

*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

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва — 2021

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте ядерных исследований Российской академии наук (ИЯИ РАН).

**Научный руководитель:**

*Лубсандоржиев Баярто Константинович*, доктор физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт ядерных исследований Российской академии наук, отдел экспериментальной физики, ведущий научный сотрудник

**Официальные оппоненты:**

*Бузулуцков Алексей Федорович*, доктор физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт ядерной физики им. Г.И.Будкера Сибирского Отделения Российской академии наук, лаборатория 3-3, главный научный сотрудник.

*Попова Елена Викторовна*, кандидат физико-математических наук, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (НИЯУ МИФИ), отделение ядерной физики и технологий офиса образовательных программ, доцент.

**Ведущая организация:**

Федеральное государственное бюджетное учреждение «Институт теоретической и экспериментальной физики имени А.И. Алиханова Национального исследовательского центра «Курчатовский институт».

Защита состоится \_\_\_\_\_ в \_\_\_\_\_ часов на заседании диссертационного совета Д002.119.01 на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерных исследований Российской академии наук по адресу: 117312, Москва, проспект 60-летия Октября, 7А.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ИЯИ РАН по адресу:

<https://www.inr.ru/rus/referat/dis-zasch.html#sdr>

Автореферат разослан \_\_\_\_\_

Ученый секретарь  
диссертационного совета Д002.119.01,  
кандидат физ.-мат. наук,

С. В. Демидов

## Общая характеристика работы

### Актуальность темы

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 Ф.Райнеса и К.Коэна (*C. L. Cowan; F. Reines; et al. Science. 1956. 124(3212)*). Именно гений Ф. Райнеса привел к осознанию выдающейся роли и потенциала жидких сцинтилляторов. Эпоха прецизионных измерений параметров нейтринных осцилляций началась с началом работы экспериментов KamLAND (*A. Suzuki, et al. Physica Scripta. 2005. T121(33)*) и Borexino (*G. Alimonti et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A. 2009. 600(3). P.568–593*), которые являются жидкосцинтилляционными детекторами. Эта замечательная эпоха продолжилась экспериментами с реакторными антинейтрино Double Chooz (*Y. Abe et al. Physical Review Letters. 2012. V.108. N.13. P.131801*), Daya Bay (*F.P. An et al. Physical Review Letters. 2012. V.108. N.17. P.171803*) и RENO (*J.K. Ahn et al. Physical Review Letters. 2012. V.108. N.18. P.191802*), 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 (*Fengpeng An et al. Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics. 43 (2016) 030401*). 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 LENA в шахте Пюхасалми в Финляндии с 50 кт жидкого сцинтиллятора (*M. Wurm et al. Astroparticle Physics. 2012. V.35. Issue 11. P.685-732*). Активно работает и ряд жидкосцинтилляционных экспериментов по поиску

стерильных нейтрино (NEUTRINO-4, NEOS, STEREO и др.). Таким образом, разработка и создание высокоэффективных жидких сцинтилляторов является одной из наиболее актуальных задач современной экспериментальной физики.

### **Цели и задачи диссертационной работы**

Цель работы состоит в разработке, создании и исследовании параметров высокоэффективных жидких сцинтилляторов 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, разработка 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 жидкосцинтилляционных 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 разработаны и созданы измерительные стенды 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 в шахте Пюхясалми 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 кремний-органических 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 жидкосцинтилляционных 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 работы представлены автором в докладах на международных и российских конференциях:

- 35<sup>th</sup> International Cosmic Ray Conference ICRC 2017, Bexco, Busan, Korea, 12-20 July 2017;
- 36<sup>th</sup> International Cosmic Ray Conference ICRC 2019, Madison, Wisconsin, USA, 24 July – 1 August 2019;
- 2<sup>nd</sup> International Lake Baikal Astroparticle Physics Workshop APP-2018, Buryatia, Goryachinsk, 16-20 September 2018;
- Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых “Ломоносов-2021”, Москва, Россия, 12-23 апреля 2021г.

Основные положения, выносимые на защиту, опубликованы в 12 работах, индексируемых в международных базах данных Web of Science, SCOPUS, рекомендованных ВАК:

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. B. 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 со-

держания  $^{14}\text{C}$  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. S. Lubsandorzhev, ....., Andrey Sidorenkov, et al. Imitators of Cherenkov and scintillation light pulses based on fast LEDs // PoS (ICRC2019) 947.

