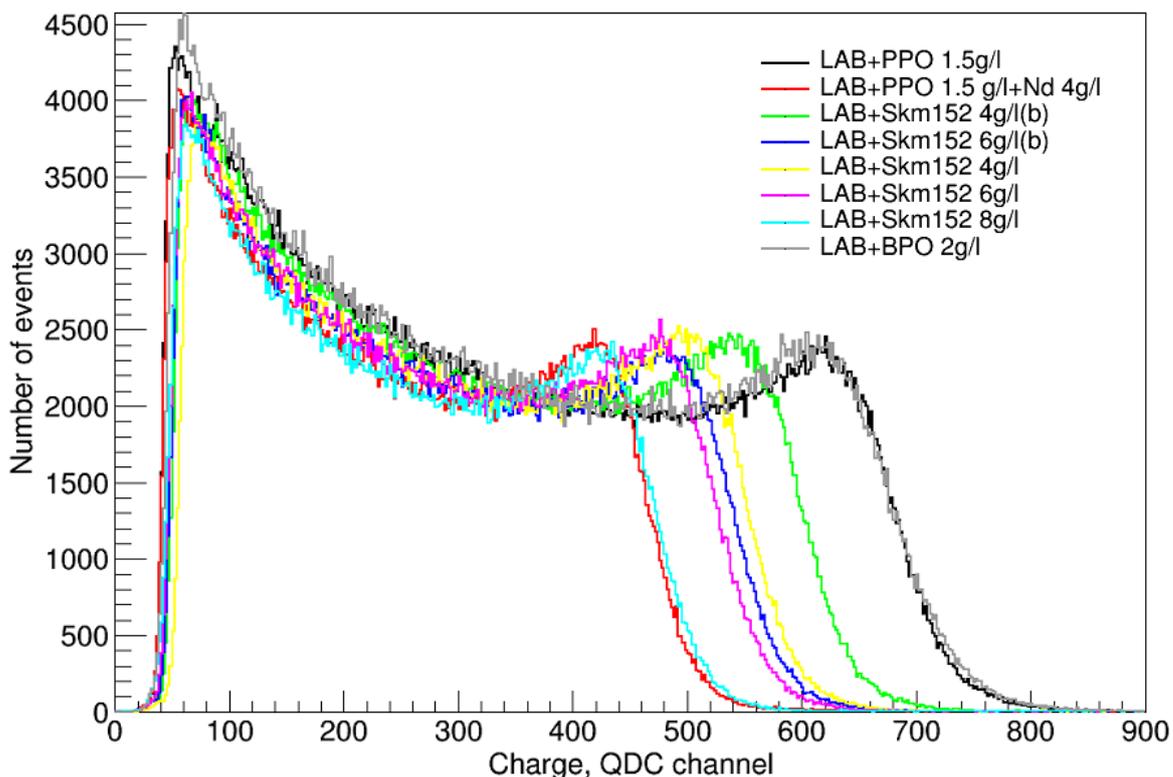


Рисунок 2.29. Зарядовые спектры импульсов при облучении сцинтилляторов на основе LAB и Skm152  $\gamma$ -квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ).

На рис. 2.30 представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm152 для неодимсодержащих сцинтилляторов. Сцинтилляционная добавка Skm152 показывает схожие результаты по кинетике свечения в сравнении с Skm219, а добавление неодима практически не влияет на время высвечивания жидкого сцинтиллятора.

В целом по результатам проведенных нами измерений применение новых сцинтилляционных добавок выглядит многообещающим. Для понимания перспективности использования новых сцинтилляционных добавок при изготовлении сцинтилляторов необходимо продолжать разработку и исследование новых образцов.

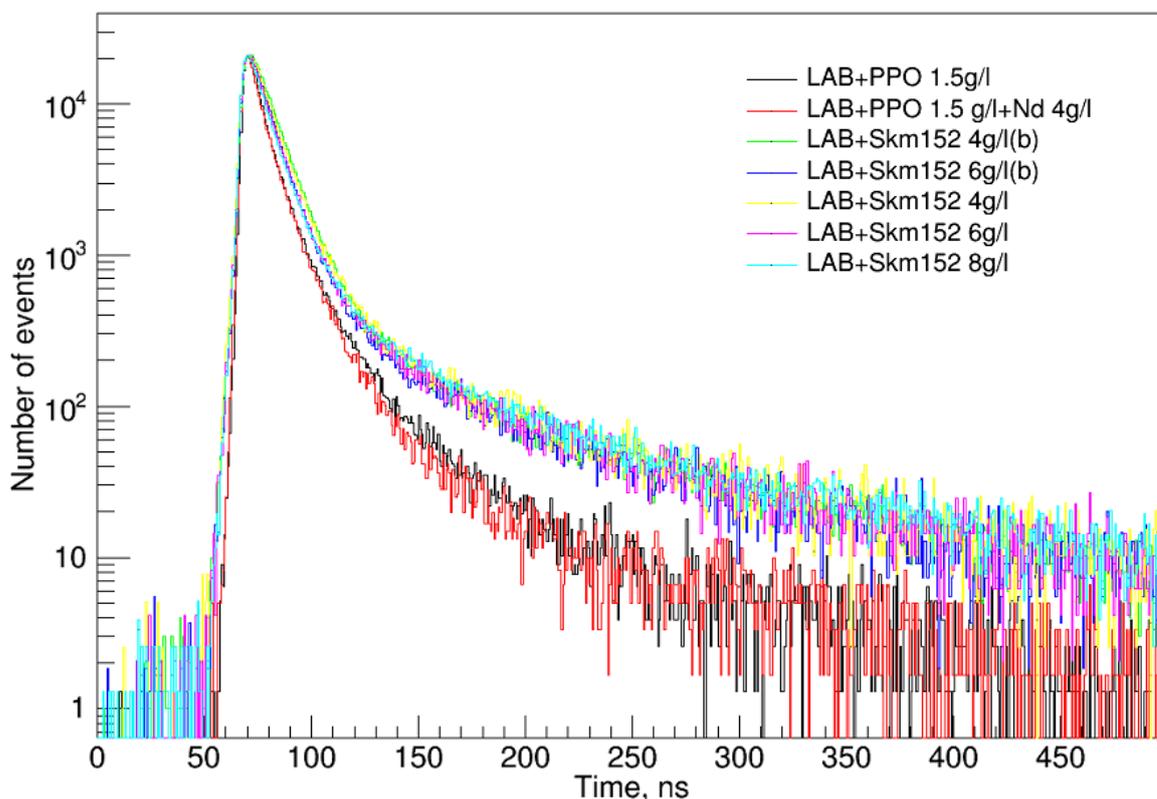


Рисунок 2.30. Кинетика сцинтилляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm152.

## 2.6. Дискриминация частиц по форме импульса в жидких органических сцинтилляторах

Сцинтилляционный импульс обычно имеет быструю и медленную составляющую. Возбужденные синглетные состояния обычно имеют среднее время жизни значительно меньше 10 нс, а их распады создают короткую вспышку света. Медленная составляющая образуется более сложным образом. Возбужденные триплетные состояния  $T_1$  имеют гораздо большее время жизни на временных масштабах фосфоресценции. Фактически, время жизни триплетного состояния слишком велико, чтобы оказывать какое-либо влияние на конечный сцинтилляционный сигнал. Но частые взаимодействия с окружающими молекулами могут значительно сократить время высвечивания. При взаимодействии двух молекул в триплетном состоянии одна из них может перейти в синглетное состояние  $S_1$ , в то время как вторая

молекула возвращается в свое основное состояние. Таким образом, этот процесс приводит к отложенному заселению синглетных уровней  $S_1$ , которые затем переходят в основное состояние и создают медленную составляющую сцинтилляционного импульса.

Как уже было сказано в разделе 2.1, синглетные и триплетные состояния заселяются разными механизмами. Соотношение синглетных или триплетных состояний зависит главным образом от плотности ионизации  $dE/dx$ . Синглетные состояния в основном образуются, когда  $dE/dx$  мала, а электрон поднимается до более высокого энергетического состояния. С другой стороны, триплетные состояния с большей вероятностью будут образованы, когда  $dE/dx$  велика и электрон оказывается временно оторван от своей молекулы. Когда электрон падает обратно на ион, он переходит в триплетное состояние с вероятностью  $3/4$ .

Поскольку среднее значение плотности ионизации  $dE/dx$  варьируется между различными типами падающих частиц, они вызывают разное количество синглетных и триплетных состояний, что в конечном итоге приводит к разным пропорциям быстрой и медленной составляющей сцинтилляционного импульса. И наоборот, разные формы импульсов позволяют делать выводы о типе падающей частицы (дискриминация частиц по форме импульса). Данный метод будет работать тем лучше, чем больше частицы различаются по механизму передачи энергии. Например, электроны (гамма-кванты) и альфа-частицы, которые описываются совершенно разными механизмами потери энергии, могут иметь большие различия и часто могут быть успешно идентифицированы по форме импульсов.

В рамках диссертационного исследования были получены формы импульсов (кинетика свечения) для образцов жидких органических сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC при облучении гамма-квантами и альфа-частицами. В качестве источника гамма-квантов использовался  $^{137}\text{Cs}$  (цезий-137), а в качестве источника альфа-частиц –  $^{238}\text{Pu}$  (плутоний-238).

Измерение формы импульсов проводилось методом, описанным в разделе 2.3.

На рис. 2.31 показаны различия в форме импульсов между гамма-квантами и альфа-частицами в следующих образцах сцинтилляторов: LAB+PPO (2 г/л), LAB+Skm219 (4 г/л) и DIN+PPO (2 г/л) и PC+PPO (1,5 г/л). На приведенных рисунках четко видно влияние быстрой и медленной составляющих на форму сцинтилляционного импульса. Также хорошо видно, что разница между гамма-квантами и альфа-частицами в большей степени проявляется в медленной компоненте.

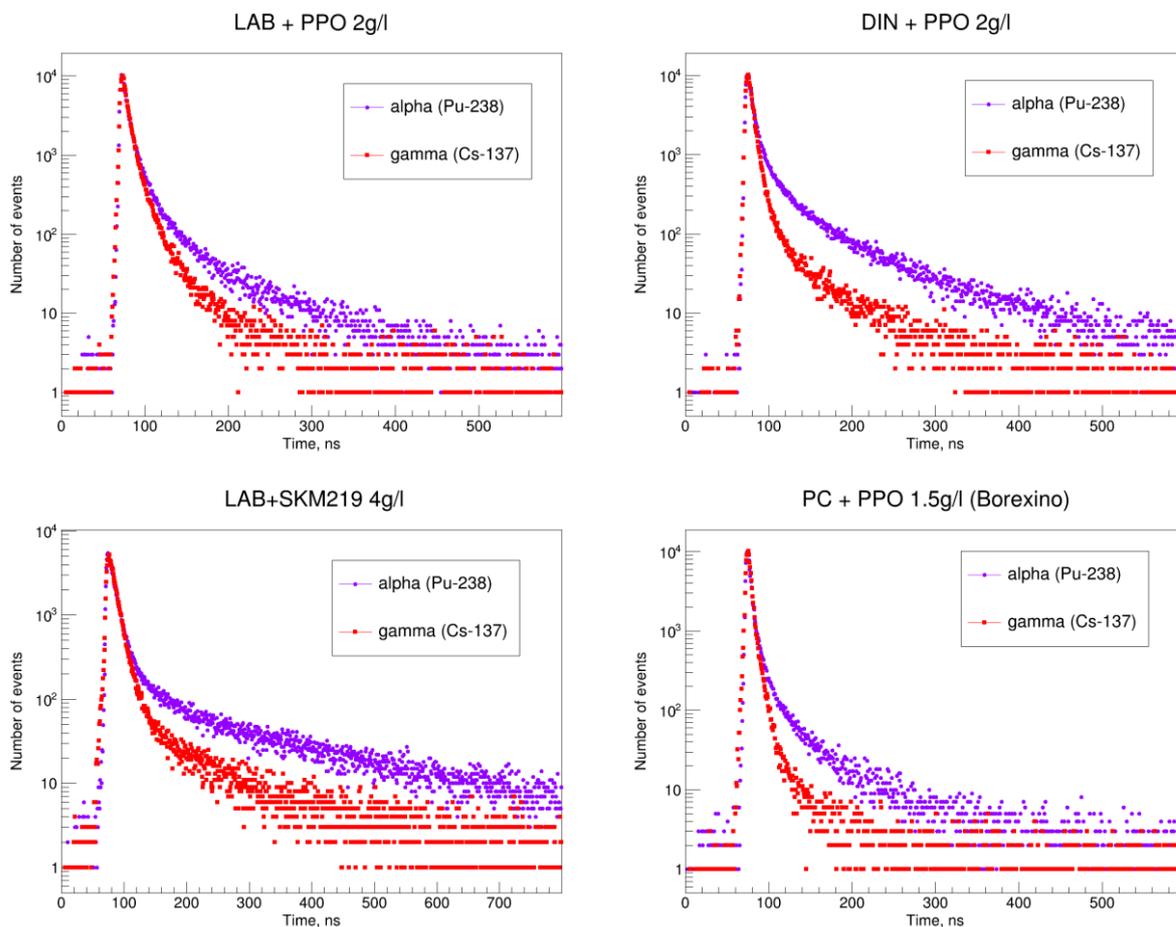


Рисунок 2.31. Формы импульсов (кинетика свечения) сцинтилляторов LAB+PPO (2 г/л), LAB+Skm219 (4 г/л) и DIN+PPO (2 г/л) и PC+PPO (1,5 г/л) при облучении гамма-квантами (<sup>137</sup>Cs) и альфа-частицами (<sup>238</sup>Pu).

В таблице 2.4 приведены полученные времена высвечивания и соответствующие вклады в общий световойход для всех измеренных образцов сцинтилляторов. Наибольшее различие в форме импульса между гамма-квантами и альфа-частицами демонстрируют образцы сцинтилляторов на основе DIN с добавлением PPO и LAB с добавлением Skm219.

Таблица 2.4. Результаты измерения кинетики свечения для образцов жидких органических сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC при облучении гамма-квантами и альфа-частицами.

Образец сцинтиллятора	$\tau_1$ , нс (вклад, %)		$\tau_2$ , нс (вклад, %)		$\tau_3$ , нс (вклад, %)	
	Cs-137	Pu-238	Cs-137	Pu-238	Cs-137	Pu-238
LAB+PPO 2г/л	6±0,41 (66,8)	6,7±0,53 (62,6)	16,7±1,21 (27,8)	23,8±1,1 (26,6)	54,2±5,1 (4,1)	91,1±4,6 (9,3)
DIN+PPO 2г/л	5,15±0,3 (79)	6,11±0,5 (54,2)	16,4±2,62 (11,7)	29,8±2,43 (26)	60,9±6,5 (7,6)	108,3±4,2 (18,6)
PC+PPO 1,5г/л	3,11±0,1 (64)	3,8±0,5 (64,5)	8,4±0,45 (32,2)	15,2±1,74 (22,8)	46,3±4,8 (1,8)	61,5±3,9 (10,8)
LAB+Skm219 4г/л	10,42±0,47 (84,4)	10,3±0,45 (57,4)	50,9±4,7 (8,7)	54,9±4,1 (16,1)	151,7±14,9 (4,8)	273,8±15 (26,5)

## 2.7. Долговременная стабильность жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической добавки

Современные широкомасштабные эксперименты в астрофизике физике рассчитаны на многолетнюю работу, ~ 10 лет и выше. В силу этого, долговременная стабильность параметров является одним из важнейших параметров. Для новых разработок сложно провести долговременные измерения. Однако, нами проведены измерения стабильности световыхода и кинетики свечения за три полных года с июня 2018 года по июнь 2021 года.

Исследования долговременной стабильности проводились на измерительных стендах, описанных в параграфе 2.3 данной главы. В качестве реперного сцинтиллятора, относительно которого проводились измерения световыхода, был выбран пластиковый сцинтиллятор EJ204 размером 2 см в диаметре и толщиной 1 см. Стабильность световыхода самого реперного пластикового сцинтиллятора и чувствительности фотоумножителя контролировалась по среднему числу фотоэлектронов, возникающем в фотоумножителе при облучении сцинтиллятора  $\alpha$ -частицами от радиоактивного источника  $^{241}\text{Am}$ . Чувствительность фотоумножителя контролировалась в отдельных измерениях с использованием калиброванного радиолюминесцентного источника (РЛИ) по счету однофотоэлектронных импульсов. Результаты измерений долговременной стабильности световыхода разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки показаны на рисунке 2.32.

Исследовалась также и долговременная стабильность кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора. На рисунке 2.33 представлены спектры высвечивания, измеренные в июне 2019 года (красный цвет) и в июне 2021 года (синий цвет).

Как видно из рисунков 2.32 и 2.33, каких-либо изменений световыхода и кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки за три года измерений не обнаружено.

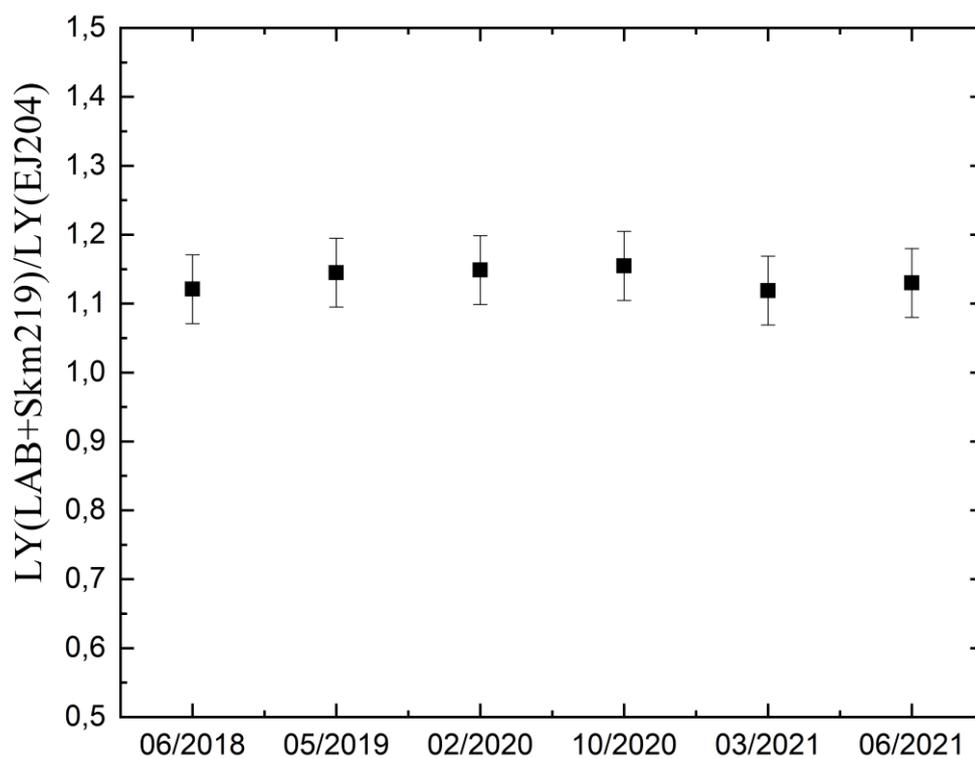


Рисунок 2.32. Долговременная стабильность световыхода разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки.

