

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



А.М. Пшуков, Ш.И. Умеров

Жидкий сцинтиллятор
на основе синтина

препринт
preprint

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН
1442/2019
ОКТАБРЬ 2019

МОСКВА 2019 MOSCOW

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



А.М. Пшуков, Ш.И. Умеров

Жидкий сцинтиллятор
на основе синтина

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН

1442/2019

ОКТАБРЬ 2019

МОСКВА

2019

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences
60-th October Anniversary prospect 7a,
Moscow 117312, Russia

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук
проспект 60-летия Октября, 7а
Москва, 117312

А.М. Пшуков, Ш.И. Умеров

**Жидкий сцинтиллятор
на основе синтина**

В работе представлены результаты исследования оптических и люминесцентных свойств, а также анализ химического состава жидкого сцинтиллятора на основе промышленного продукта «Синтина».

Определены такие показатели как максимумы спектров люминесценции, максимумы поглощения собственно синтина и растворов на его основе.

Получено значение прозрачности для жидкого сцинтиллятора на основе синтина.

Проведены первичные низкофоновые измерения сцинтиллятора на основе синтина в детекторе малого объема в БНО.

Результаты исследований указывают на возможность применения сцинтилляторов на основе синтина при создании массивных сцинтилляционных детекторов нейтрино от природных источников с пониженным энергетическим порогом.

Исследования проводились с помощью газового хроматографа «Кристаллюкс-4000М», оснащенного пламенно-ионизационным детектором, спектрофотометра «ПЭ-3000 УФ», со спектральным диапазоном от вакуумного ультрафиолетового излучения с длиной волны 190 нм до инфракрасного с длиной волны 1100 нм, вакуумной установки для оптических измерений, двойного монохроматора ДМР-4 с фотоумножителями ФЭУ-83 и ФЭУ-39А.

Ключевые слова: синтин, люминесценция, оптические свойства, добавка РРО, добавка РОРОР.

ISBN 978-5-94274-332-1

© Федеральное государственное
бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук, 2019
Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences, 2019

А.М. Пшуков, Ш.И. Умеров

Жидкий сцинтиллятор
на основе синтина

Препринт 1442/2019

Октябрь 2019

Подписано в печать 20.09.2019

Ф-т 60x84/8. Уч.-изд.л. 0,9. Зак.22447 Тираж 85 экз.
Бесплатно

Печать цифровая
Издательский отдел

Федеральное государственное бюджетное учреждение
науки Институт ядерных исследований Российской
академии наук

117312, Москва, проспект 60-летия Октября, 7а

Введение

Одной из фундаментальных задач нейтринной геофизики является изучение потоков антинейтрино от бета-распадов изотопов радиоактивных семейств ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K , протекающих в недрах Земли, и определение радиогенной составляющей теплового потока Земли.

С другой стороны, исследование нейтрино космического происхождения является одной из наиболее актуальных областей астрофизики.

В связи с этим, в последнее время довольно активно обсуждается ряд проектов по созданию больших сцинтилляционных жидких детекторов для регистрации крайне редких событий, в частности нейтринных потоков от различных природных источников [1–3].

Одним из таких проектов является проект по созданию большого сцинтилляционного детектора предназначенного для регистрации природных потоков нейтрино низкой энергии (до 100 МэВ) в Баксанской нейтринной обсерватории (БНО) [2,4,5].

На сегодняшний день, особое внимание уделяется, как внешнему, так и внутреннему фону установок.

Внутренний фон детектора главным образом определяется содержанием примесей радиоактивных элементов в жидком органическом сцинтилляторе. Так, трудность в измерении потока $\bar{\nu}$ -нейтрино и его спектра с помощью детектора на основе жидкого органического сцинтиллятора во многом связана с радиоактивностью изотопа ^{14}C , присутствующего в молекулах углеводородов нефтяного происхождения. При этом надо отметить, что для сцинтиллятора детектора Bogexino содержание изотопа ^{14}C составляет $(1.94 \pm 0.09) \times 10^{-18}$ ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) [6], а для сцинтиллятора детектора KamLAND — $(3.98 \pm 0.94) \times 10^{-18}$ ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) [7].

В рамках разработки проекта по созданию большого сцинтилляционного детектора в БНО, создан детектор малого объема с целью систематических исследований изотопа ^{14}C в различных образцах жидкого органического сцинтиллятора, что позволит в перспективе создать сцинтиллятор с пониженным содержанием ^{14}C [8].

Предполагается исследовать образцы скинтилляторов с основой из растворителей, полученных из «различной» нефти, а также растворители, полученные из каменного угля. В связи с последним, был предложен скинтиллятор на основе синтина.