## **Структура и объем диссертации**

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Основные выводы диссертации приведены в заключении. Объём диссертации 137 страниц, диссертация содержит 78 рисунков, 8 таблиц и 85 наименований цитируемой литературы.

## **Содержание работы**

**Во введении** дается обоснование актуальности разработки новых жидких сцинтилляторов для крупномасштабных нейтринных экспериментов, сформулированы задачи и цели исследований, показаны новизна работы, ее практическая значимость.

**В первой главе** обсуждается роль жидких сцинтилляторов в экспериментах в астрофизике частиц, в частности в нейтринной физике и приводится краткий обзор крупных экспериментов, в которых нашли применение жидкие сцинтилляторы.

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.

Детекторы на основе жидких сцинтилляторов сыграли одну из решающих ролей в решении многих проблем физики нейтрино. Среди них можно отметить — экспериментальное открытие нейтрино Ф. Райнесом и К. Коэнном; наблюдение осцилляции нейтрино с использованием реакторных нейтрино экспериментом KamLAND; регистрация сигнала от геонейтрино экспериментами KamLAND и Borexino; прецизионные измерения потоков солнечных нейтрино, включая нейтрино от pp- и CNO-циклов, в эксперименте Borexino; независимые измерения угла смешивания нейтрино  $\theta_{13}$  реакторными нейтринными экспериментами Double Chooz, Daya Bay и RENO.

**Во второй главе** описаны основные механизмы сцинтилляции в органических жидких сцинтилляторах, представлены результаты исследования сцинтилляционных параметров жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола (LAB) и других растворителей, таких как диизопропилнафталин (DIN) и псевдокумол (PC). Представлены результаты исследования параметров высокоэффективных жидких сцинтилляторов на основе LAB и новых сцинтилляционных добавок. Описаны методы и средства исследования параметров разрабатываемых жидких 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, PC), который характеризуется высоким световыходом. Недостатком данного растворителя является высокая токсичность и низкая температура вспышки. В настоящее время по соображениям безопасности псевдокумол (PC) почти не используется, и все большее применение находят растворители с высокой температурой вспышки, такие как

линейный алкилбензол (LAB), фенилксилэтан (PXE) и диизопропилнафталин (DIN). В настоящее время все большее распространение получает линейный алкилбензол (LAB).

В рамках диссертационного исследования были подробно изучены образцы сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола, а также других растворителей (DIN, PC), и сцинтилляционной добавки PPO (2,5-дефинилоксазол).

Основными параметрами жидких сцинтилляторов, которые были исследованы в данной работе, являются световой выход и время высвечивания. Световой выход сцинтиллятора — это один из важнейших параметров для крупномасштабных сцинтилляционных детекторов. Более высокий световой выход позволяет получить больше информации о событии, зарегистрированном детектором. Время высвечивания сцинтиллятора оказывает влияние на временное разрешение детектора и эффективность регистрации совпадений.

Измерения световых выходов и кинетики свечения жидких сцинтилляторов проводились на разработанных для этих целей специализированных измерительных стендах, разработанных для этих целей. Исследуемый сцинтиллятор наливается в кварцевую кювету цилиндрической формы длиной 10 и диаметром 20 мм. Для измерения световых выходов кювета просматривается фотоэлектронным умножителем XP5301B производства фирмы Photonis. Заряды анодных сигналов фотоумножителя регистрируются зарядовоцифровым преобразователем LeCroy 2249W. Кювета 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.

Измерения кинетики свечения жидких сцинтилляторов проводились методом счета коррелированных во времени фотонов (*D.V. O'Connor, D. Philip. Time-correlated Single Photon Counting. London: Academic Press, 1984*). В этом случае в измерительном стенде использовались быстродействующие фотоэлектронные умножители R6427 производства фирмы Hamamatsu Photonics и XP3112PA производства фирмы Photonis и широкодиапазонный времяцифровой преобразователь БПТ-12А1 с шириной канала 75 пс.

Результаты измерений световых выходов сцинтилляторов на основе LAB с различными концентрациями добавки PPO представлены в рисунке 1.