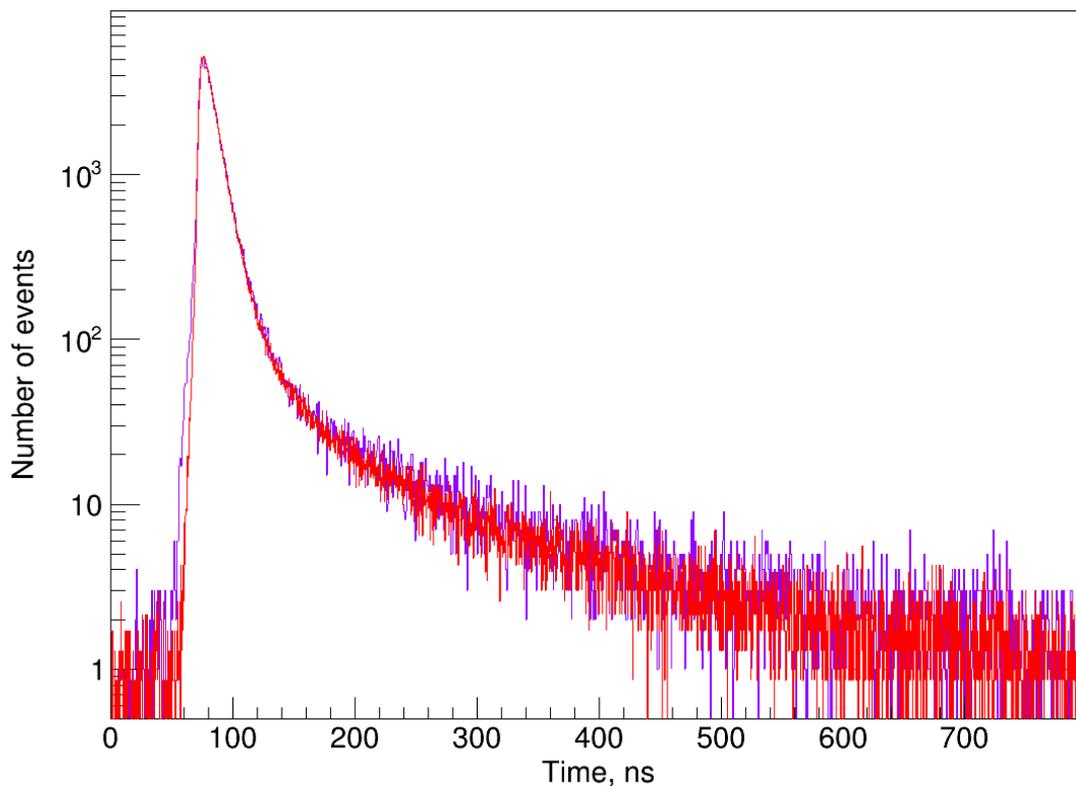


Рисунок 2.33. Долговременная стабильность кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки. Красный цвет – измерение сделано в июне 2019 года; синий цвет – измерение сделано в июне 2021 года.

## 2.7. Проект нового нейтринного жидкосцинтилляционного детектора большого объема в БНО ИЯИ РАН

В Баксанской нейтринной обсерватории Института ядерных исследований (БНО ИЯИ) РАН планируется создать новый Баксанский нейтринный телескоп большого объема (предполагаемая масса жидкого сцинтиллятора  $\sim 10$  кт) [57].

Этот многоцелевой детектор, предназначенный для регистрации потоков нейтрино и антинейтрино от Солнца, Земли и астрофизических источников, будет расположен в подземной лаборатории БНО на глубине

около 4700 м.в.э (метров водного эквивалента). Этот детектор будет состоять из трех зон. Центральная зона, служащая мишенью для нейтрино, будет заполнена сверхчистым жидким сцинтиллятором на основе линейного алкилбензола и окружена второй зоной, заполненной несцинтиллирующей органической жидкостью для подавления фона от фотоэлектронных умножителей. Фотоумножители будут установлены на внутренней поверхности второй зоны. Внешняя зона, заполненная водой, будет просматриваться дополнительным рядом фотоумножителей и служить детектором мюонного вето.

Проект детектора включает четыре этапа. На первом этапе планируется создать опытный образец с массой жидкого сцинтиллятора 0,5 т, размещенный в лаборатории галлий-германиевого нейтринного телескопа (ГГНТ) БНО. Второй этап подразумевает создание опытного образца с массой жидкого сцинтиллятора 5 т, также расположенного в лаборатории ГГНТ, для отработки применяемых научно-технологических методов и подходов. Третий этап заключается в проектировании и создании масштабного прототипа с массой сцинтиллятора 100 т. На этом этапе потребуются системы очистки воды и сцинтиллятор, размещенные в специальных помещениях под землей. Помимо разработки методов и технологий полномасштабного детектора, этот прототип сможет решать актуальные научные задачи, например, отслеживать взрывы сверхновых с коллапсирующим ядром в Галактике. Также в качестве основной самостоятельной задачи 100-тонного детектора рассматривается эксперимент по поиску стерильных нейтрино с искусственным источником антинейтрино от распадов  $^{144}\text{Ce}$  (церий-144). Параллельно со 100-тонным детектором начнутся работы по проектированию и созданию полномасштабной установки. И наконец, четвертый этап — это проектирование, создание и запуск полномасштабного детектора, способного решить весь комплекс задач, поставленных в проекте. Рабочий объем этого большого детектора может быть увеличен за счет создания дополнительных отдельных секций.

Для повышения эффективности телескопа для решения отдельных задач планируется разработка и использование новых сцинтилляционных добавок.

Работа полномасштабного сцинтилляционного детектора нейтрино нового поколения будет в основном сосредоточена на решении следующих физических задач:

1. Измерение потоков антинейтрино от бета-распадов изотопов естественных радиоактивных семейств  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ , а также  $^{40}\text{K}$ , содержащихся в недрах Земли (геонейтрино). Надежная регистрация этих частиц позволит установить вклад энерговыделения от радиоактивного распада этих изотопов в общий тепловой поток Земли; проверить гипотезу о том, что в центре Земли происходит цепная реакция деления, путем поиска потока антинейтрино из «геореактора»; определить соотношение U/Th внутри планеты, что позволит нам ответить на ряд актуальных вопросов о внутренней структуре, происхождении и эволюции нашей планеты.

2. Регистрация изотропного потока антинейтрино, накопленного во Вселенной в результате гравитационных коллапсов ядер массивных звезд и образования нейтронных звезд и черных дыр.

3. Исследование динамики взрыва сверхновой посредством регистрации интенсивности и спектра нейтринной вспышки в случае взрыва сверхновой с коллапсирующим ядром на расстоянии до 200 кпк.

На данный момент завершен первый этап проекта. Изготовлен и запущен в тестовом режиме в лаборатории ГГНТ БНО прототип детектора с массой жидкого сцинтиллятора 0,5 т.

Прототип детектора включает две зоны. Центральная зона, служащая мишенью для нейтрино, заполнена сверхчистым жидким сцинтиллятором и окружена второй зоной, заполненной водой, которая служит для защиты от внешней радиоактивности и одновременно является мюонным вето. Сцинтиллятор находится внутри сферы с внутренним радиусом 48 см. В качестве растворителя для сцинтиллятора был выбран линейный алкилбензол (LAB), он имеет плотность  $863 \text{ кг/м}^3$ , поэтому общая масса сцинтиллятора в

сфере составляет около 400 кг. Сцинтилляционная добавка в LAB - 2,5-дефинилоксазол (PPO) в концентрации 2 г/л. Вторая спектросмещающая добавка (POPOP или bis-MSB) не вносилась в силу малого объема детектора, при котором поглощения излучения PPO еще незначительно. Сфера изготовлена из акрила, прозрачного материала с показателем преломления, близкому показателю преломления LAB. Он помещен в наполненный водой цилиндрический бак из полипропилена. Диаметр и высота резервуара – 240 и 280 см соответственно. Объем резервуара составляет 11,5 м<sup>3</sup>. Вода подается через сложную систему очистки и хранения воды в лаборатории ГГНТ, которая включает набор фильтров, кварцевание и т. д. Сфера с жидким сцинтиллятором окружена двадцатью 10-дюймовыми фотоумножителями Hamamatsu R7081-100, расположенными в вершинах правильного додекаэдра на расстоянии около 75 см, измеренном от центра сферы до центра фотокатода фотоумножителя. Фотоумножители и акриловая сфера устанавливаются на раму из нержавеющей стали с помощью креплений и опор, изготовленных из фторполимерных материалов.

На рис. 2.32 представлена фотография прототипа детектора: каркас с установленными в нем фотоумножителям, акриловая сфера, резервуар для воды (на заднем плане) и контейнер из полиэтилена высокой плотности, из которого сцинтиллятор вводится в сферу.



Рисунок 2.32. Фотография прототипа детектора: каркас с установленными в нем фотоумножителями, акриловая сфера, резервуар для воды (на заднем плане) и контейнер из полиэтилена высокой плотности, из которого сцинтиллятор вводится в сферу.

### **Глава 3. Очистка жидкого сцинтиллятора**

Оптические свойства жидкого сцинтиллятора чрезвычайно важны в детекторах большого объема. Следовательно, все процессы поглощения света должны быть либо сведены к минимуму, либо исключены. При прохождении света через вещество происходит два основных процесса, приводящее к ослаблению светового потока, – поглощение и рассеяние света. Поглощение света происходит на загрязнениях – взвешях и растворенных в сцинтилляторах веществах с высоким сечением поглощения света. Рассеяние света представлено рэлеевским рассеянием и рассеянием Ми. Рэлеевское рассеяние описывает рассеяние фотонов на связанных электронах, тогда как рассеяние Ми описывает рассеяние фотонов на частицах, размер которых больше, чем длина волны рассеянного света. Принимая во внимание природу обоих процессов, становится ясно, что рэлеевское рассеяние является присущим свойством и его нельзя избежать, в то время как рассеяние Ми может быть сведено к минимуму путем уменьшения количества взвешенных частиц в жидком сцинтилляторе. Основными методами очистки являются адсорбционная хроматография, вакуумная дистилляция и водная экстракция.

#### **3.1. Адсорбционная хроматография**

Адсорбционная хроматография представляет собой стандартную процедуру очистки, которая повсеместно используется в химической промышленности. Адсорбция представляет собой процесс поглощения газов, паров, веществ (примесей) из раствора или газовой смеси поверхностным слоем жидкости или твердого тела — адсорбентом [58]. Адсорбент обеспечивает для проходящей через него жидкости большую площадь соприкосновения. Эта особенность позволяет задерживать большое количество примесей на поверхности частиц адсорбента. Одним из стандартных адсорбентов, который успешно используется для очистки

жидкого сцинтиллятора во многих экспериментах, является оксид алюминия ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Оксид алюминия представляет собой белый порошок с размером частиц от 40 до 90 мкм. Рис. 3.1 наглядно показывает, как примеси адсорбируются на поверхности оксида алюминия.

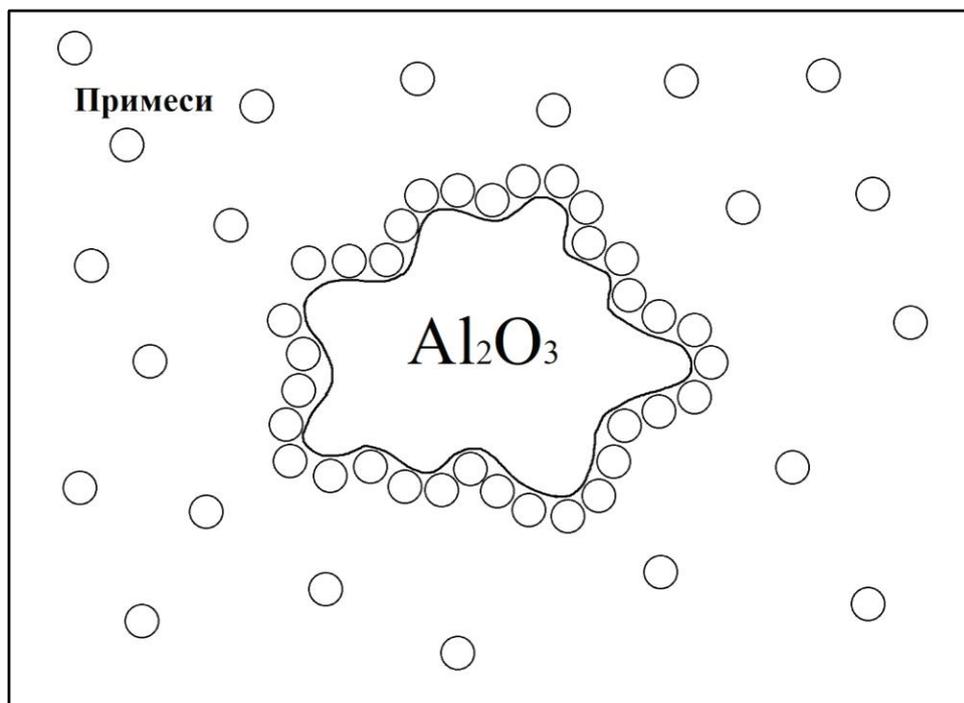


Рисунок 3.1. Изображение примесей, адсорбированных на поверхности гранулы оксида алюминия.

Все примеси остаются в адсорбенте и удаляются вместе с ним. В процессе очистки необходимо контролировать степень насыщения адсорбента. Когда адсорбент поглощает максимальное количество примесей, он становится неэффективным при дальнейшей очистке и может повторно загрязнять уже очищенную жидкость. Это особенно важно в процессе непрерывной очистки больших количеств жидкости.

Лабораторная система очистки жидкого сцинтиллятора, основанная на адсорбционном методе, состоит из небольшой стеклянной колонки с тефлоновыми фитингами сверху и снизу, заполненной оксидом алюминия. Для оптических измерений важно, чтобы колонка была сделана из стекла, а

фитинги из стекла или тефлона, чтобы минимизировать риск вымывания оптических примесей.

Небольшую колонку можно наполнять, используя как сухую, так и влажную загрузку. При сухой загрузке оксид алюминия в его первоначальном сухом состоянии аккуратно помещается в колонку и смачивается жидким сцинтиллятором после загрузки колонки. Этот метод требует больше времени, так как линейный алкилбензол (LAB) очень медленно проходит через сухой оксид алюминия. При влажной загрузке оксид алюминия смешивают с LAB перед загрузкой в колонку. Как только оксид алюминия становится достаточно влажным, его осторожно начинают помещать в колонку. Когда затем в колонку наливают LAB, он проходит через оксид алюминия намного легче. При влажной загрузке на дно колонки также помещается небольшое количество стекловаты, чтобы значительно уменьшить количество частиц оксида алюминия, которые просачиваются в образец. Для эффективной очистки высота столба оксида алюминия должна составлять ~5 диаметров колонки. На рис. 3.2 показана принципиальная схема небольшой лабораторной колонки. На рис. 3.3 представлена фотография адсорбционной колонки с загруженным оксидом алюминия.



Рисунок 3.2. Принципиальная схема очистки LAB с использованием оксида алюминия

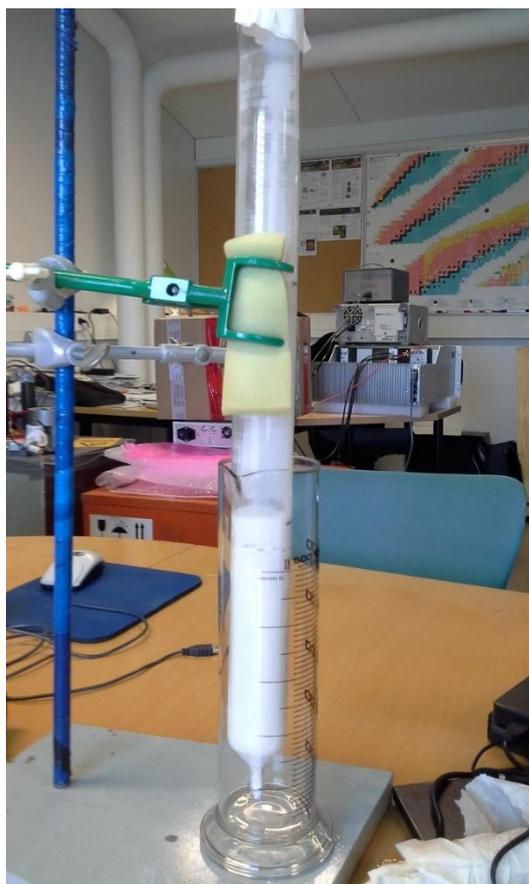


Рисунок 3.3. Фотография простейшей системы очистки на основе адсорбционной колонки с использованием оксида алюминия.

Для проверки эффективности адсорбционного метода очистки с использованием оксида алюминия было проведено измерение оптических свойств образцов очищенного и неочищенного ЛАВ российского производства (ООО «Киреф», г. Кириши Ленинградской области) и китайского производства. На рис. 3.4 представлена кривые поглощения для всех образцов. Образцы ЛАВ помещались в кварцевую кювету длиной 10 см. Спектры были получены с помощью спектрофотометра Perkin Elmer Lambda35.

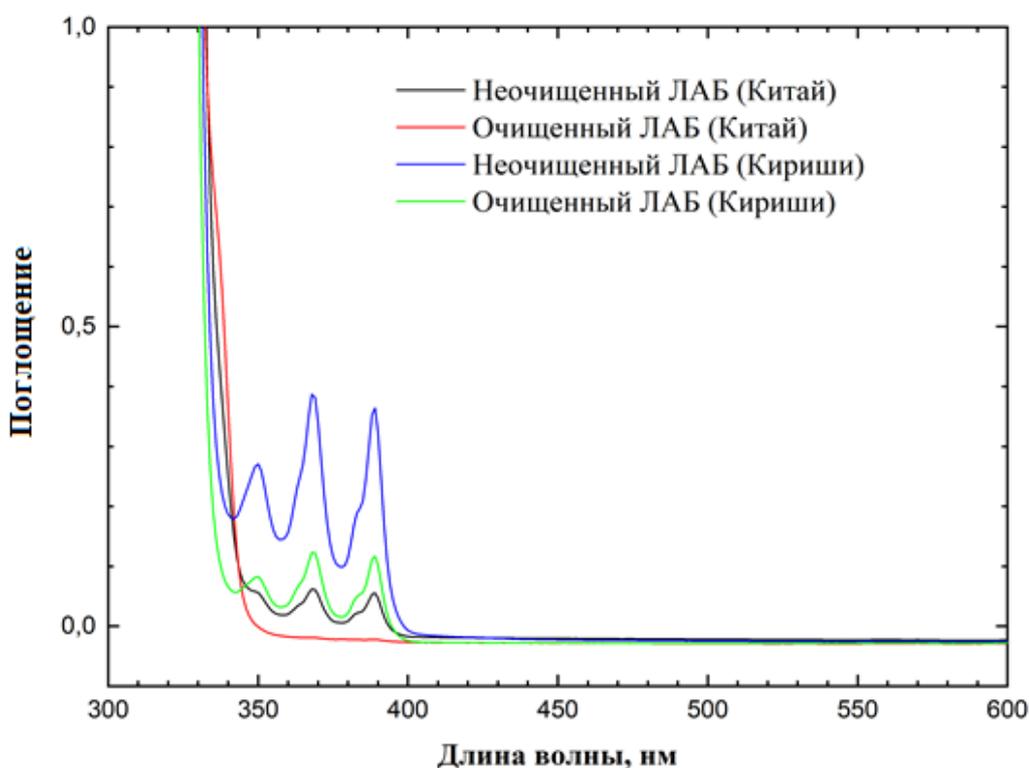


Рисунок 3.4. Спектры поглощения очищенного и неочищенного ЛАВ.

По результатам измерений были получены длины ослабления света (прозрачность) для очищенного и неочищенного образцов линейного алкилбензола при длинах волн 420 нм, 430 нм и 440 нм. Длина ослабления света  $L$  на длине волны  $\lambda$  рассчитывалась по формуле [59]:

$$L_{\lambda} = \frac{d}{2,3(A_{\lambda} - A_{min})}, \quad (3.1)$$

где  $d$  – длина кварцевой кюветы (10 см),  $A_\lambda$  – поглощение света на длине волны  $\lambda$ ,  $A_{min}$  – минимальное поглощение света в области 500-600нм.

В таблице 3.1 приведены результаты измерения длины ослабления света для исследованных образцов LAB.

Таблица 3.1. Длина ослабления света LAB

Образец LAB	$L_{440}$ , м	$L_{430}$ , м	$L_{420}$ , м
LAB неочищенный (Кириши)	11,75	7,9	6,04
LAB очищенный (Кириши)	31,05	24,15	18,11
LAB неочищенный (Китай)	12,79	12,08	10,6
LAB очищенный (Китай)	33,44	28,99	25,58

### 3.2. Вакуумная дистилляция и водная экстракция

Другим возможным методом очистки жидкого сцинтиллятора является вакуумная дистилляция. Сцинтиллятор подвергается воздействию пониженного давления и одновременно нагревается. В результате низкого давления температура кипения сцинтиллятора также уменьшается. Это необходимо из-за низкой температуры вспышки сцинтиллятора. Кроме того, для сцинтилляторов всегда следует избегать высоких температур, поскольку тепло разрушает химические связи в молекулах, что приводит к изменению сцинтилляционных свойств. С помощью этой техники чистый сцинтиллятор будет отгоняться от всего, что имеет более высокую температуру кипения, особенно от твердых тел. Это также стандартная техника, используемая в химии.