Экспериментальная часть

В нашем исследовании использовался синтин (карбюризатор для газовой цементации), который, наряду с керосином и бензолом, активно применяется для получения науглероживающей газовой атмосферы при производстве стальных деталей.

Основные характеристики, приведенные в паспорте, представлены в таблице 1.

Таблица 1. Паспортные данные продукта «Синтин»

	Наименование показателей	Норма
1	Плотность при 20 ⁰ С, кг/м ³ , не более	0,740–0,760
2	Фракционный состав: 10% перегоняется при температуре, ⁰ С, не ниже; 90% перегоняется при температуре, ⁰ С, не выше;	115 270
3	Зольность, в %, не более	0,005
4	Испытание на медной пластине	Выдерживает испытания
5	Кислотность, мг КОН на 100 см ³ продукта, не более	5,0
6	Наличие механических примесей и воды (H ₂ O)	Отсутствие

1. Хроматографический анализ синтина

Поскольку прилагаемый к продукту «Синтин» паспорт не содержит сведений о его составе как количественном, так и качественном, а для дальнейшей исследовательской работы необходимы эти сведения, то решение подобной задачи возможно путем хроматографического анализа, позволяющего идентифицировать составные компоненты и определить их количественное содержание.

Исследование проводилось на газовом хроматографе «Кристаллюкс-4000 м», предназначенном для идентификации компонентов анализируемой смеси и измерения их относительного и абсолютного количества в единицах концентрации или массы соответственно,

позволяющем автоматически выявить до 2000 хроматографических пиков и идентифицировать до 1000 анализируемых соединений и до 50 групп соединений по заранее созданным в процессе градуировок моделям, с использованием абсолютного и относительного времени удерживания, соотношения сигналов одновременно работающих детекторов, индексов удерживания (Ковача), температуры кипения компонентов, расчет концентрации и количества вещества различными методами.

Хроматограф оснащен модулем ПИД/ПИД, который предназначен для анализа методом газовой хроматографии большинства органических соединений, в том числе углеводородных топлив и газов, спиртосодержащих соединений и так далее. Модуль содержит два независимых канала разделения, каждый из которых состоит из испарителя, хроматографической колонки и пламенно-ионизационного детектора (ПИД). Принцип действия ПИД основан на ионизации анализируемых соединений, происходящей при их сгорании в водородном пламени, за счет окисления углерода. Результат анализа приведен на рисунке 1.

Судя по хроматограмме, синтин это четырехкомпонентный раствор, время удерживания первого наиболее летучего компонента ~96 с, второго компонента ~119 с, третьего компонента ~153 с, четвертого компонента ~202 с.

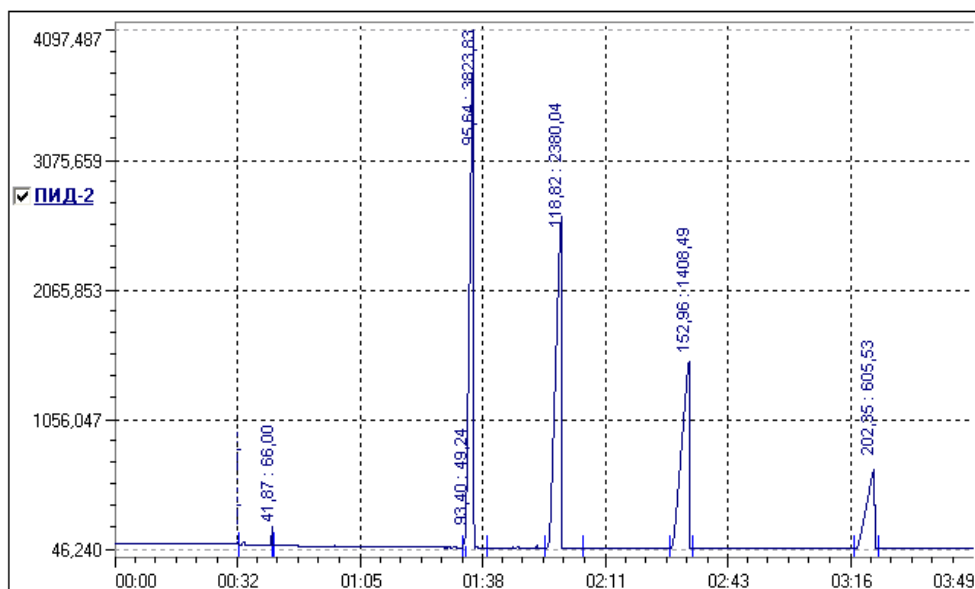


Рис. 1. Хроматограмма синтина. Оси: X — время удерживания (мин), Y — интенсивность сигнала (мВ)

Возможно, синтин является продуктом синтеза и идентификация пиков, которая осуществима, лишь при наличии эталонных образцов органических соединений позволит продублировать этот раствор в лабораторных условиях.