Концентрация PPO, при которой световыход достигает максимального значения составляет 6 г/л.

На рисунке 2 представлены результаты измерений кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB с добавлением PPO.

На рисунке 3 показана зависимость самой быстрой компоненты высвечивания с постоянной времени  $\tau_1$  от концентрации сцинтилляционной добавки PPO.

Также нами было проведено сравнительное измерение световыхода сцинтилляторов на основе растворителей LAB, DIN и псевдокумола (PC) с добавлением 1,5 г/л PPO. На рисунке 4 представлены измеренные зарядовые энергетические спектры трех образцов сцинтилляторов на основе LAB, DIN и PC и 1,5 г/л PPO. Образец сцинтиллятора на основе PC и 1,5 г/л PPO использовался в эксперименте Vorexino.

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

Физические параметры жидких сцинтилляторов, такие как спектр излучения, световыход, кинетика свечения, сильно зависят от

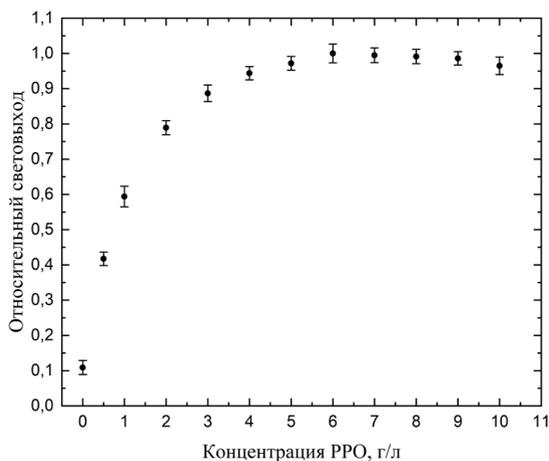


Рисунок 1. Зависимость относительного световыхода сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционной добавки PPO

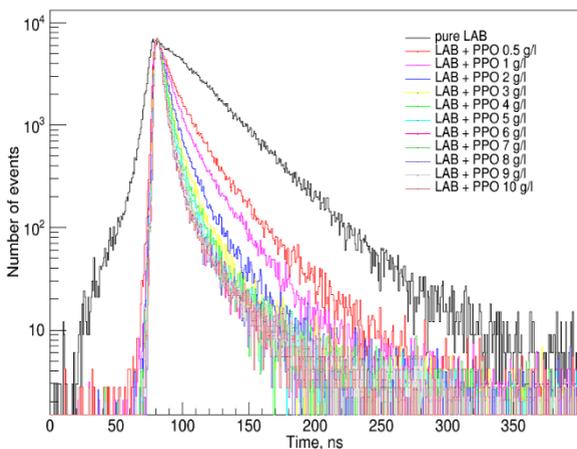


Рисунок 2. Кинетика сцинтиляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционной добавки PPO

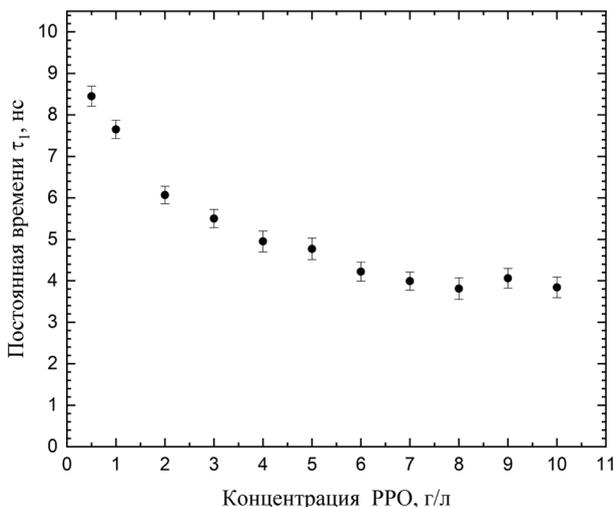


Рисунок 3. Зависимость постоянной времени сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционной добавки PPO

органического растворителя и сцинтилляционных добавок, используемых в сцинтилляторах (*J.B. Birks, Scintillation counters, London. 1953*). Наиболее часто используемый подход при изготовлении жидких сцинтилляторов заключается в использовании двух сцинтилляционных добавок. Первая поглощает энергию возбуждения, выделяемую