Вакуумная дистилляция может использоваться для очистки сцинтиллятора от свинца, который может находиться в сцинтилляторе в виде ионов, в металлической форме или в составе органических молекул.

Для дистилляции LAB необходима специальная вакуумная установка, поскольку температура кипения LAB лежит в диапазоне 278-314°C при давлении 1 атм. Например, в вакууме при давлении 40-70 мторр температура

кипения ЛАВ понижается уже до 70-90°C. Для получения таких условий необходима полностью герметичная установка с использованием высокоэффективного вакуумного насоса.

Процесс очистки путем водной экстракции использует нерастворимость органического сцинтиллятора, в частности ЛАВ, в воде, а также полярность воды. Для очистки сцинтиллятора его смешивают с водой. Затем эту смесь перемешивают, встряхивают или продувают азотом турбулентным способом, чтобы обеспечить правильное смешивание обеих жидкостей. Это смешивание гарантирует, что полярные молекулы воды будут в наилучшем контакте со сцинтиллятором. Полярные примеси будут прикрепляться к полярным молекулам воды и оставаться с ними. После турбулентного перемешивания смесь хранится до повторного разделения сцинтиллятора и воды. После разделения возникнут два четко различимых слоя жидкости. В дальнейшем сцинтиллятор и воду можно физически отделить друг от друга с помощью разделительной воронки. Все примеси должны быть удалены вместе с водой.

На рис. 3.5 показаны три последовательных этапа водной экстракции: добавление воды к сцинтиллятору, активное перемешивание смеси воды и сцинтиллятора и разделение двух фаз через некоторый промежуток времени.

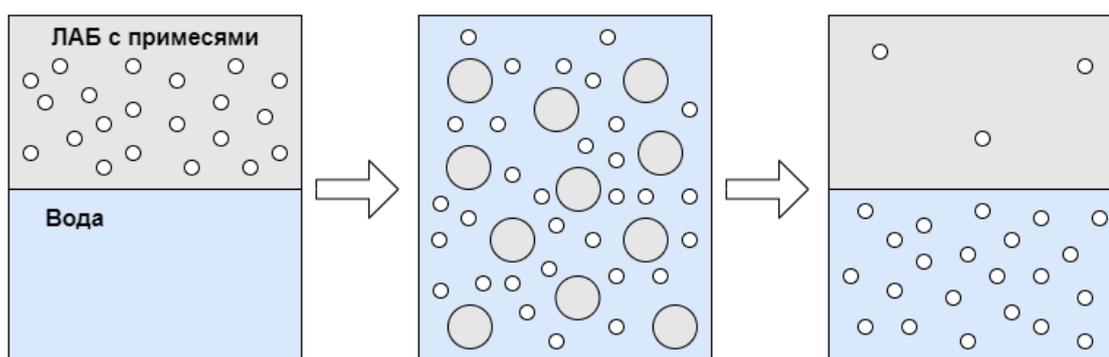
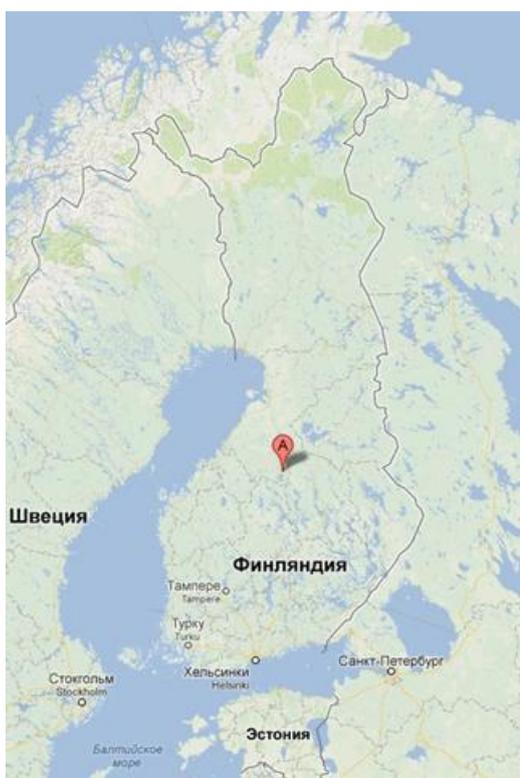


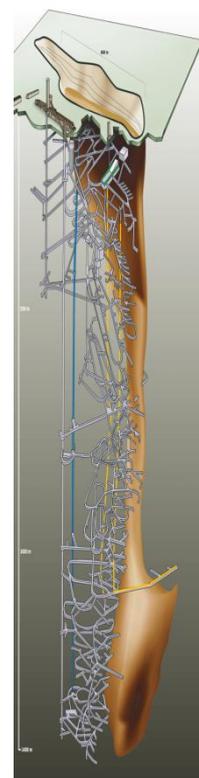
Рисунок 3.5. Схематичное описание процесса водной экстракции. В конечном результате примеси переходят из жидкого сцинтиллятора в воду.

### 3.3. Содержание изотопа $^{14}\text{C}$ в жидких органических сцинтилляторах. Низкофоновая лаборатория в шахте Пюхасалми

Шахта Пюхасалми расположена в Центральной Финляндии, максимальная глубина шахты составляет  $\sim 1440$  м, что соответствует  $\sim 4100$  м.в.э (метров водного эквивалента), рисунок 3.6. Уникальное расположение Пюхасалми подходит для проведения крупномасштабных подземных экспериментов нового поколения. Она была выбрана в качестве предпочтительного места для крупномасштабной нейтринной обсерватории, на базе которой планировалось создать проект LAGUNA [60] – нейтринный эксперимент с длинной базой и многоцелевой проект LENA [8] в области физики нейтрино низких энергий. К сожалению, ни один из этих проектов не получил финансирования.



а)



б)

Рисунок 3.6. Географическое месторасположение шахты Пюхасалми (а) и ее вертикальный разрез (б).

Новая низкофоновая лаборатория в Пюхасалми, рисунок 3.7, начала свою работу в начале 2017 года. Эта лаборатория снабжена вентиляцией, электричеством и связана с лабораторией на поверхности с помощью оптоволоконного кабеля. Благодаря системе вентиляции концентрация радона в лаборатории составляет  $\sim 20$  Бк/м<sup>3</sup>. Было измерено содержание радиоактивных изотопов <sup>38</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K в породах, образующих стенки лаборатории. Измерения образцов породы выполнены В.В. Казаловым в низкофоновой лаборатории в Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН с помощью германиевого детектора высокой чистоты:

$$^{238}\text{U} \leq (7.8 \pm 0.3) \times 10^{-8} \text{ г/г}$$

$$^{232}\text{Th} \leq (7.6 \pm 1.5) \times 10^{-8} \text{ г/г}$$

$$^{40}\text{K} \leq (1.69 \pm 0.02) \times 10^{-7} \text{ г/г}$$



Рисунок 3.7. Низкофоновая лаборатория в шахте Пюхасалми.

Кривая поглощения мюонов, измеренная [61] на различных глубинах шахты, показана на рис. 3.8. Интегральный поток мюонов на глубине 1390 м,

немногом выше уровня низкофоновой лаборатории, равен:  $F=(1.1\pm 0.1)\times 10^{-4}$   $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$  [61].

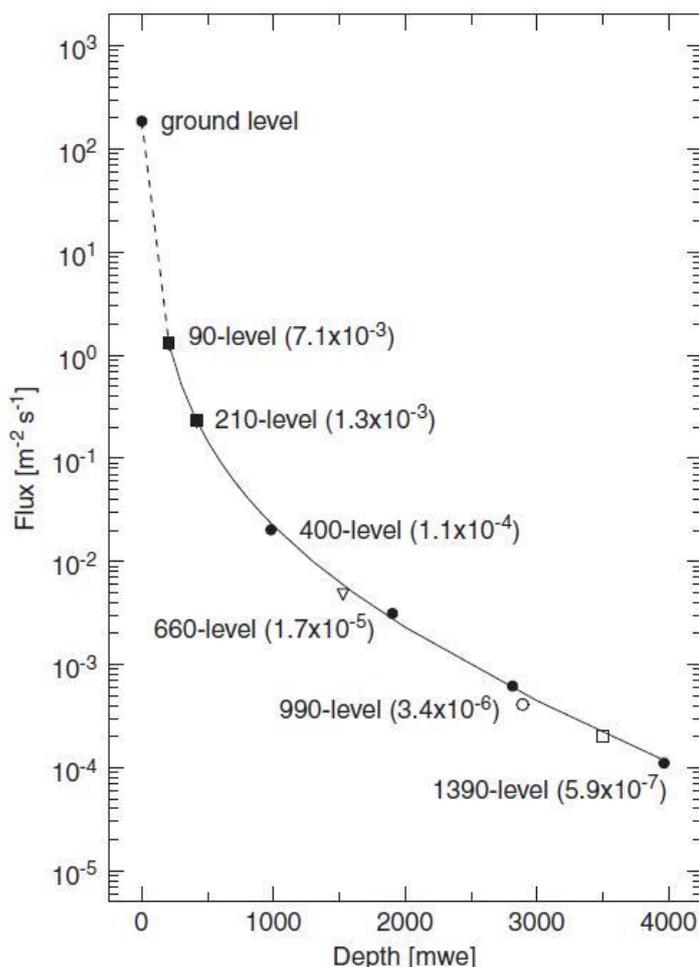


Рисунок 3.8. Кривая поглощения мюонов в шахте Пюхасалми [61].

В низкофоновой лаборатории была начата серия измерений, в ходе которых определялась концентрация  $^{14}\text{C}$  в нескольких образцах жидких сцинтилляторов. В лаборатории была разработана и сконструирована специальная установка с целью измерения отношения  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ .

Бета-распад долгоживущего радиоактивного  $^{14}\text{C}$  является основным источником фона для измерений нейтрино низких энергий ( $E \sim 300$  кэВ) с использованием ультрачистых жидкосцинтилляционных детекторов [8]. О самой низкой концентрации  $^{14}\text{C}$  сообщала коллаборация Bogerino для псевдокумола (PC), которая составляет  $\sim 2 \times 10^{-18}$  г/г [62]. Есть еще три

опубликованных результата для концентрации  $^{14}\text{C}$  для РХЕ и смеси РС с додеканом с самым высоким значением  $\sim(12,6\pm 0,4)\times 10^{-18}$  г/г [63], [64], [65]. Результаты измерений приведены в таблице 3.2. В настоящее время предпочтительным растворителем для нового поколения больших детекторов нейтрино является LAB.

Таблица 3.2. Результаты измерений отношения  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  в различных экспериментах.

Концентрация $^{14}\text{C}$ ( $\times 10^{-18}$ )	Жидкий сцинтиллятор и флуорент	Эксперимент	Ссылка
1.94 $\pm$ 0.09	РС+PPO	Borexino CTF	[62]
9.1 $\pm$ 0.4	РХЕ+p-Tr+ $\beta$ - MSB	Borexino CTF	[63]
3.98 $\pm$ 0.94	РС- Dodecane+PPO	KamLAND	[64]
12.6 $\pm$ 0.4	РХЕ+PPO	Специализированная установка	[65]

Концентрация  $^{14}\text{C}$  в LAB еще не измерена с достаточной чувствительностью. Лаборатория в Пюхасалми – одна из площадок, где строится специальная установка для таких измерений. Данная лаборатория предназначена для проведения систематического анализа проб различного происхождения и состава с целью определения концентраций  $^{14}\text{C}$  ниже  $10^{-18}$  для использования, например, в таких экспериментах как SNO+ и JUNO.

Максимальная энергия ( $Q_{\beta}$ ) бета-распада  $^{14}\text{C}$  относительно мала,  $Q_{\beta} = 156$  кэВ. Следовательно, можно просто снизить скорость счета детектора, установив соответствующую пороговую энергию. Тем не менее, слишком высокая концентрация  $^{14}\text{C}$  в жидком сцинтилляторе может привести к эффекту наложения импульсов. Например, в детекторе Borexino, частота

срабатывания триггера в значительной степени определяется изотопом  $^{14}\text{C}$  [18].

Жидкие сцинтилляторы, как и другие продукты нефтехимии, синтезируются из сырого газа или нефти, добываемых из глубоких геологических месторождений, где ожидаемое остаточное содержание космогенного  $^{14}\text{C}$  очень низко. Следовательно, на основании анализа соотношения  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  существует возможность достичь низкой концентрации  $^{14}\text{C}$  (ниже  $10^{-18}$ ) путем тщательного выбора газового месторождения [66].

Тщательные измерения концентраций  $^{14}\text{C}$  в настоящее время проводятся одновременно в двух глубоких подземных лабораториях: в Баксанской нейтринной обсерватории (БНО) [67], и в новой низкофоновой лаборатории в Пюхасалми [68].

Метод ускорительной масс-спектрометрии (УМС) [69] позволяет измерять концентрации изотопов на уровне  $10^{-15}$ . Для исследования концентрации  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах ниже  $10^{-15}$  была разработана специальная экспериментальная установка, рис. 3.9а. Центральная часть установки состоит из двух низкофоновых фотоумножителей (ETL9302В диаметром 3 дюйма), рис.3.9в, двух световодов из полиметилметакрилата и кварцевого сосуда (рис. 3.9б) объемом 1,6 л. Сосуд и световоды обернуты пленкой VM2000 с высоким коэффициентом отражения.

Защита от фона гамма-квантов и нейтронов осуществляется слоями меди и свинца толщиной 5 см и 15 см соответственно вокруг центральной части. Для термализации нейтронов от окружающей породы также может использоваться слой парафина толщиной 10 см. Центральная часть установки продувается азотом, чтобы уменьшить фон от радона. Общая схема установки показана рис. 3.10.

Система сбора данных разработана с использованием платы DRS4v5 разработанная и произведенная в PSI, Швейцария [70]. Выходные сигналы с двух фотоумножителей поступают непосредственно на входы платы DRS4, которая подключена к компьютеру через разъем USB. DRS4 оцифровывает

форму импульса в 10-битном диапазоне с шагом 0,2 нс и максимальной частотой дискретизации 5 ГС/с. Для питания фотоумножителей используется двухканальный высоковольтный блок питания NHQ 203M HV производства Iseg Spezialelektronik GmbH, Германия.

Собственный радиоактивный фон фотоумножителей ETL9302B установки был измерен в низкофоновой лаборатории БНО ИЯИ РАН В.В. Казаловым с помощью германиевого детектора высокой чистоты. Содержания  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  составляет:

$$^{238}\text{U} \leq 220 \text{ mBq/PMT}$$

$$^{232}\text{Th} \leq 24 \text{ mBq/PMT}$$

$$^{40}\text{K} \leq 400 \text{ mBq/PMT}.$$



а)



б)



в)

Рисунок 3.9. Фотография экспериментальной установки для исследования концентрации  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах в сборе: а) общий вид; б) кварцевая кювета; с) фотоумножитель ETL9302B.

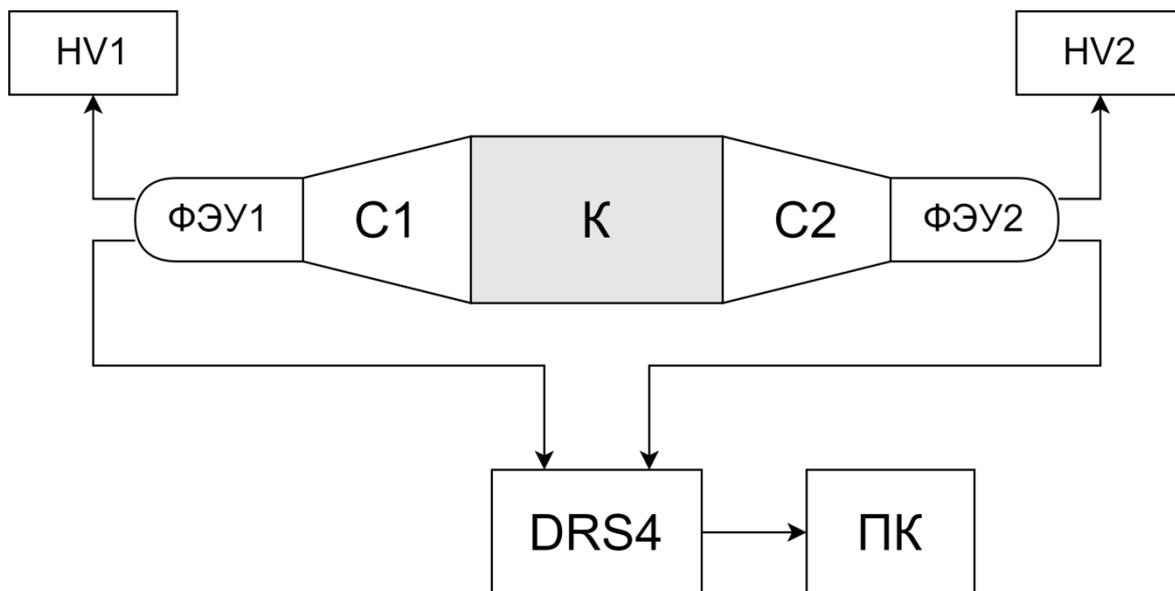


Рисунок 3.10. Общая схема установки по измерению концентрации  $^{14}\text{C}$  в линейном алкилбензоле. К – кварцевая кювета; С1 и С2 – оптические световоды из полиметилметакрилата; ФЭУ1 и ФЭУ2 – низкофоновые фотоумножители ETL9302В; HV1 и HV2 – высоковольтные источники питания NHQ 203М производства Iseg Spezialelektronik GmbH.

Калибровка фотоумножителей (измерения усиления, однофотозлектронного отклика и т.д.) производилась в лаборатории с помощью быстродействующего источника световых импульсов на базе синего светодиода и платы DRS4. На рис. 3.11 представлены зарядовые спектры однофотозлектронных импульсов фотоумножителя ETL9302В для различных значений высоковольтного напряжения питания. Черная линия соответствует 1100В; красная – 1150В и синяя – 1175В. При 1150В коэффициент усиления фотоумножителя составляет  $\sim 10^7$ .

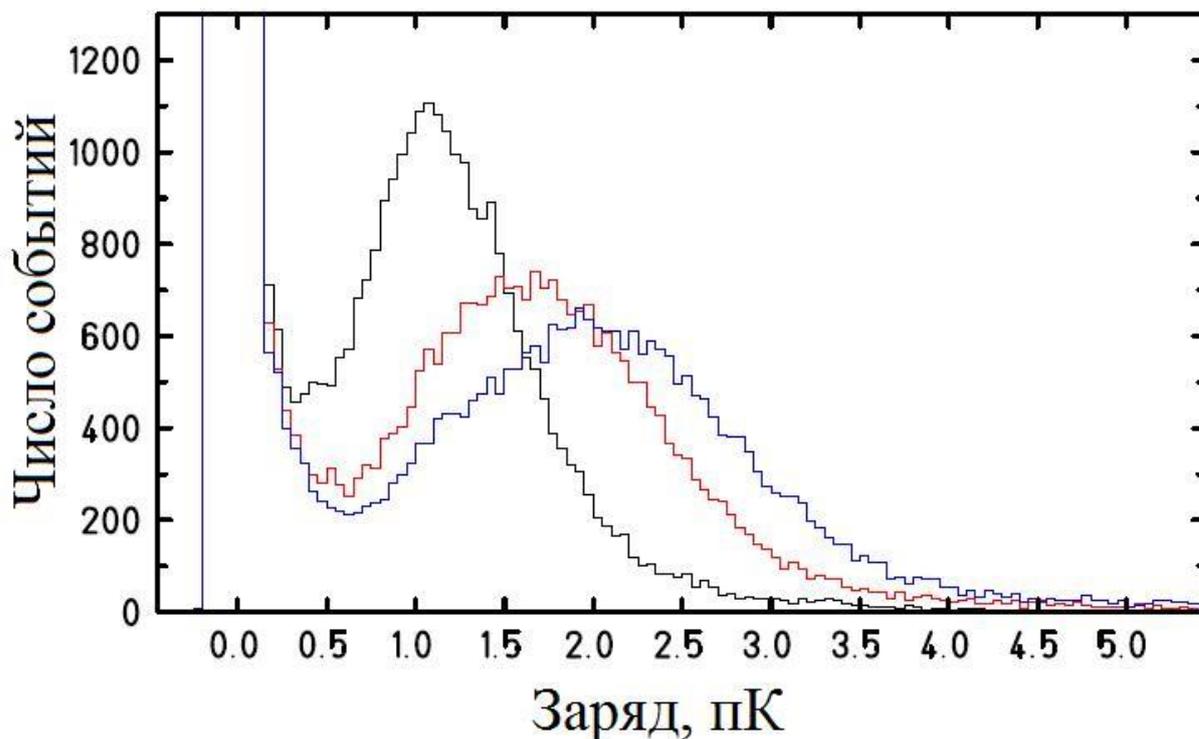


Рисунок 3.11. Зарядовые спектры однофотозлектронных импульсов фотоумножителя для различных значений высоковольтного напряжения питания (черная линия – 1100В; красная – 1150В и синяя – 1175В).