В случае, подтверждения возможности использования сцинтиллятора на основе предлагаемого синтина будет продолжена работа по идентификации компонентов и получению продукта в собственных лабораторных условиях.

2. Исследование оптических и люминесцентных свойств синтина и сцинтилляторов на его основе

Такие оптические и люминесцентные свойства будущего сцинтиллятора, как прозрачность, максимум поглощения, оптическая стабильность и максимум люминесценции являются определяющими и позволяют судить, насколько эффективным будет сцинтиллятор при решении поставленных задач.

2.1 Оптические свойства синтина и растворов на его основе

Исследование оптических свойств синтина и сцинтилляторов на его основе проводилось на спектрофотометре ПЭ-3000УФ, со спектральным диапазоном от вакуумного ультрафиолетового (УФ) излучения 190 нм, до инфракрасного (ИК) излучения 1100 нм, спектральной полосой пропускания 1,8 нм, разрешением 0,1 нм, погрешностью определения % пропускания <1%, погрешностью установки длины волны $\pm 0,8$ нм, повторяемостью установки длины волны $\pm 0,5$ нм, скоростью сканирования до 3000 нм/мин, с фотометрическим диапазоном 0–200% Т, –0,3–2,8 А.

2.1.1 Прозрачность

Высокая прозрачность жидких сцинтилляторов необходима при создании на их основе сцинтилляционных детекторов больших размеров с массой вплоть до нескольких сотен тонн.

Измерение прозрачности (длины, при которой интенсивность света уменьшается в e раз) синтина проводилось в кюветах длиной 3,5,10 см и составила 14 ± 2 м на длине волны 430 нм. Результат измерений приведен на рисунке 2.

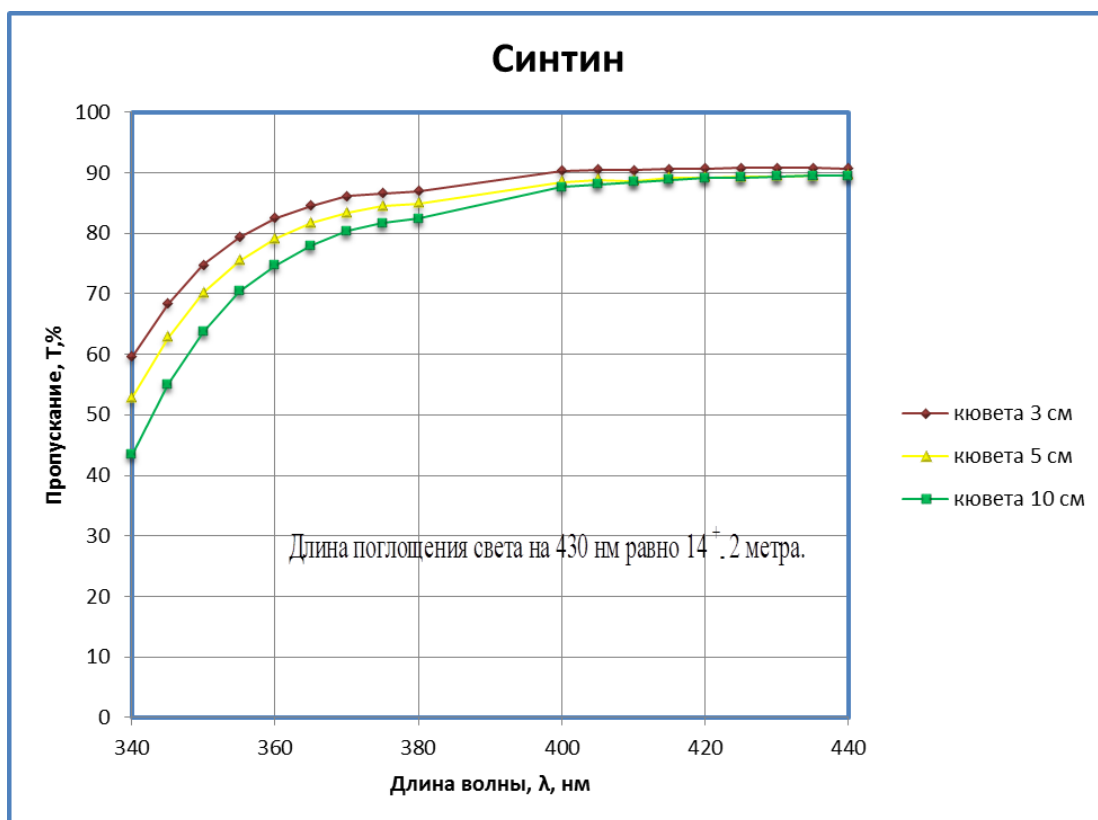


Рис. 2. Спектры пропускания синтина в диапазоне длин волн 340–440 нм, для кювет 3,5,10 см

2.1.2 Максимум поглощения

Синтин

Определение максимума поглощения собственно синтина проводилось в диапазоне 190-340 нм в кварцевой кювете 1 см. И составило около 262 нм (ширина на полувысоте 241–272 нм). Результат измерения приведен на рисунке 3.