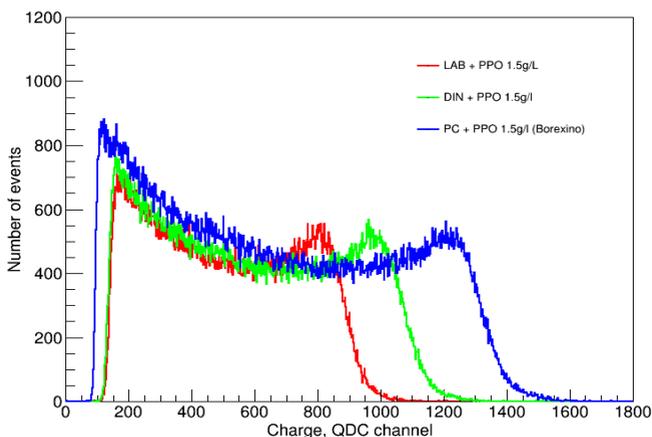


Рисунок 4. Зарядовые спектры импульсов при облучении скintилляторов на основе LAB, DIN и PC гамма-квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ )

в органическом растворителе при прохождении ионизирующего излучения. Вторая добавка является спектросмещающей, и служит для согласования спектра скintилляционного излучения с прозрачностью скintиллятора и чувствительностью фотодетекторов.

В ИСПМ РАН совместно с ИЯИ РАН разработаны новые кремнийорганические скintилляционные добавки, которые можно использовать в качестве единственной добавки, т. е. без добавления вторичных спектросмещающих добавок. Такой подход позволяет повысить эффективность скintиллятора, поскольку нет потерь при переносе возбуждения от первичной добавки к вторичной. Можно также подстраивать спектр излучения новых добавок так, чтобы он соответствовал прозрачности скintилляторов и чувствительности фотодетекторов.

Разработанные скintилляционные добавки представляют собой кремнийорганические соединения. В структуре молекул данных добавок имеются донорные и акцепторные участки, которые могут эффективно продуцировать скintилляционный свет посредством Фёрстеровского резонансного переноса энергии (*T. Förster, Ann. Physik. (Leipzig). 1948. 2, 55–75*).

Таблица 1  
Относительный световыход скintилляторов на основе LAB, DIN и PC с добавлением PPO

Образец скintиллятора	Световыход, 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

На рисунке 5 показана фотография образцов новых сцинтилляторов на основе LAB и одной из новых кремнийорганических сцинтилляционных добавок — Skm219. Максимум спектра излучения Skm219 лежит в области ~490 нм, поэтому сразу встает вопрос об эффективности использования данной добавки с широко используемыми фотоумножителями с бищелочными фотокатодами, максимальная чувствительность которых лежит в синей части спектра. Однако использование фотоумножителей с мультищелочными фотокатодами с чувствительностями, смещенными в более длинноволновую область спектра, может решить эту проблему.

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

Для всех образцов жидких сцинтилляторов с кремнийорганической добавкой Skm219 были получены значения световыхода в относительных единицах по отношению к образцам сцинтилляторов на основе LAB и PPO. Для того, чтобы учесть в проведенных измерениях чувствительность фотоумножителя, была рассчитана усредненная квантовая эффективность фотоумножителя XP5301В для спектров излучения PPO и Skm219. На рисунке 6 на одном графике представлена квантовая эффективность фотоумножителя 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:

$$\langle \eta \rangle = \frac{\sum_{\lambda=300}^{700} S_{\lambda} \cdot \eta_{\lambda}}{\sum_{\lambda=300}^{700} S_{\lambda}}, \quad (1)$$

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



Рисунок 5. Фотография двух образцов жидких сцинтилляторов с кремнийорганическими добавками Skm219 (справа и в центре) и стандартный сцинтиллятор с LAB+PPO (слева)

Усредненная квантовая эффективность фотоумножителя XP5301B составила  $\langle \eta \rangle_{PPO} = 45,85\%$  и  $\langle \eta \rangle_{Skm} = 20,83\%$  для спектров излучения PPO и Skm219, соответственно.