На рис. 3.12а показана установка на этапе частичной сборки внешней пассивной медно-свинцовой защиты от радиоактивного фона. Здесь хорошо видна внутренняя часть установки и внешний кожух, продуваемым сжатым воздухом для удаления радона. На рисунке 3.12б - установка с полностью собранной защитой, но без внешнего защитного кожуха.

Полностью собранная и ведущая набор данных установка представлена на рисунке 3.13.



а)



б)

Рисунок 3.12. Специализированная установка для измерения концентрации изотопа  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах собранная в низкофоновой лаборатории в шахте Пюхасалми: а) – с частично собранной внешней защитой от радиоактивного фона и внешним кожухом для очистки от радона; б) – с полностью собранной пассивной защитой, но без кожуха.



Рисунок 3.13. Полностью собранная и ведущая набор данных установка по измерению концентрации  $^{14}\text{C}$  в линейном алкилбензоле в низкофоновой лаборатории в шахте Пюхасалми.

Растворители образцов жидкого сцинтиллятора очищаются стандартным адсорбционным методом с использованием оксида алюминия, затем смешиваются с 3 г/л РРО и барботируются азотом для удаления кислорода. Энергетическая калибровка всей установки выполняется с использованием ряда радиоактивных источников ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$ ).

Измерения содержания  $^{14}\text{C}$  в различных образцах жидких сцинтилляторов интенсивно проводятся и пока нет окончательных экспериментальных результатов, полученных в новой низкофоновой лаборатории в шахте Пюхасалми.

## **Глава 4. Фотоэлектронные умножители для использования в жидких сцинтилляционных детекторах**

Широкое распространение сцинтилляционных детекторов было бы невозможно без наличия устройств для преобразования чрезвычайно слабых сцинтилляционных вспышек в соответствующий электрический сигнал. Фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) замечательно справляется с этой задачей, преобразуя световые сигналы в электрические импульсы.

В течение вот уже более восьмидесяти лет фотоэлектронные умножители используются для регистрации низкоэнергетических фотонов в ультрафиолетовом и видимом диапазонах, высокоэнергетических фотонов (рентгеновских и гамма-лучей) и ионизирующих частиц с использованием сцинтилляторов. Сегодня фотоэлектронный умножитель не имеет себе равных в детектировании света во многих областях экспериментальной физики. Число фотоэлектронных умножителей, используемых в современных крупномасштабных экспериментах, может достигать нескольких тысяч. Например, в эксперименте JUNO планируется установка около 18000 больших MCP-PMT (ФЭУ с МКП) диаметром 25 дюймов и около 25000 ФЭУ диаметром 3 дюйма [71].

Совместно с ООО «МЭЛЗ ФЭУ» нами были разработаны фотоэлектронные умножители с полусферическим фотокатодом диаметром 3 дюйма для крупномасштабных экспериментов в астрофизике частиц и в нейтринной физике, в частности [72].

На рис. 4.1 представлена фотография пилотного образца фотоэлектронных умножителей производства ООО «МЭЛЗ ФЭУ» с полусферическим фотокатодом диаметром 3 дюйма (76 мм).



Рисунок 4.1. Фотография образца разработанного 3-х дюймового полусферического фотоумножителя производства ООО «МЭЛЗ ФЭУ».

Такие 3-х дюймовые фотоумножители с полусферическим фотокатодом могут быть использованы в оптических модулях с множественными малогабаритными фотоумножителями, в так называемых “Multi-PMTs Optical Modules” (Km<sup>3</sup>NET/ORCA, PINGU), а также могут играть и самостоятельную роль, как в эксперименте JUNO. Как уже упоминалось в главе 1, в JUNO 3-х дюймовые фотоумножители применяются наряду с крупногабаритными 20-ти дюймовыми фотоумножителями для достижения “двойной калориметрии”, которая позволит достичь рекордного энергетического разрешения в эксперименте – 3%/МэВ.

#### 4.1. Измерительные стенды для исследования параметров фотоэлектронных умножителей

Для исследования параметров и тестирования фотоэлектронных умножителей были разработаны и оборудованы лабораторные стенды. С помощью разработанных стендов можно изучать следующие характеристики фотоумножителей:

- амплитудные и зарядовые (спектр однофотоэлектронных импульсов);
- временные (распределение времени пролета фотоэлектронов – «джиттер»);
- частоту счета темнового тока.

На рис. 4.2 представлена схема стенда для измерения амплитудных характеристик фотоумножителей.

Исследуемый фотоумножитель помещается в светонепроницаемый ящик. Для засветки фотокатода фотоумножителя используется пластиковый оптоволоконный кабель. Один конец оптического волокна направляется в центр фотокатода, второй конец подсоединяется к источнику света. Анодный сигнал фотоумножителя поступает на вход усилителя У1 (LeCroy 612AM). С одного выхода усилителя сигнал через линию задержки ЛЗ поступает на вход зарядовоцифрового преобразователя ЗЦП (LeCroy 2249W), со второго выхода усилителя сигнал поступает на вход дискриминатора Д1 (LeCroy 621BL). Сигнал с выхода дискриминатора Д1 подается на вход частотомера (НР 5316В). На дискриминаторе устанавливается порог  $0,25Q_{1pe}$ , где  $Q_{1pe}$  – средний заряд однофотоэлектронного импульса фотоумножителя. Для запуска источника света используется генератор (Г5-72). Синхроимпульс генератора через дискриминатор Д2 подается на стробирующий вход ЗЦП. Данные ЗЦП считываются с помощью крейт-контроллера КАМАК КК-009 (на рисунке не изображен) в персональный компьютер ПК.

На рис. 4.3 представлена схема стенда для измерения временных характеристик фотоумножителей. Исследуемый фотоумножитель помещается в светонепроницаемый ящик. Для засветки фотокатода ФЭУ

используется оптическое волокно. Один конец оптического волокна направляется строго в центр и перпендикулярно фотокатоду фотоумножителя, второй конец подсоединяется к источнику света. Анодный сигнал фотоумножителя поступает на вход усилителя У1 (LeCroy 612AM). С выхода усилителя сигнал подается на дискриминатор Д1 (LeCroy 621BL). Выходной сигнал дискриминатора Д1 через линию задержки ЛЗ поступает на вход СТОП времяцифрового преобразователя ВЦП (БПТ-12А1). Синхроимпульс генератора через дискриминатор Д2 подается на вход СТАРТ ВЦП.

Все электронные блоки измерительной системы обоих стендов выполнены в стандарте NIM и КАМАК. Управление набором данных осуществляется с помощью ПК через интерфейсную плату и крейт-контроллер КК-009. В качестве источника света во всех измерениях использовался быстродействующий светодиодный модуль, разработанный в нашей лаборатории для исследования амплитудных и временных параметров фотодетекторов, вакуумных и кремниевых фотоумножителей. Основой этого модуля является ультраяркие светоизлучающие диоды (светодиоды) InGaN/GaN и быстродействующий формирователь импульсов запуска этих светодиодов [73], построенный на быстром разряде конденсатора через комплементарную пару быстрых транзисторов (так называемая схема Дж. Капустинского [74]). Принципиальная электрическая схема это формирователя показана на рисунке 4.4. При исследованиях параметров разработанных фотоумножителей использовались следующие ультраяркие светодиоды: ультрафиолетовый NICHIA NSHU590E, излучающий на длине волны  $\lambda_{\max} \sim 375$  нм; фиолетовый G-pog GNL3014VC с  $\lambda_{\max} \sim 405$  нм и синий светодиод G-pog GNL3014BC с  $\lambda_{\max} \sim 470$  нм. Длительность световых импульсов составляла  $\leq 1$  нс [75]. На рисунке 4.5 представлен быстродействующий модуль световых импульсов. Модуль выполнен в корпусе NIM одинарной ширины.

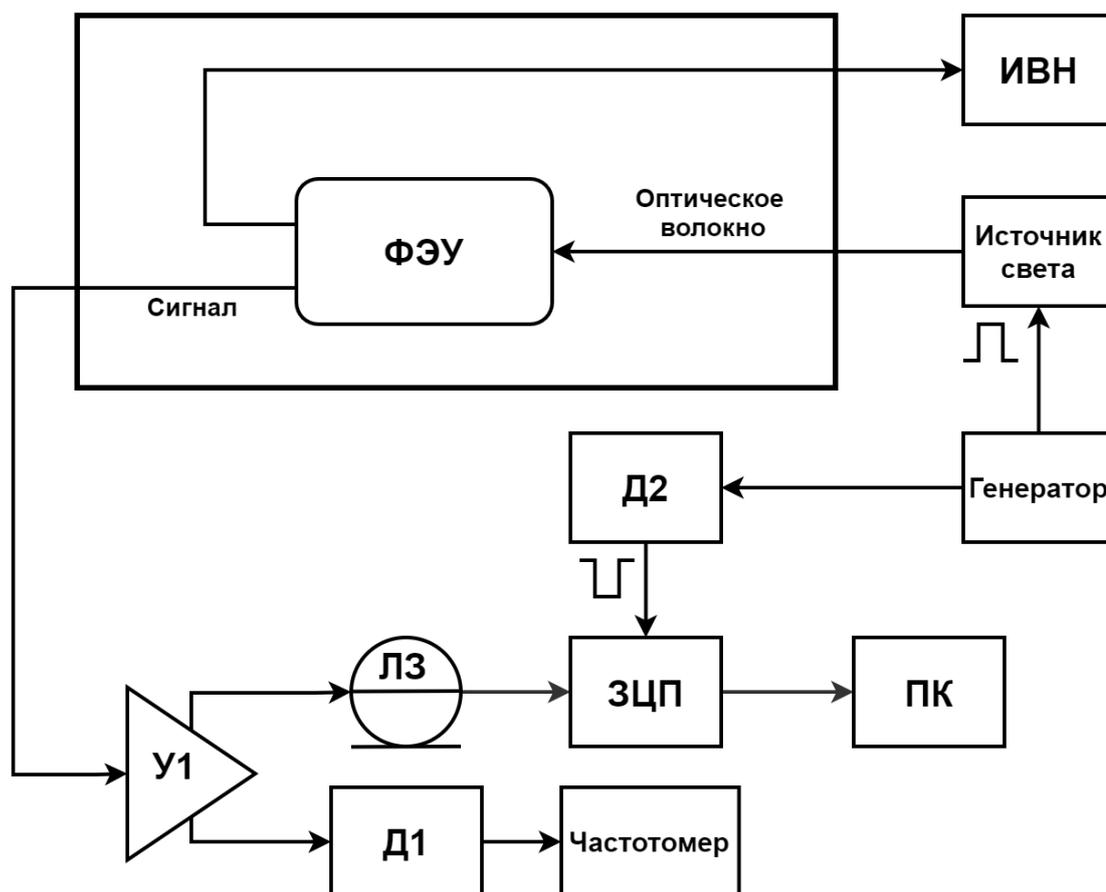


Рисунок 4.2. Функциональная схема измерительного стенда для исследования амплитудных характеристик фотоэлектронных умножителей. ФЭУ – исследуемый фотоумножитель; Источник света – быстродействующий источник световых импульсов на базе синего светодиода; Генератор – генератор импульсов Г5-72; У1 – быстродействующий усилитель импульсов LeCroy 612AM; ЛЗ – линия задержки; Д1 и Д2 – дискриминаторы импульсов LeCroy 621BL; ЗЦП – зарядовоцифровой преобразователь LeCroy 2249W; Частотомер – частотомер HP5316B; ПК – персональный компьютер.

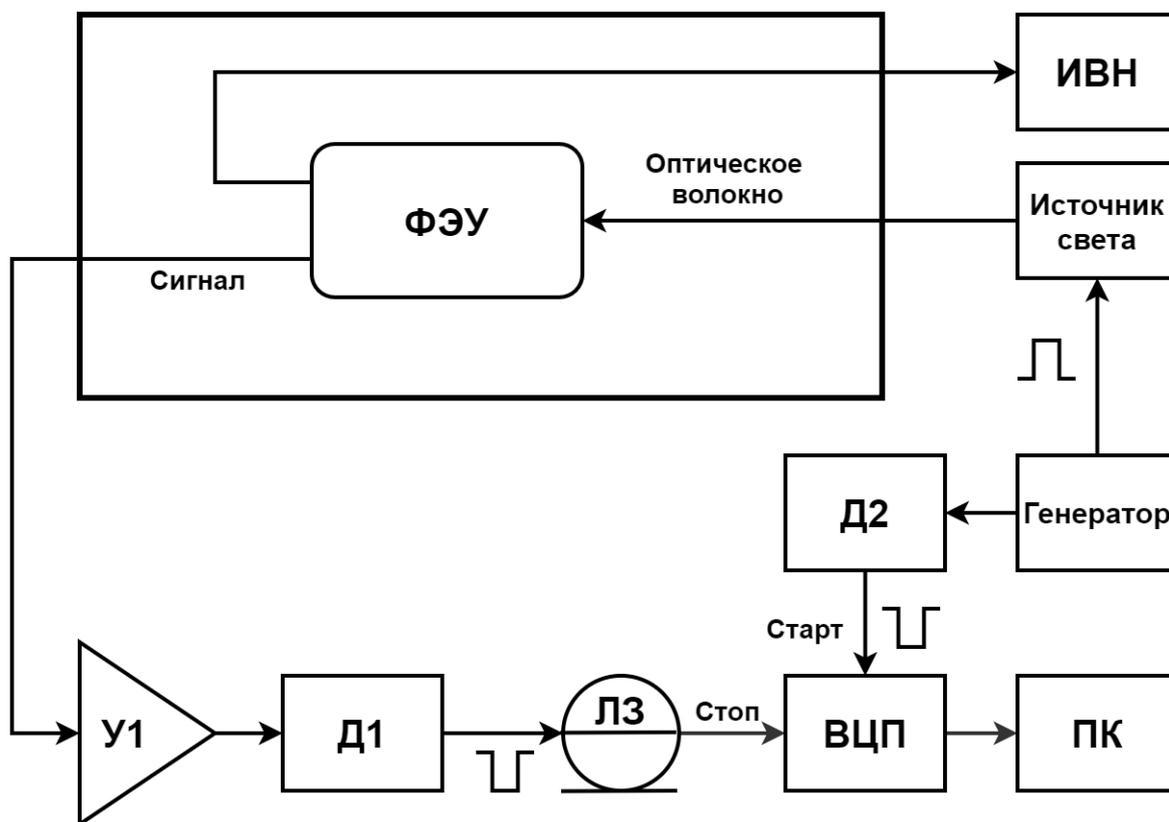


Рисунок 4.3. Функциональная схема измерительного стенда для исследования временных характеристик фотоэлектронных умножителей. ФЭУ – исследуемый фотоумножитель; Источник света – быстродействующий источник световых импульсов на базе синего светодиода; Генератор – генератор импульсов Г5-72; У1 – быстродействующий усилитель импульсов LeCroy 612AM; ЛЗ – линия задержки; Д1 И Д2 – дискриминаторы импульсов LeCroy 621BL; ВЦП – времяцифровой преобразователь БПТ12А1; ПК – персональный компьютер.

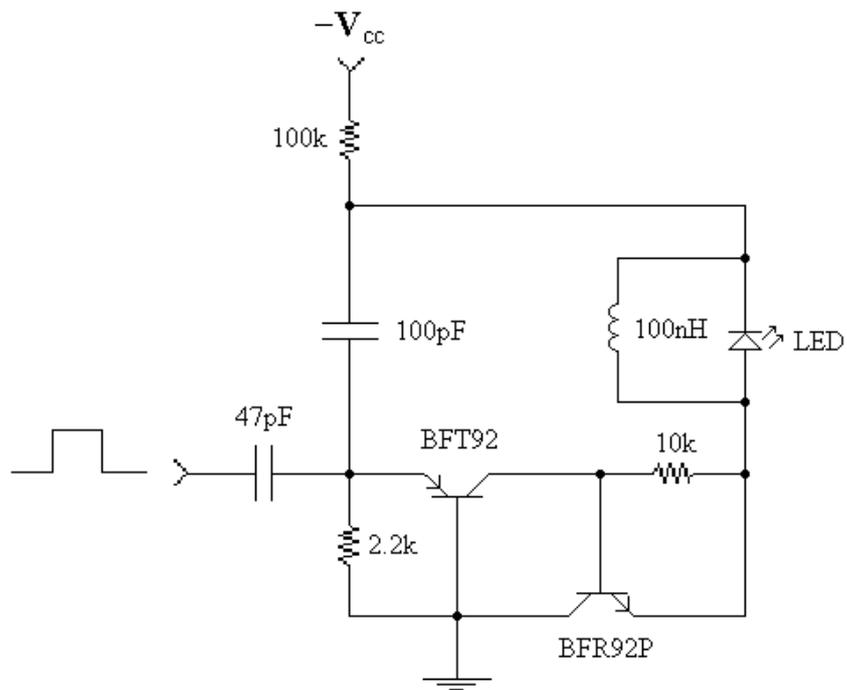


Рисунок 4.4. Быстродействующий формирователь импульсов запуска светоизлучающего диода [74], [75].



Рисунок 4.5. Быстродействующий модуль световых импульсов.

## 4.2. Исследование параметров разработанных полусферических фотоэлектронных умножителей для крупномасштабных сцинтилляционных экспериментов

Разработанный в ОАО МЭЛЗ ФЭУ совместно с ИЯИ РАН фотоэлектронный умножитель со стеклооболочкой из боросиликатного стекла с полусферическим фотокатодом диаметром 78 мм (~3 дюйма) оснащен полупрозрачным сурьмяно-калиево-цезиевым фотокатодом, электрической фокусировкой электронов и 10-ти диодной ковшеобразной умножительной системой с первым диодом большой площади. Обладает спектральной чувствительностью в диапазоне от 300 до 650 нм. Исследования амплитудных и временных параметров фотоумножителей проводились на измерительных стендах, описанных в параграфе 4.1 данной главы.

На рисунке 4.6 показана типичная зависимость квантовой эффективности фотокатода разработанных фотоумножителей от длины волны света. Максимум чувствительности достигается на длине волны  $\lambda_{\max} \sim 365$  нм и составляет  $\eta \sim 33\%$ . Равномерность чувствительности фотокатода и анодная чувствительность фотоумножителя измерялась с помощью оптоволоконного кабеля по полю фотокатода. Размер точки засветки на фотокатоде для отдельного измерения составлял  $\sim 1$  мм. Измерения велись по двух разрезах. Один разрез был ориентирован параллельно поверхности первого диода, а второй – поперек поверхности первого диода. На рисунке 4.7 представлены результаты измерений анодной чувствительности в двух разрезах. Здесь угол отсчитывается из центра сферической поверхности, образованной поверхностью фотокатода фотоумножителя. Угол  $50^\circ$  соответствует краю рабочей чувствительной области фотокатода. Пустые кружки ( $\circ$ ) – разрез параллельно поверхности 1-го диода; черные кружки ( $\bullet$ ) – поперек поверхности 1-го диода.