Синтин + PPO, синтин + POPOP

При создании жидкого сцинтиллятора на основе синтина в качестве шифтера было решено использовать 1,4-бис(5-фенил-2-оксазол)–бензол (POPOP), а в качестве сцинтиллирующей добавки 2,5-дифенилоксазол (PPO).

Для определения максимумов поглощения были приготовлены серии растворов как синтин+PPO, так и синтин+POPOP с различной концентрацией в диапазоне выбора оптимальной концентрации составляющих компонентов будущего сцинтиллятора.

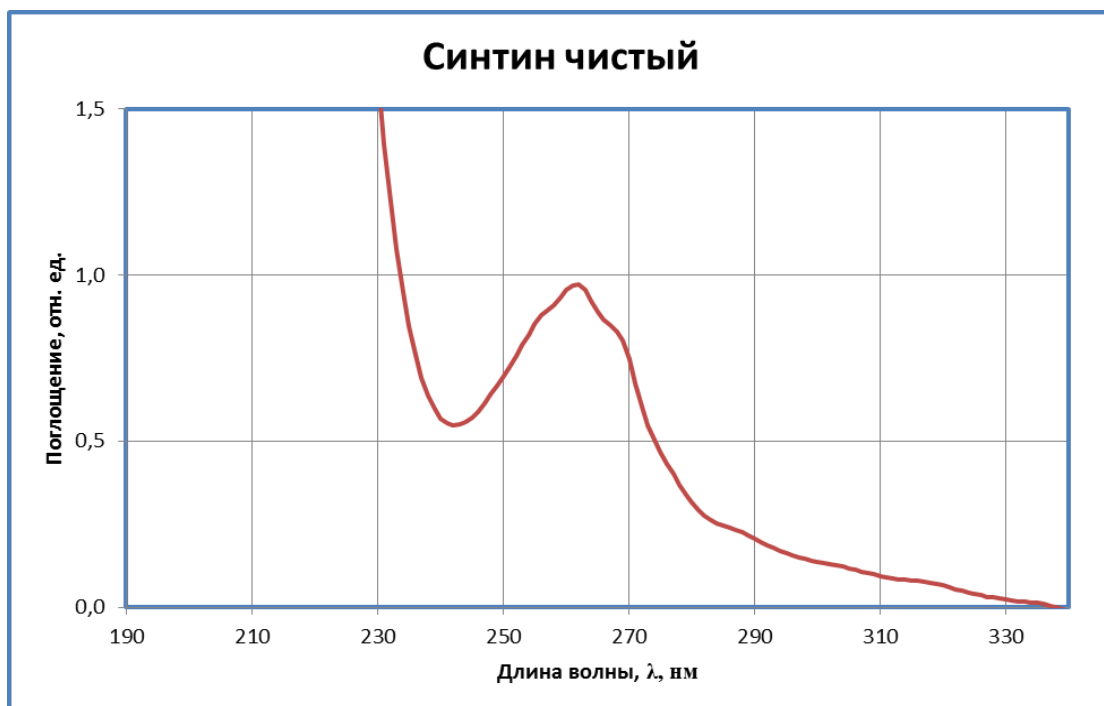


Рис. 3. Спектр поглощения синтина в диапазоне длин волн 190–340 нм

1. Синтин + РРО

Навески РРО, взвешенные на аналитических весах с точностью до четвертого знака после запятой, растворялись в синтине в мерных колбах объемом 50 мл. Ниже в таблице 2 приведены массы навесок РРО и концентрации приготовленных растворов.

Для приготовления раствора РРО в синтине с концентрацией 0,5 г/л, навеску растворили в мерной колбе на 100 мл.

2. Синтин + РОРОР

На первой стадии для приготовления растворов синтин+РОРОР был приготовлен исходный раствор РОРОР в синтине с концентрацией 50 мг/л.

Навеску РОРОР массой 0,0100 г растворили в синтине в мерной колбе на 200 мл.