На рисунке 7 показаны зависимости световыхода сцинтиллятора на основе LAB от концентрации сцинтилляционных добавок Skm219 и PPO с поправкой, учитывающей квантовую эффективность фотоумножителя 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  $LY_{Skm219}/LY_{PPO} = 1,87 \pm 0,08$ . Высокий световыход, несомненно, является преимуществом новой кремний-органической сцинтилляционной добавки Skm219.

Результаты измерений кинетики сцинтилляционного свечения образцов жидких сцинтилляторов на основе LAB и сцинтилляционных добавок Skm219 и PPO представлены на рисунке 8. Сцинтилляторы с новыми добавками имеют более медленную кинетику свечения в сравнении со сцинтилляторами с PPO, но данное различие не является критичным.

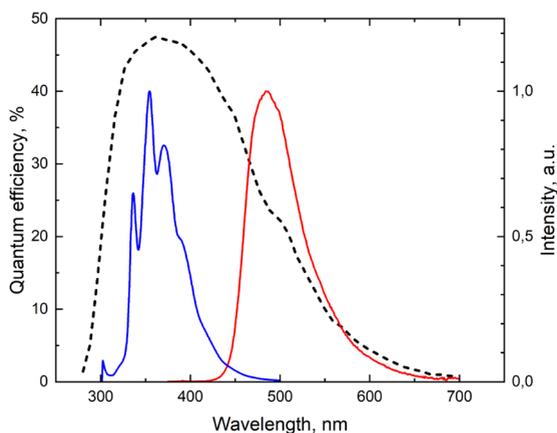


Рисунок 6. Зависимость квантовой эффективности фотоумножителя XP5301B от длины волны (черный цвет) и спектры излучения сцинтилляционных добавок PPO (синий цвет) и Skm219 (красный цвет)

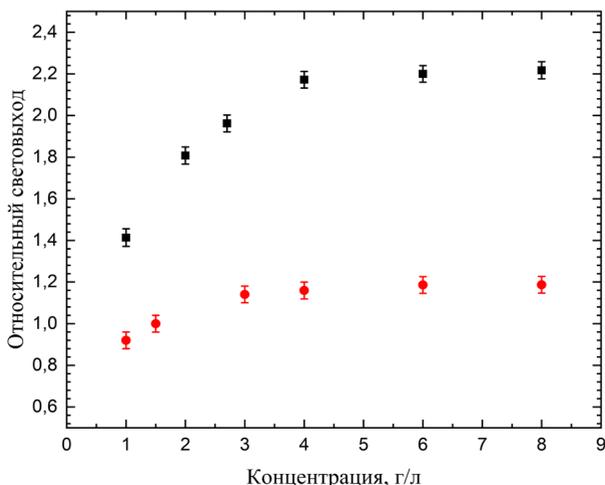


Рисунок 7. Зависимость световыхода от концентрации кремнийорганической сцинтилляционной добавки SKM219 (черный цвет) в сравнении с аналогичной зависимостью для PPO (красный цвет)

В целом по результатам проведенных нами измерений применение новых сцинтилляционных добавок выглядит многообещающим. Для понимания перспективности использования новых сцинтилляционных добавок для массового производства сцинтилляторов необходимо продолжать разработку и исследование новых образцов. Рассматривается также вариант использования разрабатываемых сцинтилляционных добавок для повышения эффективности детектора нового Баксанского нейтринного телескопа большого объема (предполагаемая масса жидкого сцинтиллятора  $\sim 10$  кт) в Баксанской нейтринной обсерватории Института ядерных исследований (БНО ИЯИ) РАН (*N.A. Ushakov et al. J. Phys.: Conf. Ser. 1787(2021)012037*).

В рамках диссертационного исследования были также 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  $^{137}\text{Cs}$ , а в качестве источника альфа-частиц –  $^{238}\text{Pu}$ .

На рисунке 9 показаны различия в форме импульсов между гамма-квантами и альфа-частицами в образцах сцинтилляторов: LAB+PPO (2 г/л) и LAB+SkM219 (4 г/л).