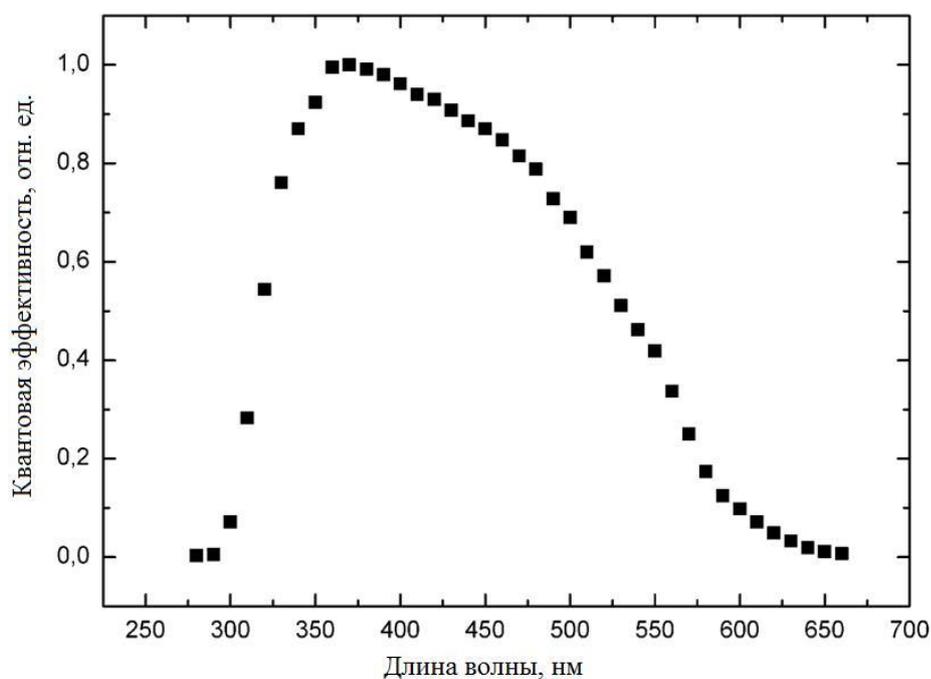


Рисунок 4.6. Зависимость квантовой эффективности фотокатода разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей от длины волны света.

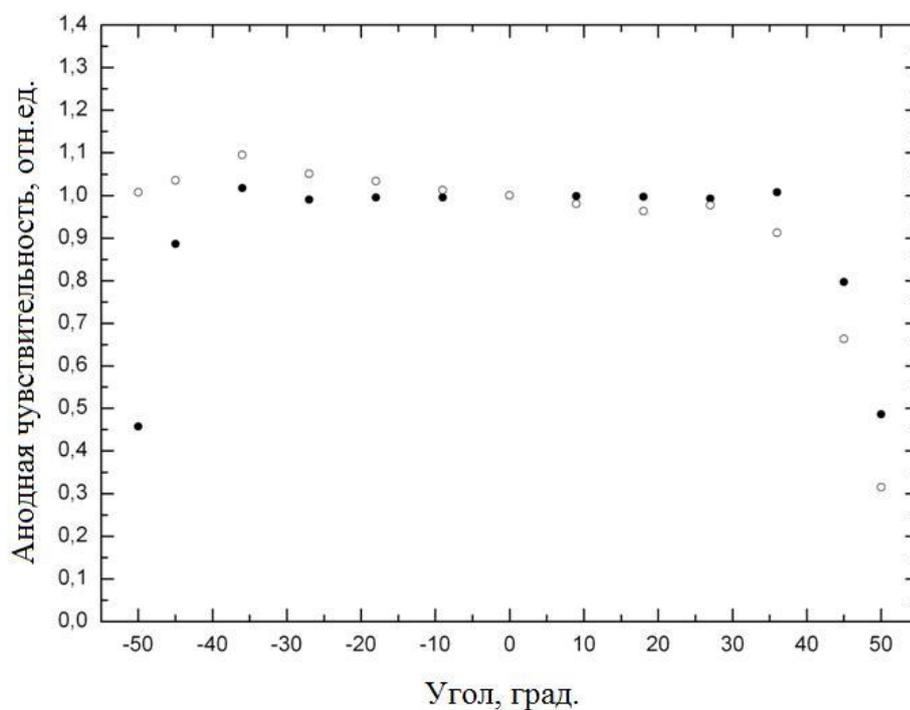


Рисунок 4.7. Зависимость анодной чувствительности разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей от точки засветки на фотокатоде. ○ – разрез параллельно поверхности 1-го динода; ● – поперек поверхности 1-го динода.

Зарядовый спектр однофотозлектронных импульсов является одной из важнейших и показательных характеристик фотоумножителей, поскольку в экспериментах часто приходится сталкиваться с очень слабыми световыми сигналами. Наличие пика, так называемого “однофотозлектронного пика”, с хорошим разрешением в зарядовом спектре однофотозлектронных импульсов свидетельствует о высокой эффективности регистрации фотозлектронов диодной системой в данном фотоумножителе. А это, в свою очередь, приводит к высокой эффективности детектирования фотонов (PDE – Photon Detection Efficiency). Однофотозлектронный уровень засветки фотокатода фотоумножителя получается уменьшением амплитуды светового сигнала до уровня, когда фотоумножителем регистрируется менее 10% импульсов светового источника. В этом случае по статистике Пуассона более 90% событий в спектре вне пьедестала будут обусловлены вылетом одного фотозлектрона с фотокатода фотоумножителя. Чем лучше однофотозлектронное разрешение, тем лучше разделяются пики от одного, двух, трех и т.д. фотозлектронов, в случае более интенсивной засветки фотокатода, так называемой “многофотозлектронной” засветки фотокатода фотоумножителя.

На рисунке 4.8 представлен типичный зарядовый спектр однофотозлектронных импульсов разработанных фотоумножителей с полусферическим фотокатодом. В зарядовых спектрах однофотозлектронных импульсов наблюдается четкий пик.

Как уже упоминалось, зарядовый спектр однофотозлектронных импульсов фотоумножителя во многом определяет качество фотоумножителя. Высокое значение отношения пик-долина однофотозлектронного спектра позволяет в некоторых случаях напрямую измерить коэффициент вторичной эмиссии первого диода. Однофотозлектронный пик позволяет легко определить усиление фотоумножителя, существенно облегчает установку порогов регистрирующей электронной системы, значительно облегчает калибровки

измерительных систем и т.д. Значения отношения пик-долина ( $P/V$  – peak-to-valley ratio) для исследованных фотоумножителей лежат в пределах  $P/V=1,7-5$ . На рис. 4.9 представлено распределение по отношению пик-долина для всех измеренных образцов разработанных фотоумножителей.

В зарядовом спектре многофотоэлектронных импульсов можно наблюдать пики от одного, двух, трех, четырех фотоэлектронов, рис. 4.10.

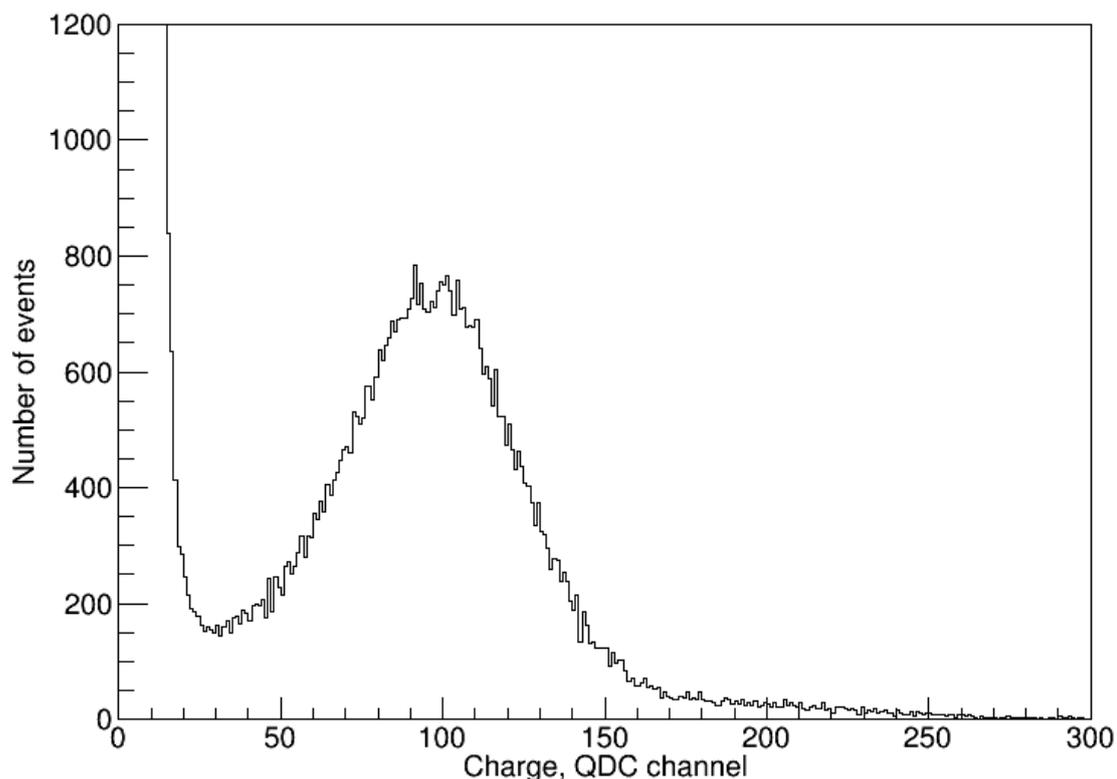


Рисунок 4.8. Зарядовый спектр однофотоэлектронных импульсов разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей.

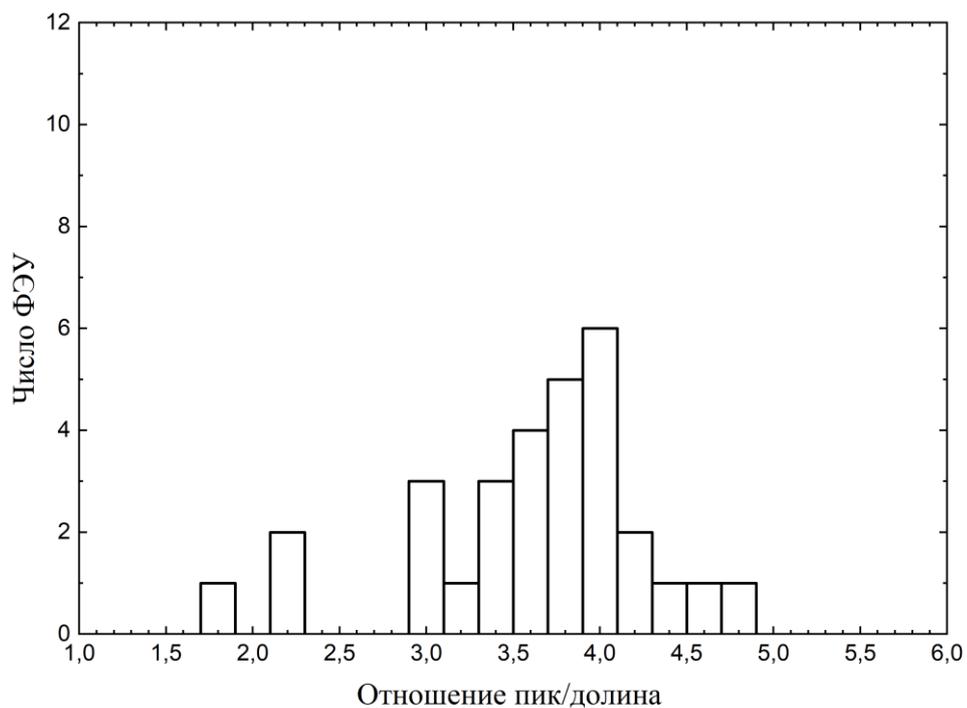


Рисунок 4.9. Распределение измеренных разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей по отношению пик/долина.

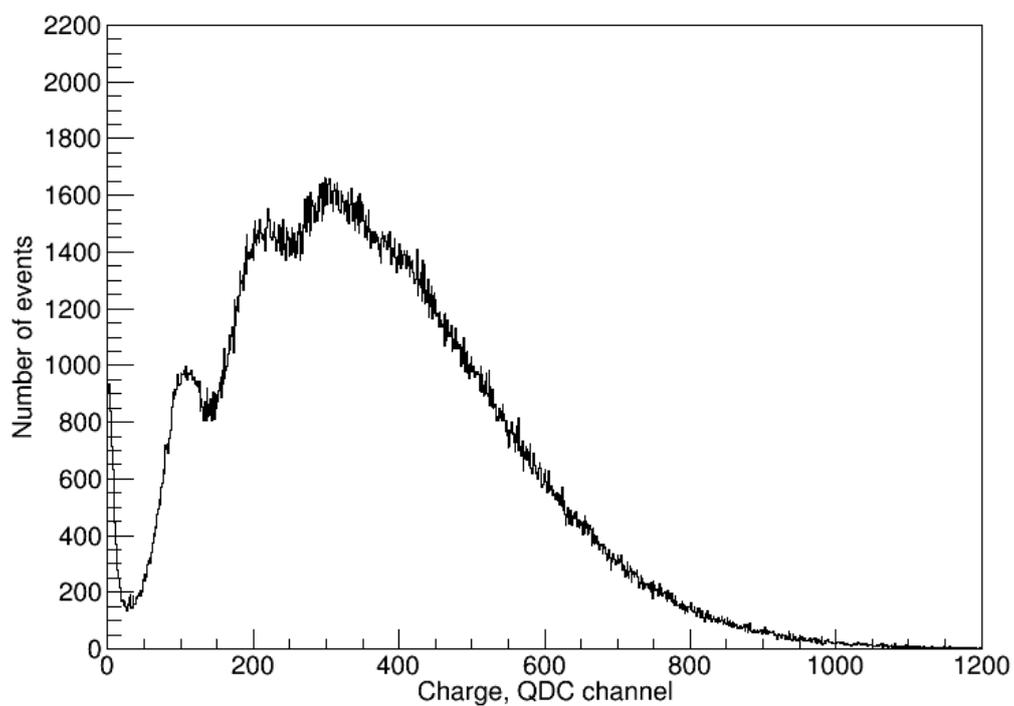


Рисунок 4.10. Зарядовый спектр многофотоэлектронных импульсов разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей.

Для всех исследованных образцов фотоумножителей также было измерено однофотозлектронное разрешение  $R_{1pe}$ , которое определяется формулой:

$$R_{1pe} = \frac{2,36 \sqrt{\sigma_{1pe}^2 - \sigma_{ped}^2}}{A_{1pe} - A}, \quad (4.1)$$

где  $A_{1pe}$  – положение однофотозлектронного пика,  $A$  – пьедестал;  $\sigma_{1pe}$  – среднеквадратичное отклонение однофотозлектронного пика, а  $\sigma_{ped}$  – среднеквадратичное отклонение пьедестала.

На рис 4.11 показан однофотозлектронный спектр с пьедесталом, фитированный функцией Гаусса.

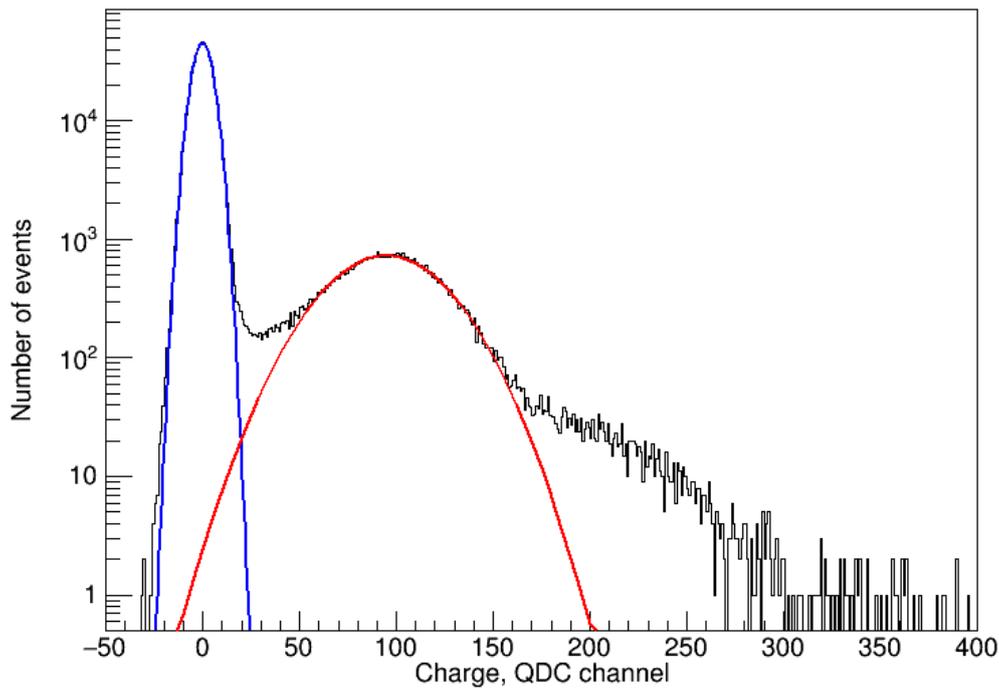


Рисунок 4.11. Фитированный спектр однофотозлектронных импульсов разработанного 3-х дюймового полусферического фотоумножителя. Синий цвет соответствует пьедесталу, красный – однофотозлектронному пику.

На рис. 4.12 представлено распределение по однофотозлектронному разрешению для всех исследованных образцов фотоумножителей. В самых лучших образцах однофотозлектронное разрешение составляет  $\sim 70\%$  (FWHM).

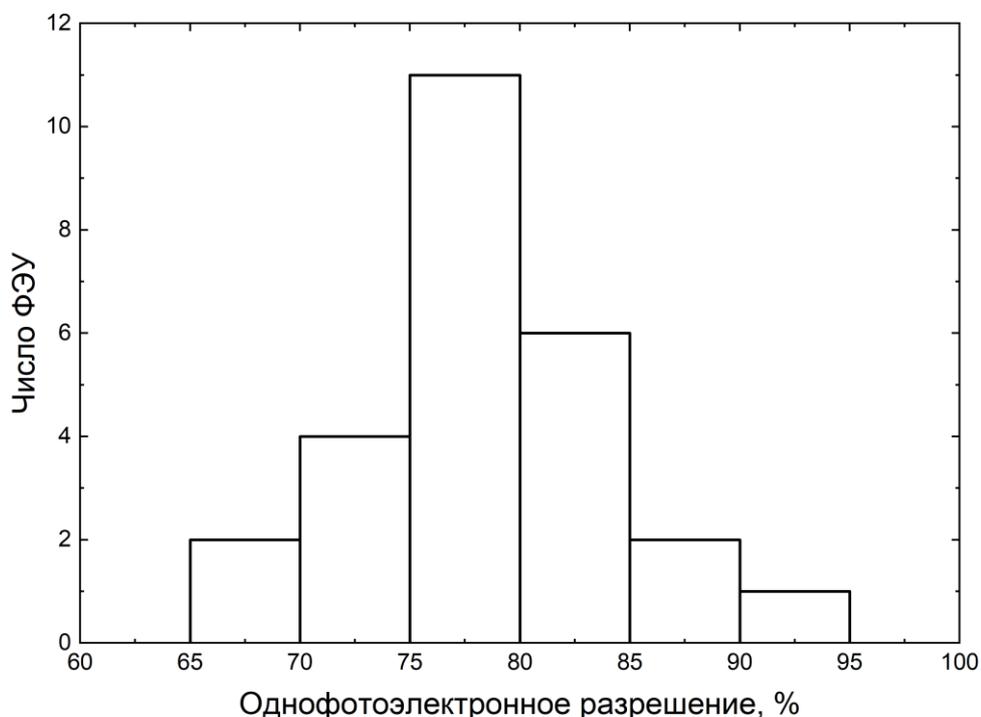


Рисунок 4.12. Распределение по однофотозлектронному разрешению для разработанных 3-х дюймовых полусферических фотоумножителей.

Темновой ток в основном является результатом термоэлектронной эмиссии, токов утечки и полевых эффектов. Типичные значения скорости счета темнового тока при пороге дискриминации  $0,25Q_{1pe}$ , где  $Q_{1pe}$  – средний заряд однофотозлектронного импульса, для исследованных фотоумножителей не превышают  $\sim 1$ кГц, для лучших образцов не превышает 200-300 Гц при комнатной температуре.