Остальные растворы готовились в мерных колбах на 50 мл путем кратного разбавления исходного раствора чистым синтином. В таблице 3 приведены объемы исходного раствора и концентрации приготовленных растворов синтин+РОРОР

Таблица 2. Зависимость масса навески РРО — концентрация раствора синтин + РРО

Концентрация, г/л	РРО, г
1	0,0500
2	0,1000
3	0,1500
4	0,2000
5	0,2500
6	0,3000

Таблица 3. Зависимость объем исходного раствора – концентрация раствора синтин + РОРОР

Концентрация РОРОР, мг/л	Объем раствора синтин+РОРОР 50 мг/л, мл
5	5
10	10
15	15
30	30
40	40

Снятые спектры пропускания приготовленных растворов позволили получить данные для определения максимумов поглощения. Таким образом, максимум поглощения растворов синтин+РРО соответствует 352 нм в области 338-365 нм, а максимум поглощения растворов синтин+РОРОР – 395 нм в области 380-410 нм. На рисунках 4 и 5 приведены результаты спектрофотометрического анализа образцов растворов синтин+РРО и синтин+РОРОР соответственно.

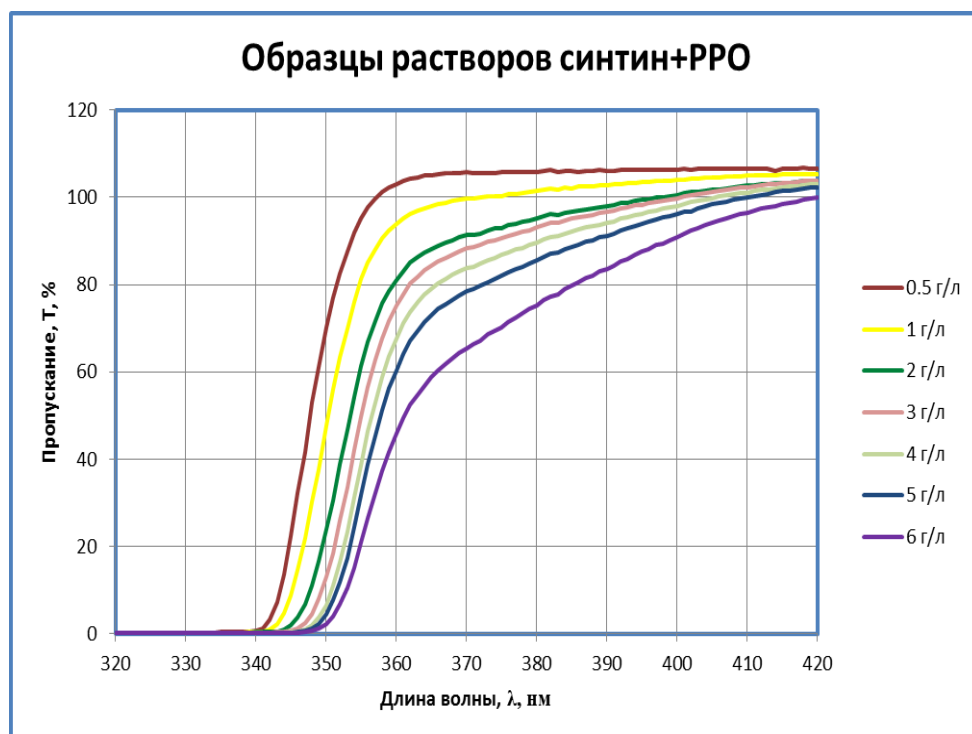


Рис. 4. Спектры пропускания растворов синтин+РРО

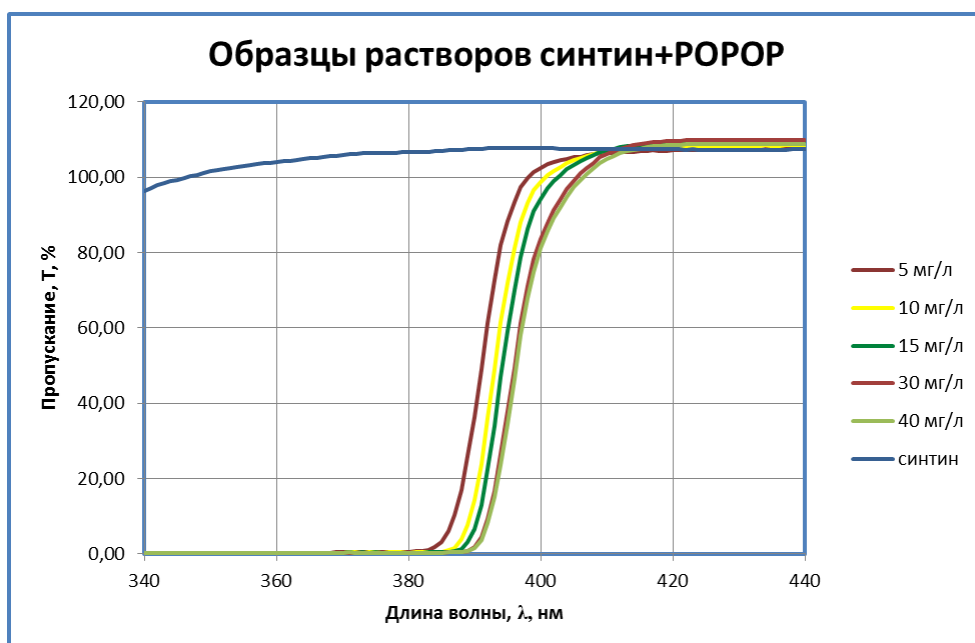


Рис. 5. Спектры пропускания растворов синтин+РОРОР

2.1.3 Оптическая стабильность сцинтиллятора на основе синтина