Временное разрешение фотоумножителей характеризуется следующим параметром – распределение времен пролета фотоэлектронов при однофотозлектронной засветке фотокатода. Иногда этот параметр называется “джиттер” (jitter) или TTS (Transit Time Spread).

Распределение времен пролета фотоэлектронов при однофотоэлектронной засветке фотокатода измерялось с размером пятна  $\sim 1$  мм в самом центре фотокатода. Уровень дискриминации сигнала составлял четверть фотоэлектрона –  $\sim 0,25Q_{1pe}$ , здесь  $Q_{1pe}$  – средний заряд однофотоэлектронного импульса. Коэффициент усиления фотоумножителя при этих измерениях –  $\sim 10^7$ . Скорость счета импульсов темнового тока при этом уровне дискриминации сигнала –  $< 1$  кГц. Распределение времен пролета фотоэлектронов подобно временному разрешению для ФЭУ и является очень важным параметром. Длительность световых импульсов составляла  $\Delta t \leq 1$  нс (FWHM).

Результаты измерения времени пролета фотоэлектронов для одного из образцов разработанного полусферического фотоумножителя представлены на рис. 4.13. Среднее значение времени пролета фотоэлектронов (джиттер) для разработанных фотоумножителей составляет  $\Delta t_{FWHM} \sim 3,2$  нс с разбросом значений от 2,8 до 4,4 нс.

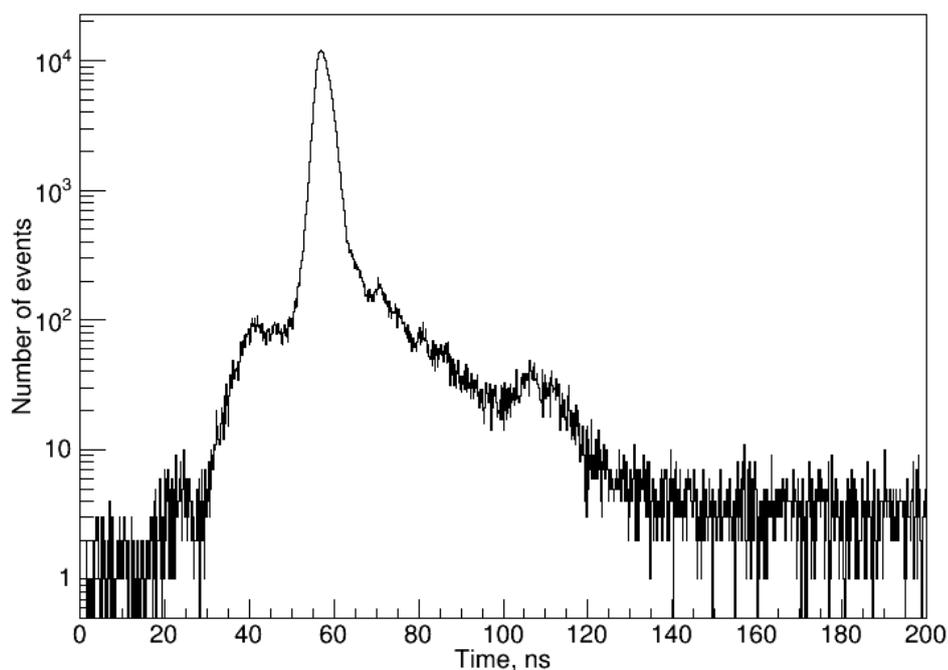


Рисунок 4.13. Распределение времени пролета фотоэлектронов при однофотоэлектронной засветке фотокатода разработанного 3-х дюймового полусферического фотоумножителя.

Подводя итог исследования параметров разработанных фотоумножителей, можно сказать, что полученные результаты являются многообещающими. Пилотные образцы разработанных фотоумножителей способны успешно конкурировать, как будет видно из следующего параграфа, с зарубежными аналогами фотоумножителей, а разработанная методика тестирования фотоумножителей с помощью описанных выше измерительных стендов способствует дальнейшему совершенствованию технологии производства высококачественных отечественных вакуумных фотоумножителей.

Надеемся, что результаты нашей работы помогут возрождению массового производства фотоумножителей в нашей стране.

#### **4.3. Исследования параметров фотоэлектронного умножителя HZC PHOTONICS XP72B22 диаметром 3 дюйма для эксперимента JUNO**

3-х дюймовый фотоэлектронный умножитель XP72B22 производства HZC PHOTONICS (Hainan Zhanchuang Photonics Technology Co., Ltd) с полусферическим фотокатодом был выбран для использования в эксперименте JUNO. В настоящее время произведено более 25 тысяч штук фотоумножителя XP72B22 для эксперимента JUNO [76].

Нами было измерено 12 фотоумножителей этого типа. Фотоэлектронный умножитель XP72B22 оснащен полусферическим бищелочным фотокатодом с чувствительностью в диапазоне длин волн от 290 до 700 нм. Зависимость квантовой эффективности фотокатода от длины волны света показана на рисунка 4.14. Максимальная чувствительность достигается на длине волны ~380 нм. Квантовая эффективность в максимуме чувствительности составляет ~28%.

На рис. 4.15 представлен зарядовый спектр однофотоэлектронных импульсов XP72B22. Отношение пик-долина однофотоэлектронного зарядового спектра для протестированных образцов фотоумножителя

XP72B22 в среднем составляет  $P/V=3$ . На рис. 4.16 представлен зарядовый спектр импульсов фотоумножителя XP72B22 при интенсивности засветки фотокатода в несколько фотоэлектронов. На данном спектре можно также идентифицировать пики до 4 фотоэлектронов.

Типичные значения частоты счета темнового тока при пороге дискриминации  $0,25Q_{1ре}$  фотоумножителя XP72B22 не превышает 2 кГц.

Результаты измерения времени пролета фотоэлектронов фотоумножителя XP72B22 представлены на рис. 4.17. Значение  $\Delta t_{FWHM}$  распределения времен пролета фотоэлектронов (джиттер) для данного типа фотоумножителя находится в диапазоне от 3,2 до 5,2 нс.

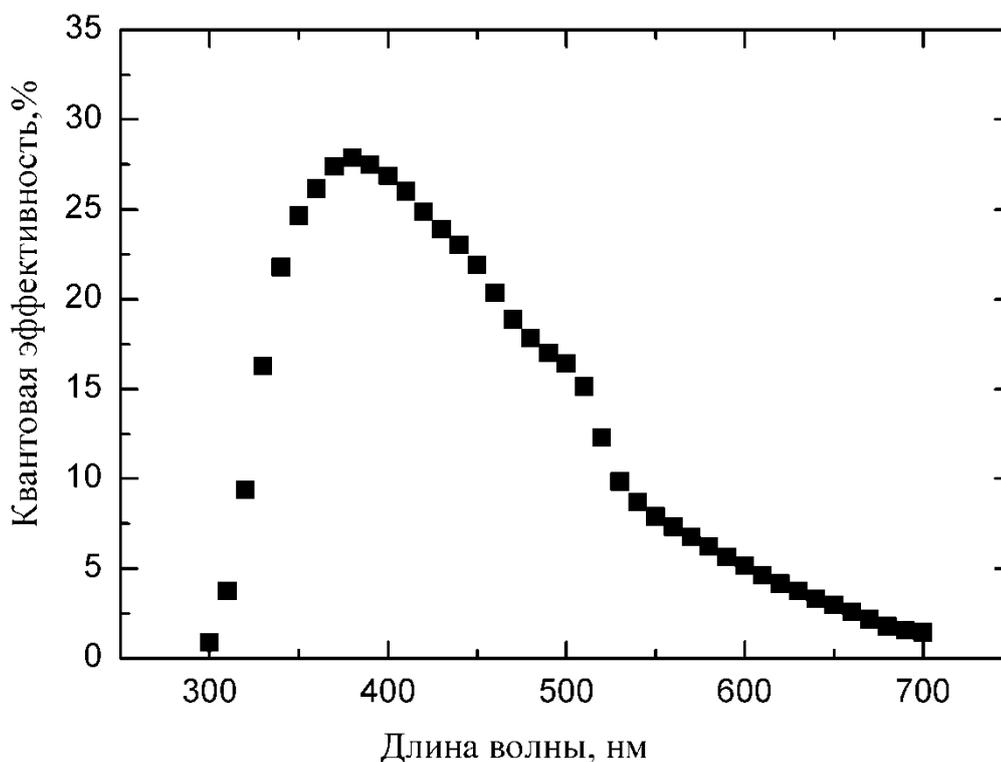


Рисунок 4.14. Зависимость квантовой эффективности фотоумножителя XP72B22 от длины волны света.

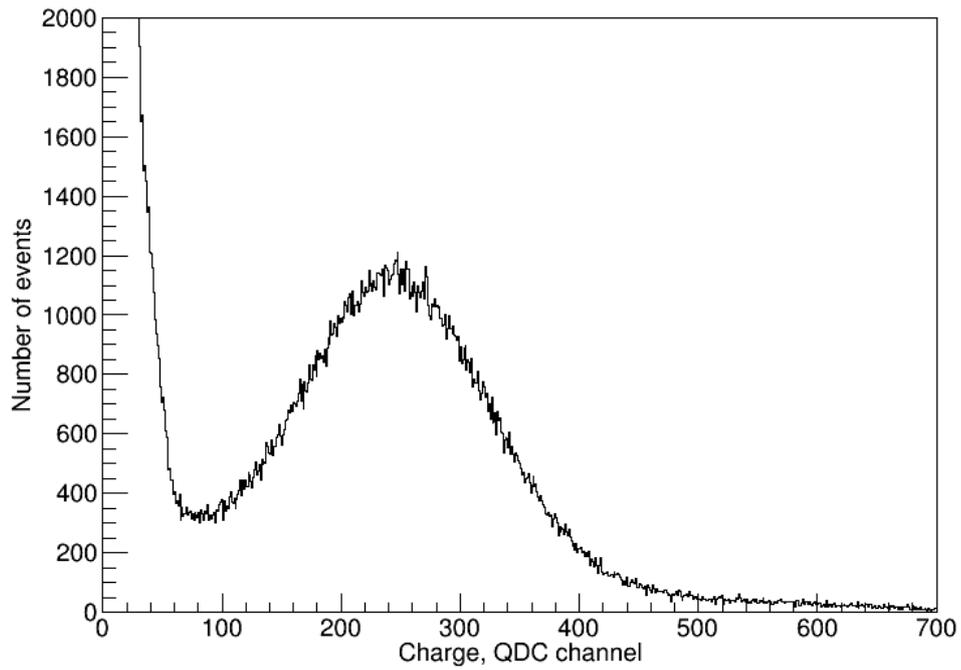


Рисунок 4.15. Зарядовый спектр однофотозлектронных импульсов фотоумножителя XP72B22.

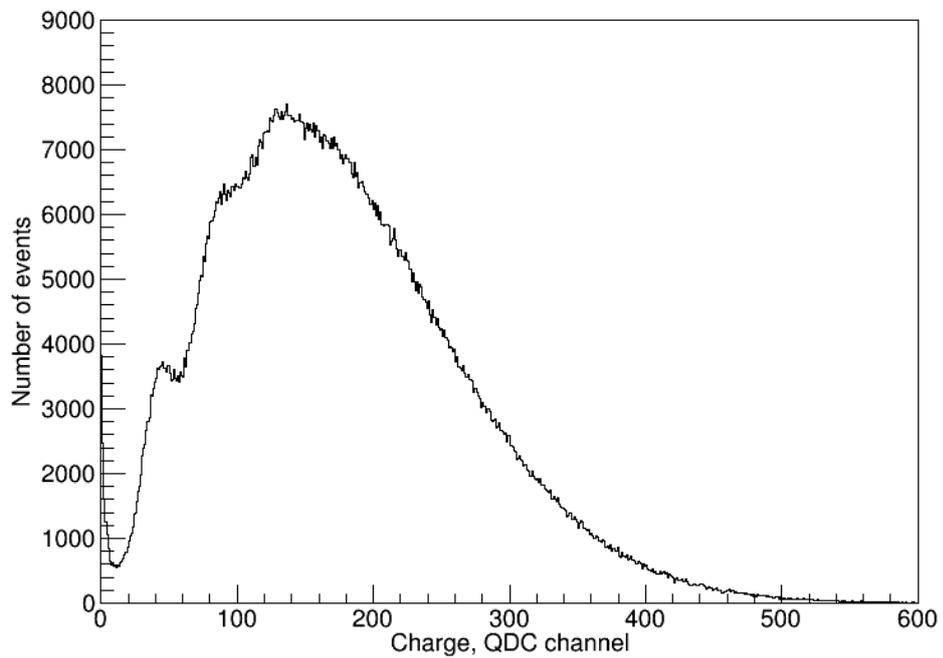


Рисунок 4.16. Зарядовый спектр многофотозлектронных импульсов фотоумножителя XP72B22.

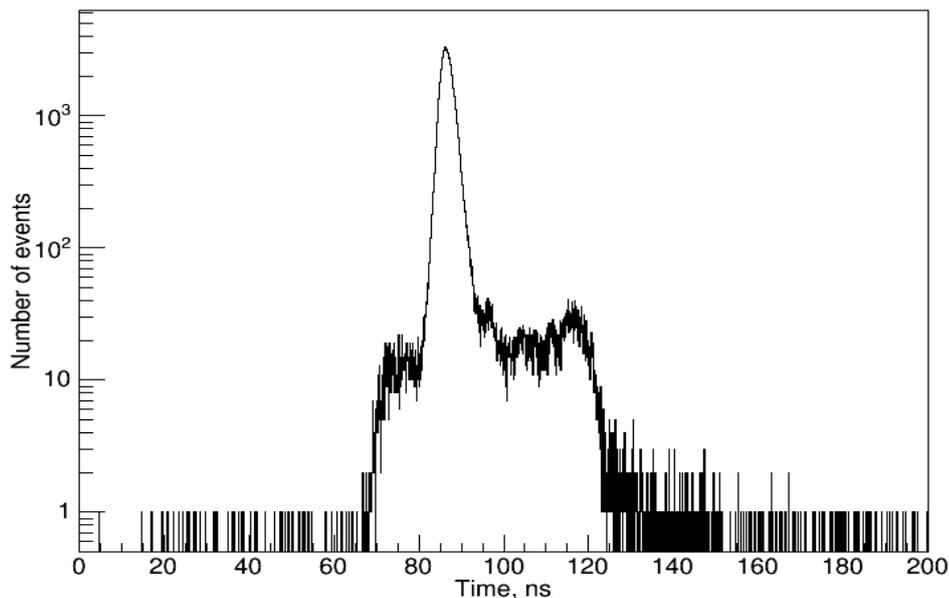


Рисунок 4.17. Распределение времени пролета фотоэлектронов фотоумножителя XP72B22 при однофотоэлектронной засветке фотокатода.

В настоящее время потребность в такого типа фотоумножителях в мире огромна. Как отмечалось ранее, уже в ближайшие годы 25 тысяч таких 3-х дюймовых фотоумножителей (XP72B22) будут работать в эксперименте JUNO [7], [71], [77]. В экспериментах Km3NET/ORCA [78] и PINGU [79] планируется использовать в составных оптических модулях (Multi-PMT OM) в общей сложности ~100-200 тысяч штук фотоумножителей такого типа. Большое количество 3-х дюймовых фотоумножителей планируется применить и в эксперименте Hyper-Kamiokande [80]. Возможно использование таких фотоумножителей для мюонных детекторов в экспериментах в физике космических лучей, а также в ускорительных экспериментах. Фотоумножитель такого типа будет представлять интерес и для других областей науки и техники, а также в промышленности.

Есть большие перспективы и для дальнейшего улучшения параметров этих фотоумножителей: повышение чувствительности фотокатодов, улучшение эффективности сбора фотоэлектронов по всему полю фотокатода, улучшение временного разрешения и т.д.

## **Глава 5. Высокоэффективные и быстрые неорганические сцинтилляционные кристаллы для исследования нелинейных эффектов в жидких сцинтилляторах**

Одним из недостатков жидких сцинтилляторов является нелинейность энергетического отклика из-за наличия эффектов гашения. Для прецизионных измерений энергетического спектра нейтрино (антинейтрино) в жидкосцинтилляционных экспериментах очень важно точно знать энергетический отклик сцинтиллятора. Для исследования эффектов нелинейности в жидких сцинтилляторах могут использоваться неорганические сцинтилляционные кристаллы с высоким световыходом и хорошей линейностью (или, по крайней мере, известной нелинейностью) в широком диапазоне энергий и относительно быстрой кинетикой свечения.

GAGG(Ce) – гадолиний-алюминий-галлиевый гранат ( $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ ), легированный церием новый сцинтилляционный кристалл, который зарекомендовал себя как многообещающий материал для различных сфер применения [81], [82]. На рис 5.1 представлены образцы кристаллов GAGG(Ce) размером  $5 \times 5 \times 5$  мм<sup>3</sup> и  $20 \times 20 \times 20$  мм<sup>3</sup>. Преимуществами данного сцинтиллятора является высокий световыход, который может достигать значений 60000 фотонов/МэВ и выше, отсутствие гигроскопичности. Максимум спектра излучения GAGG(Ce) лежит в области ~520 нм. Постоянная времени высвечивания может варьироваться от 50 до 150 нс. Недостатком является наличие значительного послесвечения, которое может наблюдаться в течение нескольких часов [83].

В рамках данной работы нами были исследованы энергетическое разрешение, кинетика свечения различных образцов кристаллов GAGG(Ce) размером  $5 \times 5 \times 5$  мм<sup>3</sup>, произведенных в России, Китае и Японии.

Для измерения энергетического разрешения образцов кристаллов GAGG(Ce) был разработан стенд, схема которого представлена на рис 5.2.

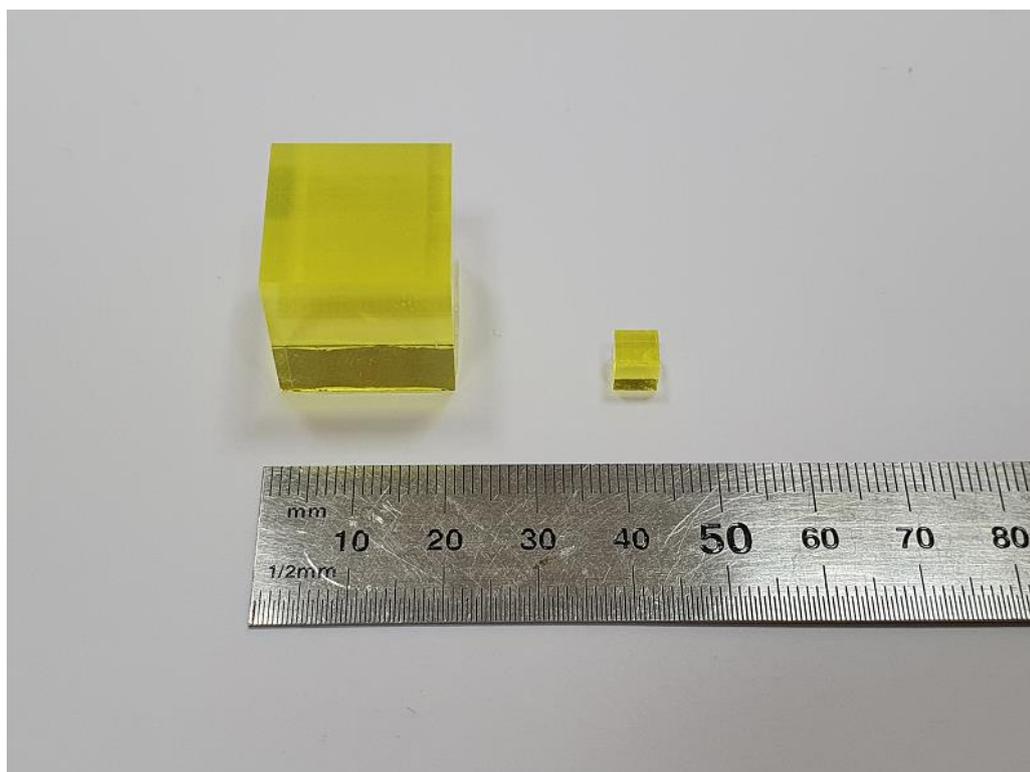


Рисунок 5.1. Фотография образцов кристаллических сцинтилляторов GAGG(Ce).

Кристалл GAGG(Ce) просматривается фотоэлектронным умножителем ФЭУ (XP5301/B производства фирмы Photonis). Для питания ФЭУ используется источник высокого напряжения ИВН (HARSHAW NV-25A). Для достижения максимального светосбора кристалл плотно обматывается тефлоновой лентой. Оптический контакт между входным стеклом фотоумножителя и кристаллом осуществляется при помощи оптической смазки. Анодный сигнал фотоумножителя поступает на вход спектрометрического усилителя У (тип 1101 стандарта КАМАК). Выходной сигнал с усилителя подается на вход АЦП (АЦП-712 стандарта КАМАК). Результаты преобразования АЦП считываются через крейт-контроллер КАМАК (КК-009) персональным компьютером ПК. Кристалл облучался источником  $\gamma$ -квантов с энергией  $\sim 662$  кэВ.

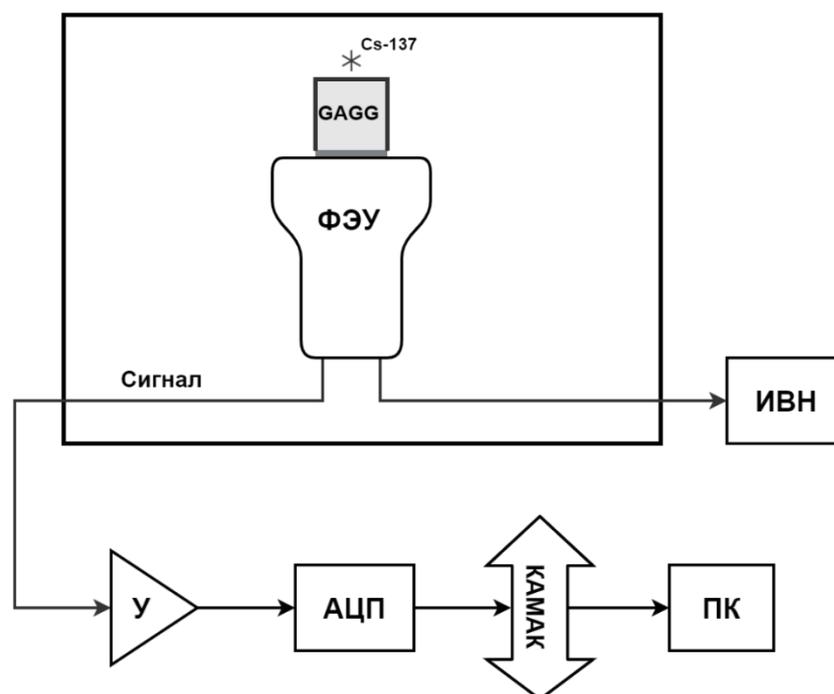


Рисунок 5.2. Функциональная схема стенда для измерения энергетического разрешения кристаллических сцинтилляторов GAGG(Ce). ФЭУ – фотоумножитель XP5301/B; GAGG – исследуемый кристалл GAGG(Ce); Cs-137 – источник гамма-квантов  $^{137}\text{Cs}$ ; У – спектрометрический усилитель (1101-КАМАК); АЦП – аналого-цифровой преобразователь АЦП-712; ИВН – источник высокого напряжения HARSHAW NV-25A; КАМАК – крейт-контроллер КАМАК; ПК – персональный компьютер.

Энергетическое разрешение является одним из важнейших параметров сцинтилляционного детектора. Энергетическое разрешение  $R$  определяется формулой

$$R = \frac{FWHM}{A_0} \quad (5.1)$$

где  $FWHM$  – ширина на полувысоте пика полного поглощения, а  $A_0$  – положение пика полного поглощения.

На рис. 5.3 представлены измеренные энергетические спектры образцов кристаллов GAGG(Ce) размером  $5 \times 5 \times 5 \text{ мм}^3$ . На основе этих данных

были получены значения энергетического разрешения для каждого образца кристалла. На рис. 5.4 показан пример обработанного спектра одного из образцов кристаллов GAGG(Ce), где сплошной красной линией обозначена фитирующая кривая. Значения энергетического разрешения были рассчитаны с использованием параметров фитирующей кривой.

В таблице 5.1 приведены полученные значения энергетического разрешения и относительного световыхода для всех исследованных образцов кристаллов GAGG(Ce) размером  $5 \times 5 \times 5$  мм<sup>3</sup>.

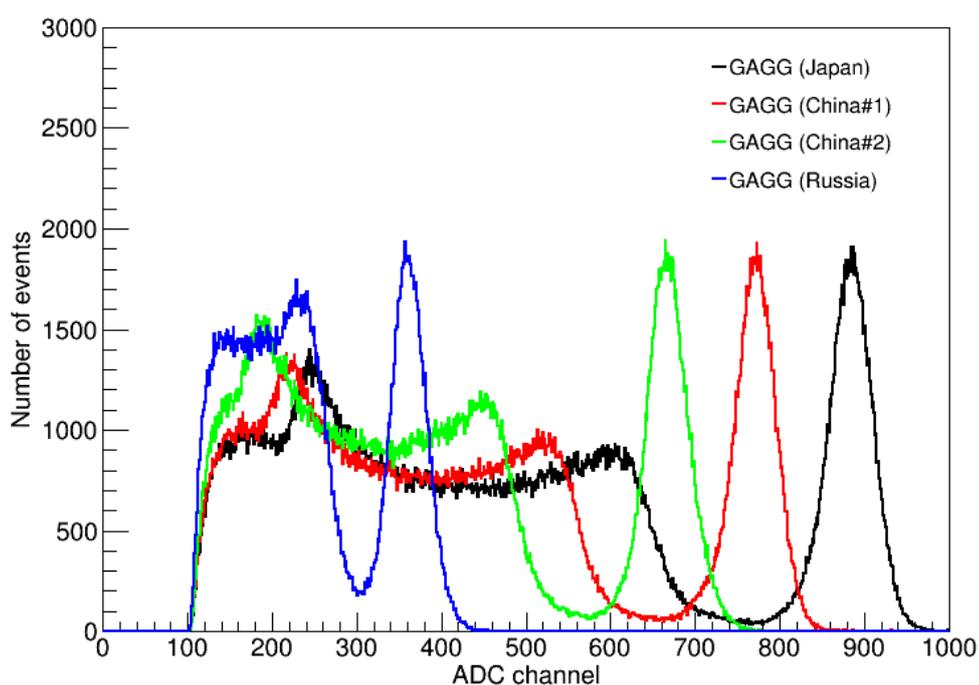


Рисунок 5.3. Энергетические спектры импульсов при облучении кристаллических сцинтилляторов GAGG(Ce)  $\gamma$ -квантами с энергией 662 кэВ ( $Cs^{137}$ ).

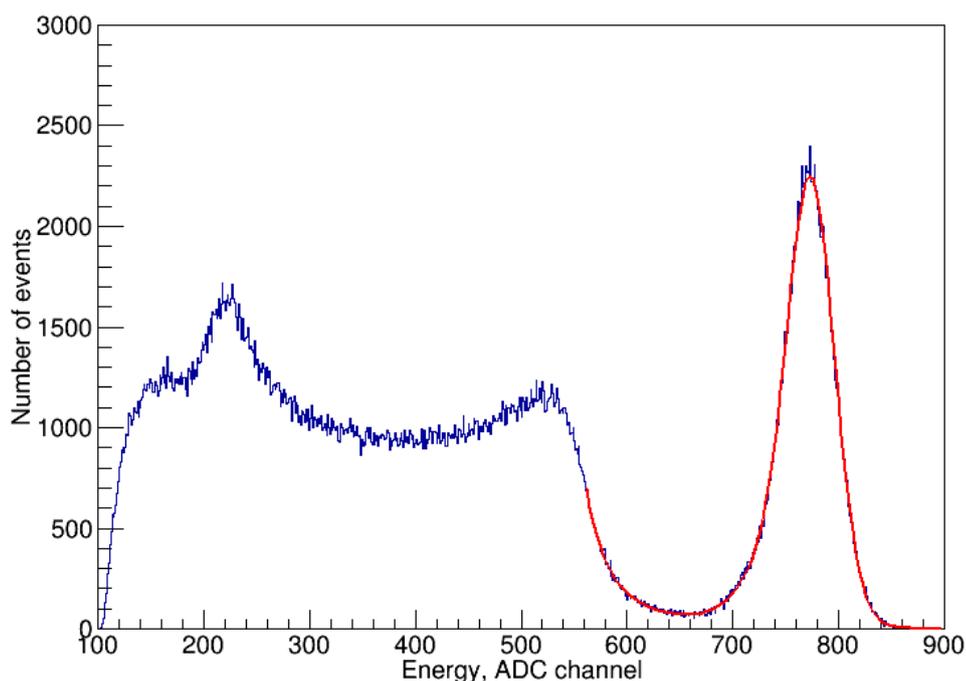


Рисунок 5.4. Фитированный энергетический спектр импульсов кристаллического сцинтиллятора GAGG(Ce).

Таблица 5.1. Энергетическое разрешение и световыход кристаллов GAGG(Ce).

Образец кристаллического сцинтиллятора	Энергетическое разрешение, %	Световыход, отн. ед.
1. GAGG(Ce)(Япония)	6,77	1
2. GAGG(Ce)(Китай) №1	7,17	0,87
3. GAGG(Ce)(Китай) №2	8,55	0,75
4. GAGG(Ce)(Россия)	13,7	0,41

На основе полученных данных можно сделать вывод, что наилучшее энергетическое разрешение и световыход показывает образец №1 – кристалл GAGG(Ce), произведенный в Японии. Значение энергетического разрешения  $R=6,77\%$  для данного кристалла не является предельным, поскольку энергетическое разрешение сцинтилляционного детектора также зависит от

характеристик фотодетектора (в данном случае ФЭУ XP5301/B, производства фирмы Photonis).

На рис. 5.5 также представлен энергетический спектр кристалла GAGG(Ce) (образец №1), полученный с помощью кремниевого фотоумножителя (SiPM) Hamamatsu MPPC S13360-6075CS с размером чувствительной площади 6×6 мм<sup>2</sup>. Значение энергетического разрешения образца кристалла GAGG(Ce) с использованием SiPM составляет R=3,37%. Измерения проводились с быстрым усилителем импульсов CAEN N978 и быстродействующим оцифровщиком CAEN N6370.

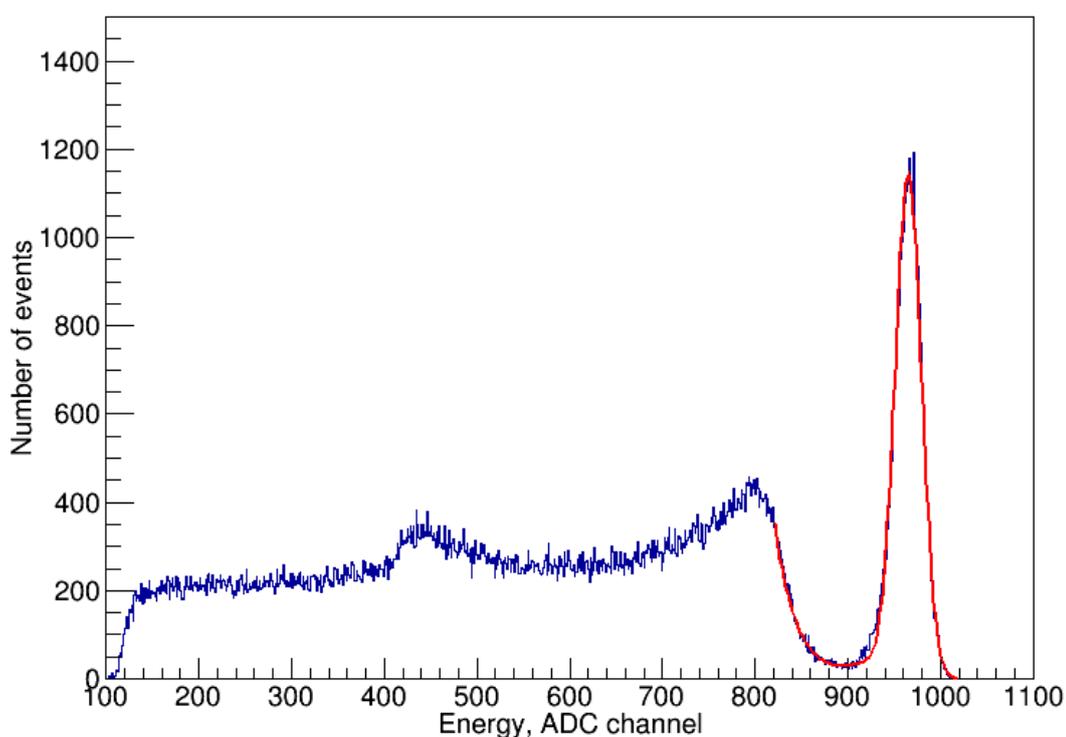


Рисунок 5.5. Энергетический спектр импульсов при облучении кристаллического сцинтиллятора GAGG(Ce)  $\gamma$ -квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ), полученный с помощью кремниевого фотоумножителя (SiPM) Hamamatsu MPPC S13360-6075CS.

Измерения кинетики свечения сцинтилляторов GAGG(Ce) проводились методом счета коррелированных во времени фотонов с использованием стенда, схема и описание которого представлены в главе 2 на рис. 2.8.

На рис. 5.5 представлены спектры кинетики сцинтиляционного свечения образцов кристаллов GAGG(Ce). Для каждого спектра были получены постоянные времени высвечивания. Подробные результаты измерения кинетики свечения кристаллов GAGG(Ce) приведены в таблице 5.2.

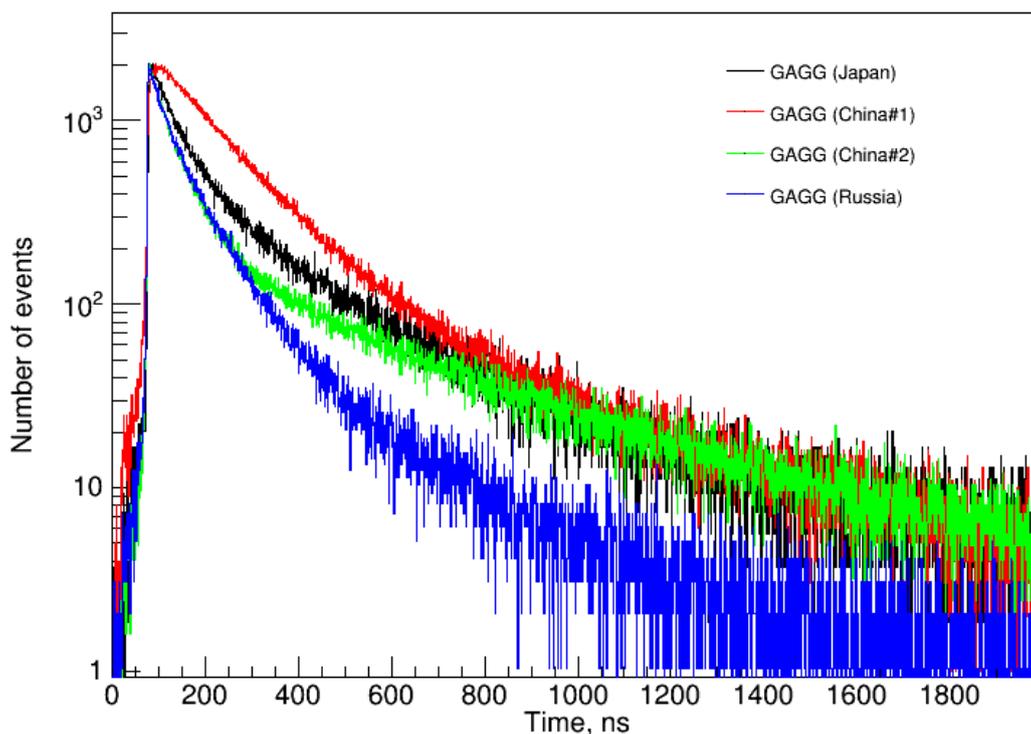


Рисунок 5.5. Кинетика сцинтиляционного свечения кристаллов GAGG(Ce).

Наиболее быстрой кинетикой свечения обладает кристалл GAGG(Ce), произведенный в России (образец №4), что является преимуществом данного образца. Недостатком данного образца является существенно более низкое по сравнению с другими образцами энергетическое разрешение, которое более чем в 2 раза уступает японскому кристаллу. Наиболее оптимальными характеристиками обладает кристалл GAGG(Ce), произведенный в Японии (образец №1), поскольку он имеет достаточно быструю кинетику свечения и показывает лучшее энергетическое разрешение и световыход из всех исследованных образцов.

Таблица 5.2. Постоянные времени высвечивания кристаллов GAGG(Ce).

Образец кристаллического сцинтиллятора	$\tau_1$ , нс	$\tau_2$ , нс	$\tau_3$ , нс	$\tau_4$ , нс
1. GAGG(Ce) (Япония)	43,38 (17,8%)	90,22 (24,7%)	295,03 (52,2%)	2857 (5,2%)
2. GAGG(Ce) (Китай) №1	140,4 (77,8%)	497,18 (21,8%)	-	-
3. GAGG(Ce) (Китай) №2	35,44 (15,2%)	65,72 (33%)	343,06 (40,5%)	1281 (11,3%)
4. GAGG(Ce) (Россия)	27,49 (13,1%)	81,79 (61%)	189,13 (18,9%)	488 (7%)

На рисунке 5.6 показана схема разрабатываемой нами установки по измерению нелинейности отклика жидкого сцинтиллятора. Образец исследуемого жидкого сцинтиллятора заливается в кювету К, которая просматривается фотоумножителем ФЭУ1. Образец облучается коллимированным пучком гамма-квантов от радиоактивного источника РИ. Испытавший комптоновское рассеяние в образце гамма-квант попадает в неорганический сцинтиллятор GAGG(Ce), который находится в оптическом контакте с фотоумножителем ФЭУ2. Выходные сигналы фотоумножителей ФЭУ1 и ФЭУ2 оцифровываются в быстродействующем оцифровщике импульсов DRS4. Данные оцифровщика считываются в персональном компьютере ПК. В комптоновском канале (сцинтиллятор GAGG и ФЭУ2) определяется энергия рассеянного гамма-кванта. По этому значению энергии гамма-кванта  $E_\gamma$  вычисляется энергия электрона  $E_e$ , на котором рассеялся гамма-квант при данном угле  $\theta$  между линией, соединяющей источник РИ с образцом К, и линией, соединяющей образец К со сцинтиллятором Сц (GAGG) по формуле для эффекта Комптона:

$$E_e = \frac{E_\gamma^2}{E_\gamma + \frac{m_e}{1 - \cos\theta}} \quad (5.2)$$

Изменяя этот угол, меняем и энергии рассеянных гамма-квантов и электронов. Сравнивая вычисленные энергии электронов с соответствующим откликом в исследуемом образце, можно построить зависимость отклика образца жидкого сцинтиллятора от энергии электрона и определить меру нелинейности отклика жидкого сцинтиллятора.

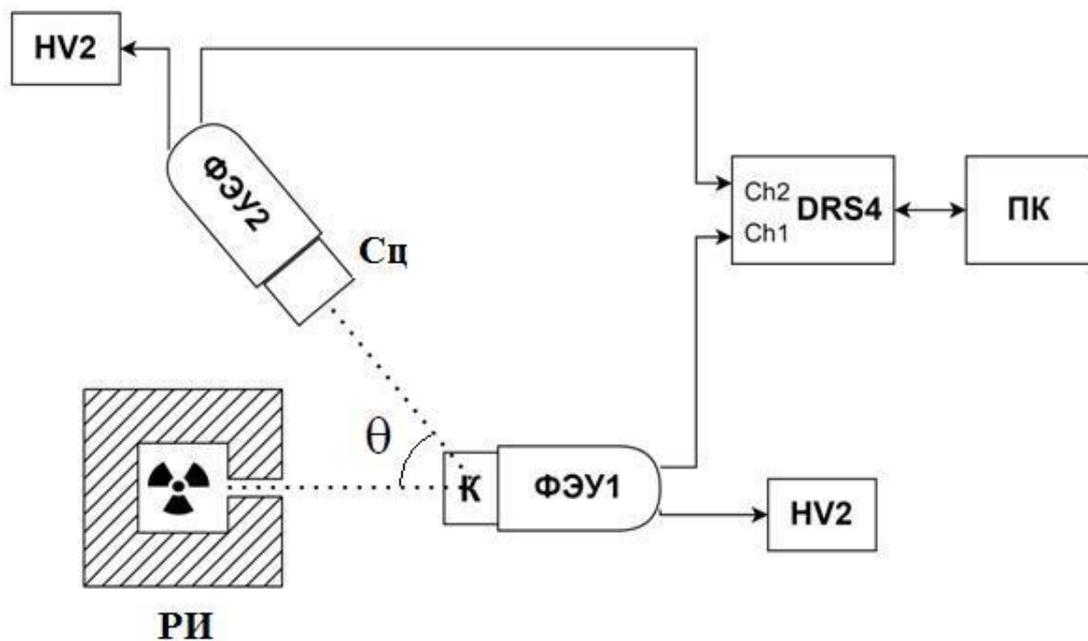


Рисунок 5.6. Схема установки для измерения нелинейности отклика жидких сцинтилляторов.