Исходя из полученных данных по спектрам пропускания растворов синтин+РРО и синтин+РОРОР, было принято решение о дальнейшем исследовании сцинтиллятора с содержанием РРО – 1 г/л, РОРОР – 0,03 г/л. Для получения информации об оптической стабильности исследуемого сцинтиллятора, авторами был приготовлен сцинтиллятор с обозначенным выше содержанием основных компонентов и снят спектр поглощения в диапазоне 190–1100 нм. Через 2 года был снова получен спектр поглощения приготовленного ранее, в 2016 году, сцинтиллятора.

Спектры поглощения, снятые с разницей в два года для одного и того же раствора сцинтиллятора, имеют практически идентичный рисунок, что дает возможность предположить наличие оптической стабильности сцинтиллятора за выбранный отрезок времени. Ниже на рисунке 6 приведены спектры поглощения образца сцинтиллятора снятые в 2016 и 2018 годах.

2.2 Люминесцентные свойства синтина и растворов на его основе

Исследование люминесцентных свойств синтина и растворов на его основе (синтин+РРО, синтин+РОРОР, синтин+РОРОР+РРО)

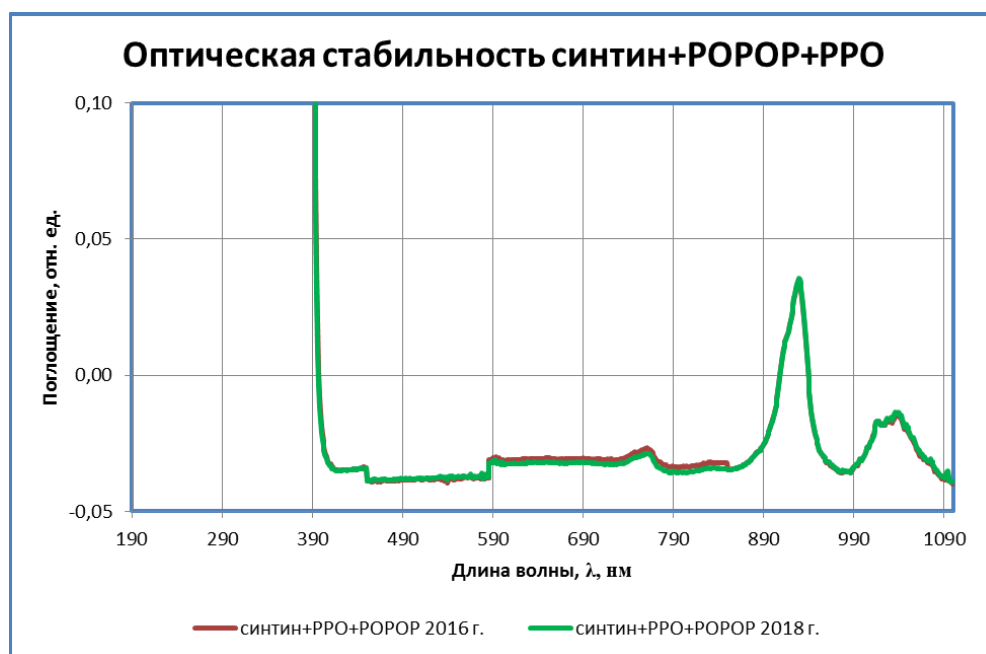


Рис. 6. Спектры поглощения раствора синтин+РРО+РОРОР, снятые в 2016 и 2018 годах

проводились в вакуумной установке, позволяющей осуществлять измерения спектров поглощения, излучения в широком температурном диапазоне от -196°C до $+350^{\circ}\text{C}$.

Для спектрального разложения свечения использовался двойной монохроматор ДМР-4 с фотоумножителем ФЭУ-83 и кварцевым ФЭУ-39А в качестве приемника. После записи сигнала ФЭУ вводилась поправка на спектральную чувствительность ФЭУ.