Параллельно можно измерить нелинейность отклика и с набором радиоактивных изотопов с энергиями гамма-квантов от 20 кэВ и выше для проверки и калибровки системы.

Подобные системы комптоновской спектроскопии для измерения нелинейности отклика жидких сцинтилляторов с использованием неорганических кристаллов  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$  и  $\text{NaI}(\text{Tl})$  создавались ранее [84], [85]. Однако, сцинтиллятор  $\text{GGAG}(\text{Ce})$  дешевле и доступнее, чем  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ , и имеет существенно более быструю кинетику свечения и больший световыход, чем  $\text{NaI}(\text{Tl})$ .

## Заключение

Основные результаты выполненного исследования:

1. Разработаны и созданы совместно с ИСПМ РАН жидкие сцинтилляторы с повышенным световыходом на основе новых кремнийорганических сцинтилляционных добавок и линейного алкилбензола для экспериментов следующего поколения в астрофизике частиц. Световыход новых сцинтилляторов в  $\sim 1,87 \pm 0,08$  раза превышает световыход сцинтилляторов с использованием PPO (при концентрации 4 г/л). При этом максимум спектра излучения сцинтиллятора приходится на  $\lambda_{\max} \sim 490$  нм, а кинетика свечения характеризуется постоянными временами высвечивания с  $\tau_1 = 10,1 \pm 0,5$  нс (82,3% от полного световыхода),  $\tau_2 = 49,6 \pm 7,3$  нс (9,6%),  $\tau_3 = 190,1 \pm 11,9$  нс (6,9%) при концентрации сцинтилляционной добавки 4 г/л.
2. Разработаны методы и средства исследования основных сцинтилляционных свойств жидких сцинтилляторов – относительного световыхода и кинетики свечения на базе быстродействующих фотоумножителей с фотокатодами с высокой квантовой эффективностью ( $\eta > 45\%$  на  $\lambda = 380$  нм и  $\eta > 22\%$  на  $\lambda = 490$  нм).
3. Разработаны совместно с ООО «МЭЛЗ ФЭУ» полусферические 3-дюймовые фотоэлектронные фотоумножители для крупномасштабных жидко-сцинтилляционных детекторов следующего поколения. Усиление фотоумножителя  $G = 10^7$  достигается при напряжении питания 1300-1400 В. Разрешение зарядового спектра однофотоэлектронных импульсов – 65%, отношение пик/долина спектра  $P/V = 3$ . Разброс времени пролета фотоэлектронов при однофотоэлектронной засветке фотокатода фотоумножителей составляет 3 нс (FWHM). Скорость счета импульсов темнового тока составляет 800 Гц-1 кГц при температуре 20°C.
4. Разработаны методы и средства тестирования и исследования высокоэффективных быстрых неорганических сцинтилляционных

кристаллов GAGG(Ce) для исследования нелинейных эффектов в жидких сцинтилляторах с использованием комптоновской спектрометрии. Показано, что сцинтилляторы обладают высоким световыходом и быстрой кинетикой свечения. При облучении гамма-квантами с энергиями 662 кэВ от радиоактивного источника  $^{137}\text{Cs}$  энергетическое разрешение пика полного поглощения составляет  $R = 3,4\%$  (FWHM) при использовании кремниевого фотоумножителя Hamamatsu MPPC S13360-6075CS и  $R = 6,8\%$  (FWHM) для фотоумножителя традиционного типа с фотокатодом с высоким квантовым выходом XP5301B. Кинетика сцинтилляционного свечения характеризуется постоянными времени высвечивания  $\tau_1 \sim 43,3 \pm 0,9$  нс (17,8% от полного световыхода),  $\tau_2 = 90,2 \pm 9,2$  нс (24,7%),  $\tau_3 = 295,0 \pm 12,9$  нс (52%) и  $\tau_4 = 2857 \pm 98$  нс (5,2%). Показано, что образцы сцинтиллятора GAGG(Ce) производства ООО «ФОМОС» (Россия) демонстрируют более быструю кинетику свечения с быстрой компонентой с  $\tau_1 \sim 27,4 \pm 0,8$  нс (13,1%), при этом энергетическое разрешение хуже, чем у сцинтилляторов GAGG(Ce) японского и китайского производства.

5. Разработана и создана электронная регистрирующая система на базе быстродействующего оцифровщика импульсов DRS4 для низкофоновой установки по исследованию содержания радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах на основе органических растворителей.

## **Благодарности**

Выражаю глубочайшую благодарность и признательность моему Учителю Баярто Константиновичу Лубсандоржиеву за постановку задачи, внимательное отношение, неоценимо полезные советы и помощь на всех этапах работы.

Огромное спасибо моим коллегам и товарищам, поддерживавшим меня и помогавшим мне на всех этапах диссертационной работы – Воронину Д.М., Луканову А.Д., Ушакову Н.А. и Фазлиахметову А.Н.

Хочу выразить свою искреннюю благодарность коллегам из ИСПМ РАН Пономаренко С.А., Сурину Н. М. и Борщеву О. В., без помощи и содействия которых выполнение работы было бы невозможным.

Я очень признателен коллегам из ООО «МЭЛЗ ФЭУ» С.А. Белянченко, Г.И. Зотовой, В.А. Ильевскому за совместную работу по разработке фотоумножителей.

Отдельно хочу поблагодарить сотрудника ОЛВЭНА ИЯИ РАН, Новикову Г.Я., за помощь и советы в важных вопросах.

Также я очень признателен коллективу лаборатории гамма-астрономии и реакторных нейтрино, ИЯИ РАН за чуткое отношение и понимание.

## Литература

1. Cowan C.L. et al. Detection of the Free Neutrino: a Confirmation // *Science*. 1956. Vol. 124, № 3212.
2. Suzuki A., Collaboration K. Results from KamLAND Reactor Neutrino Detection // *Physica Scripta*. 2005. Vol. T121, № 33.
3. Alimonti G. et al. The Borexino detector at the Laboratori Nazionali del Gran Sasso // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2009. Vol. 600, № 3. P. 568–593.
4. Abe Y. et al. Indication of Reactor electron antineutrinos Disappearance in the Double Chooz Experiment // *Physical Review Letters*. 2012. Vol. 108, № 13.
5. An F.P. et al. Observation of Electron-Antineutrino Disappearance at Daya Bay // *Physical Review Letters*. 2012. Vol. 108, № 17.
6. Ahn J.K. et al. Observation of Reactor Electron Antineutrinos Disappearance in the RENO Experiment // *Physical Review Letters*. 2012. Vol. 108, № 19. P. 191802.
7. An F. et al. Neutrino physics with JUNO // *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*. 2016. Vol. 43, № 3.
8. Wurm M. et al. The next-generation liquid-scintillator neutrino observatory LENA // *Astroparticle Physics*. 2012. Vol. 35, № 11. P. 685–732.
9. Serebrov A.P. et al. First Observation of the Oscillation Effect in the Neutrino-4 Experiment on the Search for the Sterile Neutrino // *JETP Letters*. 2019. Vol. 109, № 4.
10. Ko Y.J. et al. Sterile Neutrino Search at the NEOS Experiment // *Physical Review Letters*. 2017. Vol. 118, № 12.
11. Abe Y. et al. Reactor  $\bar{\nu}_e$  disappearance in the Double Chooz experiment // *Physical Review D*. 2012. Vol. 86, № 5.

12. Abe Y. et al. Improved measurements of the neutrino mixing angle  $\theta_{13}$  with the Double Chooz detector // *Journal of High Energy Physics*. 2014. Vol. 2014, № 10.
13. An F.P. et al. New Measurement of Antineutrino Oscillation with the Full Detector Configuration at Daya Bay // *Physical Review Letters*. 2015. Vol. 115, № 11.
14. Bei-Zhen Hu. Recent Results from Daya Bay Reactor Neutrino Experiment // *arXiv:1505.03641*. 2015.
15. An F.P. et al. Measurement of the Reactor Antineutrino Flux and Spectrum at Daya Bay // *Physical Review Letters*. 2016. Vol. 116, № 6.
16. Yeongduk Kim. The current status of the RENO experiment // *Frascati Phys.Ser.* 2008. Vol. 47. P. 149–157.
17. Giaz A. Status and perspectives of JUNO experiment // *Proceedings of The European Physical Society Conference on High Energy Physics — PoS(EPS-HEP2017)*. Trieste, Italy: Sissa Medialab, 2018.
18. Bellini G. et al. Final results of Borexino Phase-I on low-energy solar neutrino spectroscopy // *Physical Review D*. 2014. Vol. 89, № 11. P. 112007.
19. Borexino Collaboration. Neutrinos from the primary proton–proton fusion process in the Sun // *Nature*. 2014. Vol. 512, № 7515.
20. Agostini M. et al. Seasonal modulation of the  $^7\text{Be}$  solar neutrino rate in Borexino // *Astroparticle Physics*. 2017. Vol. 92.
21. Agostini M. et al. Spectroscopy of geoneutrinos from 2056 days of Borexino data // *Physical Review D*. 2015. Vol. 92, № 3.
22. Agostini M. et al. Borexino’s search for low-energy neutrino and antineutrino signals correlated with gamma-ray bursts // *Astroparticle Physics*. 2017. Vol. 86.
23. Agostini M. et al. A Search for Low-energy Neutrinos Correlated with Gravitational Wave Events GW 150914, GW 151226, and GW 170104 with the Borexino Detector // *The Astrophysical Journal*. 2017. Vol. 850, № 1.

24. Eguchi K. et al. First Results from KamLAND: Evidence for Reactor Antineutrino Disappearance // *Physical Review Letters*. 2003. Vol. 90, № 2.
25. Ahmad Q.R. et al. Direct Evidence for Neutrino Flavor Transformation from Neutral-Current Interactions in the Sudbury Neutrino Observatory // *Physical Review Letters*. 2002. Vol. 89, № 1.
26. Araki T. et al. Measurement of Neutrino Oscillation with KamLAND: Evidence of Spectral Distortion // *Physical Review Letters*. 2005. Vol. 94, № 8.
27. Abe S. et al. Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND // *Physical Review Letters*. 2008. Vol. 100, № 22.
28. Gando A. et al. Constraints  $\theta_{13}$  from a three-flavor oscillation analysis of reactor antineutrinos at KamLAND // *Physical Review D*. 2011. Vol. 83, № 5.
29. Gando A. et al. Reactor on-off antineutrino measurement with KamLAND // *Physical Review D*. 2013. Vol. 88, № 3.
30. Smith N.J.T. The SNOLAB deep underground facility // *The European Physical Journal Plus*. 2012. Vol. 127, № 9.
31. Ford R. SNOLAB: Review of the facility and experiments. 2012.
32. Ahmad Q.R. et al. Measurement of the Rate of  $\bar{\nu}_e + d \rightarrow p + p + e^-$  Interactions Produced by 8B Solar Neutrinos at the Sudbury Neutrino Observatory // *Physical Review Letters*. 2001. Vol. 87, № 7.
33. Biller S. SNO+ with Tellurium // *Physics Procedia*. 2015. Vol. 61.
34. Andringa S. et al. Current Status and Future Prospects of the SNO+ Experiment // *Advances in High Energy Physics*. 2016. Vol. 2016.
35. Platt J.R. Classification of Spectra of Cata-Condensed Hydrocarbons // *The Journal of Chemical Physics*. 1949. Vol. 17, № 5.
36. Stefan Wagner. PhD thesis. Energy non-linearity studies and pulse shape analysis of liquid scintillator signals in the Double Chooz experiment. Heidelberg, 2014.

37. Parker C.A., Hatchard C.G. Delayed fluorescence of pyrene in ethanol // Transactions of the Faraday Society. 1963. Vol. 59. P. 284–295.
38. J. B. Birks. The Theory and Practice of Scintillation Counting. Elsevier, 1964.
39. Birks J.B., de C. Conte J.M., Walker G. The Influence of Excimer Formation on Solvent-Solute Energy Transfer in Organic Liquid Scintillators // IEEE Transactions on Nuclear Science. 1966. Vol. 13, № 3.
40. J. B. Birks. Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting / ed. D. L. Horrocks and C. T. Peng. New York: Academic Press, 1971.
41. Donald L. Horrocks. Applications of liquid scintillation counting. New York - London: ACADEMIC PRESS, 1974.
42. Lipsky S., Burton M. Comparison of High-Energy and Ultraviolet-Radiation Induced Luminescence in Liquid Systems // The Journal of Chemical Physics. 1959. Vol. 31, № 5.
43. Berlman I.B. Efficiency of Energy Transfer in a Solution of PPO in Xylene // The Journal of Chemical Physics. 1960. Vol. 33, № 4.
44. Förster Th. Transfer Mechanisms of Electronic Excitation Energy // Radiation Research Supplement. 1960. Vol. 2. P. 326–339.
45. Förster Th. 10th Spiers Memorial Lecture. Transfer mechanisms of electronic excitation // Discuss. Faraday Soc. 1959. Vol. 27. P. 7–17.
46. Brannen E., Olde G.L. The Response of Organic Scintillators to Electron Energy Deposited in Them // Radiation Research. 1962. Vol. 16, № 1. P. 1–6.
47. Craun R.L., Smith D.L. Analysis of response data for several organic scintillators // Nuclear Instruments and Methods. 1970. Vol. 80, № 2.
48. Hirschberg M. et al. Precise measurement of Birks kB parameter in plastic scintillators // IEEE Transactions on Nuclear Science. 1992. Vol. 39, № 4.
49. O'Connor D.V., Philips D. Time-correlated Single Photon Counting. London: Academic Press, 1984.

50. Wolfgang Becker. *Advanced Time-Correlated Single Photon Counting Techniques*. Berlin–Heidelberg–New York: Springer, 2005.
51. Song S.H. et al. Feasibility study of a gadolinium-loaded DIN-based liquid scintillator // *Journal of the Korean Physical Society*. 2013. Vol. 63, № 5.
52. Aberle C. et al. Large scale Gd-beta-diketonate based organic liquid scintillator production for antineutrino detection // *Journal of Instrumentation*. 2012. Vol. 7, № 06.
53. Wurm M. Diploma thesis. Garching, 2005.
54. J.B. Birks. *Scintillation counters*. London, 1953.
55. Lubsandorzhev S. et al. Development of new liquid scintillators for neutrino experiments of next generation // *Proceedings of 36th International Cosmic Ray Conference — PoS(ICRC2019)*. Trieste, Italy: Sissa Medialab, 2019.
56. Förster Th. Intermolecular energy migration and fluorescence // *Ann Phys (Leipzig)*. 1948. Vol. 2. P. 55–75.
57. Barabanov I.R. et al. Large-volume detector at the Baksan Neutrino Observatory for studies of natural neutrino fluxes for purposes of geo- and astrophysics // *Physics of Atomic Nuclei*. 2017. Vol. 80, № 3. P. 446–454.
58. R. Etzel M. *A Basic Introduction to Separation Science* // *Trends in Food Science & Technology*. 1996. Vol. 7, № 6.
59. Новикова Г.Я. Современные методы очистки жидких сцинтилляторов, предназначенных для регистрации редких событий // *Физика элементарных частиц и атомного ядра*. 2018. Vol. 49, № 4. P. 1360–1373.
60. Rubbia A. LAGUNA-LBNO: design of an underground neutrino observatory coupled to long baseline neutrino beams from CERN // *Journal of Physics: Conference Series*. 2013. Vol. 408.
61. Enqvist T. et al. Measurements of muon flux in the Pyhäsalmi underground laboratory // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2005. Vol. 554, № 1–3.

62. Alimonti G. et al. Measurement of the  $^{14}\text{C}$  abundance in a low-background liquid scintillator // *Physics Letters B*. 1998. Vol. 422, № 1–4.
63. Back H.O. et al. Pulse-shape discrimination with the Counting Test Facility // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2008. Vol. 584, № 1.
64. Keefer G. Laboratory Studies of Lead Removal from Liquid Scintillator in Preparation for KamLAND's Low Background Phase. 2011.
65. Buck C. et al. Measuring the  $^{14}\text{C}$  isotope concentration in a liquid organic scintillator at a small-volume setup // *Instruments and Experimental Techniques*. 2012. Vol. 55, № 1.
66. Bonvicini G., Harris N., Paolone V. The chemical history of  $^{14}\text{C}$  in deep oilfields. 2003.
67. Gavriljuk Ju.M. et al. Working characteristics of the New Low-Background Laboratory (DULB-4900) // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2013. Vol. 729.
68. Jalas P. et al. Callio Lab, a new deep Underground Laboratory in the Pyhäsalmi mine // *Journal of Physics: Conference Series*. 2017. Vol. 888.
69. Fahmi S.M. et al. // *Nuclear Instruments and Methods A*. 2013. Vol. 294. P. 302.
70. <http://www.psi.ch/drs/documentation> [Electronic resource].
71. T. Adam et al. JUNO Conceptual Design Report // arXiv:1508.07166. 2015.
72. Lubsandorzhev S. et al. Development of medium and small size photomultipliers for experiments in neutrino physics // *Proceedings of 36th International Cosmic Ray Conference — PoS(ICRC2019)*. Trieste, Italy: Sissa Medialab, 2019.
73. Kapustinsky J.S. et al. A fast timing light pulser for scintillation detectors // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*:

- Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1985. Vol. 241, № 2–3.
74. Lubsandorzhev B.K., Vyatchin Y.E. Studies of ``Kapustinsky's'' light pulser timing characteristics // Journal of Instrumentation. 2006. Vol. 1, № 06.
75. Е.Э.Вятчин. Наносекундные источники света для калибровочных измерений в черенковских и сцинтилляционных детекторах // Кандидатская диссертация. Москва, ИЯИ РАН. 2006.
76. Cao C. et al. Mass production and characterization of 3-inch PMTs for the JUNO experiment // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2021. Vol. 1005.
77. A. Abusleme et al. JUNO Physics and Detector // arXiv:2104.02565.
78. P. Kooijman et al. (KM3NeT Collaboration). Multi-PMT Optical Module // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2006. Vol. 567. P. 508.
79. Jason Koskinen D. Atmospheric neutrino results from IceCube-DeepCore and plans for PINGU // Journal of Physics: Conference Series. 2017. Vol. 888.
80. di Lodovico F. The Hyper-Kamiokande Experiment // Journal of Physics: Conference Series. 2017. Vol. 888.
81. Kamada K. et al. Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce Doped Gd<sub>3</sub>(Ga,Al)<sub>5</sub>O<sub>12</sub> Single Crystals // IEEE Transactions on Nuclear Science. 2012. Vol. 59, № 5.
82. Iwanowska J. et al. Performance of cerium-doped Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (GAGG:Ce) scintillator in gamma-ray spectrometry // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2013. Vol. 712.

83. Zhu Y. et al. Scintillation properties of GAGG:Ce ceramic and single crystal // *Optical Materials*. 2020. Vol. 105.
84. Zhang Fei-Hon et al. Measurement of the liquid scintillator nonlinear energy response to electron // *arXiv:1403.3257*. 2014
85. H. Wan Chan Tseung, J. Kaspar, N. Tolich. Measurement of the dependence of the light yields of linear alkylbenzene-based and EJ-301 scintillators on electron energy // *arXiv:1105.2100*. 2011