Результаты исследования люминесцентных свойств синтина и растворов на его основе показали, что чистый синтин люминесцирует с максимумом около 290 нм, максимум спектра люминесценции раствора синтин+РРО лежит в области 370-390 нм, раствора синтин+РОРОР – 410-420 нм, а раствора синтин+РРО+РОРОР в области 415 нм.

В синтине обнаружено наличие аномальной фосфоресценции. Это результат перераспределения электронов по мелким локальным уровням в запрещенной зоне по окончании возбуждения образца.

Экспонирование добавок РОРОР и РРО в виде порошка, излучением ртутной лампы с длиной волны 365 нм при комнатной температуре показало, что в образце РРО происходят необратимые процессы (потемнение), чего не наблюдается у образца РОРОР, т.е. при действии

ультрафиолетового излучения в образце РРО происходит фотохимическая реакция, которая сильно уменьшает интенсивность люминесценции образца.

Низкофоновые измерения

Создание сцинтиллятора с пониженным содержанием изотопа ^{14}C , является актуальным. В этой связи, наряду с оптическими и люминесцентными свойствами будущего сцинтиллятора, содержание изотопа ^{14}C является определяющим критерием.

Измерение содержания ^{14}C в образце синтин+РРО+РОРОР объемом 1340 мл, проводилось с помощью детектора малого объема в низкофоновой камере в БНО ИЯИ РАН.

Сделано 6 измерений с калибровками:

24–27 июля — 66.03 часа	4.97×10^{-18}
27–29 июля — 41.83 часа	3.23×10^{-17}
29–30 июля — 21.83 часа	8.58×10^{-17}
30–31 июля — 15.24 часа	1.74×10^{-17}
2–4 августа — 43.48 часа	4.04×10^{-17}
4–12 августа — 183.58 часа	1.64×10^{-17}

Окончательный результат ниже в таблице.

Таблица 4. Результаты измерений ^{14}C в сцинтилляторе на основе синтина

Вещество	Время измерения, часы	Объем, мл	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \times 10^{-17}$
Синтин	370.87	1340	2.5 ± 2.1

Данное исследование образца является ориентировочным и не окончательным, поскольку время проведения эксперимента ничтожно мало, для того, что бы делать заключительные выводы по данному образцу, однако, вполне достаточно, что бы судить о возможности и целесообразности, как увеличения времени эксперимента, так и устранения сопутствующих систематических ошибок.

В заключении хочется выразить огромную благодарность и признательность за оказанную помощь и содействие в исследовании образца жидкого сцинтиллятора на основе синтина и обсуждении результатов заведующему БНО ИЯИ РАН Кузьминову В.В., н.с. БНО ИЯИ

Background

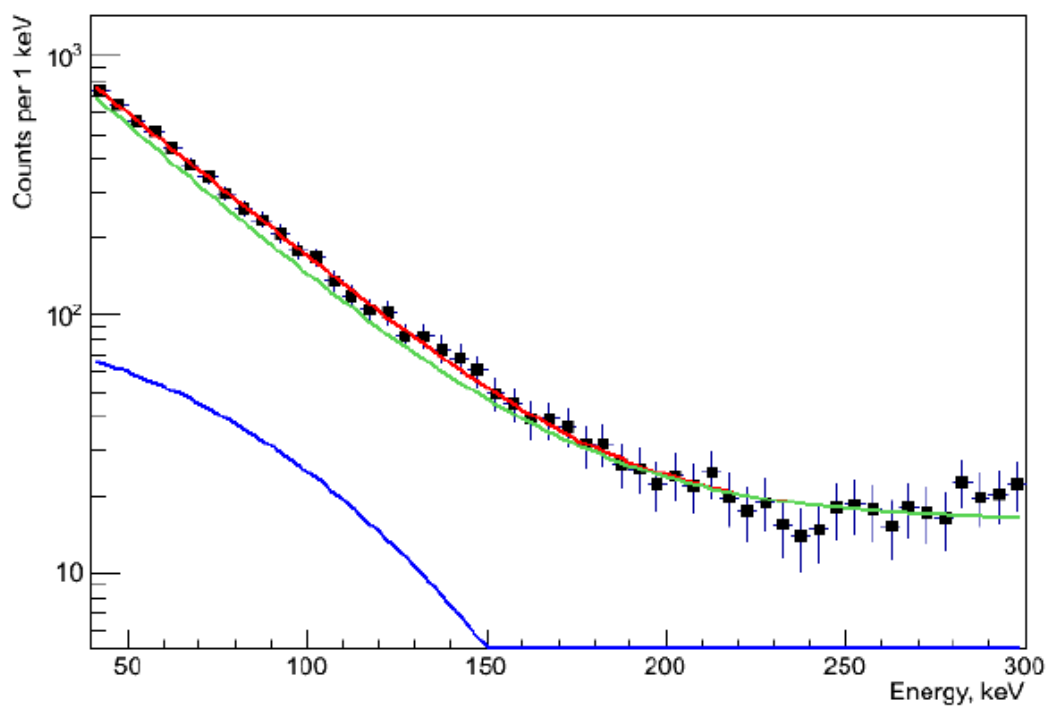


Рис. 7. Спектр фона в логарифмической шкале с вычлненным бета-спектром ¹⁴C

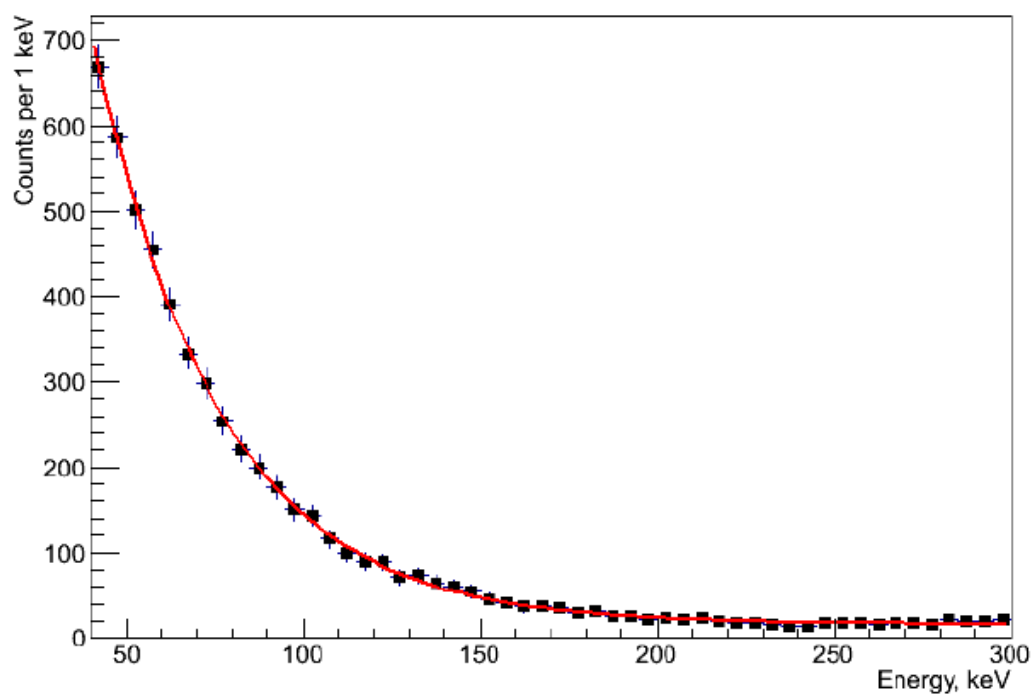


Рис. 8. Спектр гамма-фона после вычитания бета-спектра ¹⁴C

РАН Гаврилюку Ю.М., заведующему лабораторией гамма-астрономии и реакторных нейтрино ИЯИ РАН Безрукову Л.Б., в.н.с. ИЯИ РАН Синева В.В., профессору кафедры общей физики КБГУ Азизову И.К., директору ИИПРУ КБНЦ РАН Иванову Т.Х.

Выводы

Полученные данные по составу, оптическим и люминесцентным свойствам продукта «синтин», позволяют предположить возможность использования данного образца в качестве материала при создании жидкого сцинтиллятора. В тоже время для получения полной картины относительно радиоактивности данного материала, необходимо продолжить исследования, связанные с определением содержания изотопа углерода ^{14}C .

Литература

1. M. Wurm, J. F. Beacom, L. B. Bezrukov, et al., *Astropart. Phys.* 35, 685 (2012).
2. И. Р. Барабанов, Г. Я. Новикова, В. В. Синева, Е. А. Янович, Препринт 1228, ИЯИ (Москва, 2009).
3. J. F. Beacom et al., arXiv: 1602.01733 [physics.insdet].
4. И. Р. Барабанов, Л. Б. Безруков, А. В. Вересникова и др., *ЯФ* 80, 3 (2017).
5. А. В. Вересникова, И. Р. Барабанов, Л. Б. Безруков, В. И. Гуренцов, В. В. Синева, *ФЭЧ и АЯ* 49, 4 (2018).
6. Alimonti G et al., *Phys. Lett.* 422, 349 (1998).
7. Keefer G. arXiv:1102.3786[phys. ins-det].
8. И. Р. Барабанов, Л. Б. Безруков, А. В. Вересникова, и др., Препринт 7, ИЯИ (Москва, 2015).

Для заметок

Для заметок