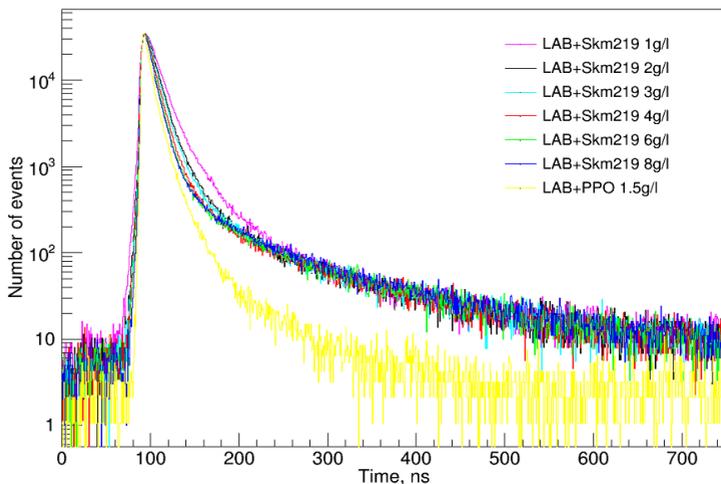


Рисунок 8. Кинетика сцинтиляционного свечения жидких сцинтилляторов на основе LAB и кремнийорганической сцинтилляционной добавки Skm219 (для разных концентраций). Желтая кривая — LAB с PPO

На приведенных рисунках четко видно влияние быстрой и медленной составляющих на форму сцинтиляционного импульса. Также хорошо видно, что разница между гамма-квантами и альфа-частицами в большей степени проявляется в медленной компоненте.

Современные широкомасштабные эксперименты в астрофизике частиц рассчитаны на многолетнюю работу  $\sim 10$  лет и выше. В силу этого, долговременная стабильность параметров является одним из важнейших параметров. Нами проведены измерения стабильности световыхода и кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора на основе LAB и кремнийорганической добавки Skm219 за три полных года с июня 2018 года по июнь 2021 года. В качестве контрольного сцинтиллятора, относительно которого проводились измерения световыхода, был выбран пластиковый сцинтиллятор EJ204. Результаты измерений долговременной стабильности световыхода разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки показаны на рисунке 10. Исследовалась также и долговременная стабильность кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора. На рисунке 11 представлены спектры высвечивания, измеренные в июне 2019 года (красный цвет) и в июне 2021 года (синий цвет).

Как видно из рисунков 10 и 11, каких-либо изменений световыхода и кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора

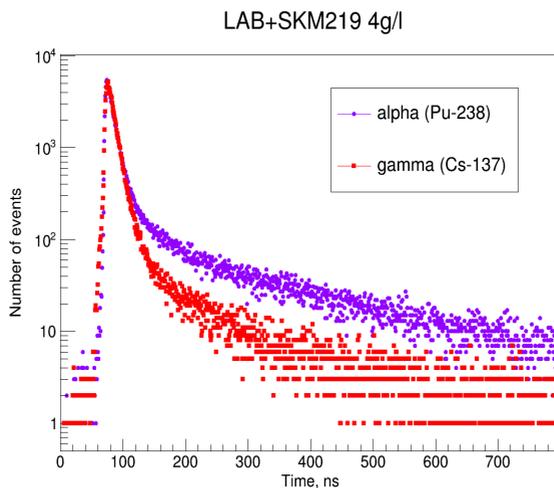
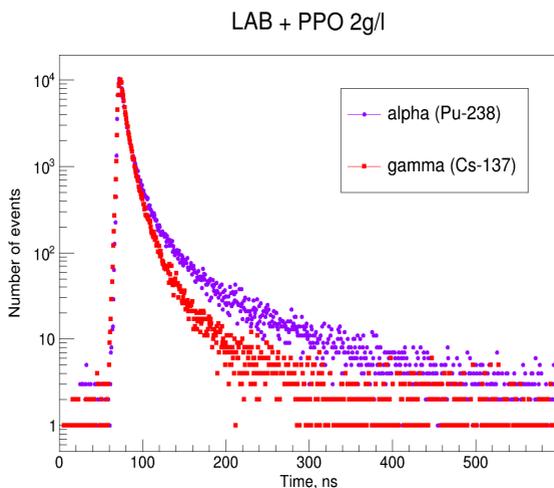


Рисунок 9. Формы импульсов (кинетика свечения) сцинтилляторов LAB+PPO (2 г/л) и LAB+SkM219 (4 г/л) при облучении гамма-квантами ( $^{137}\text{Cs}$ ) и альфа-частицами ( $^{238}\text{Pu}$ )

на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки за три года измерений не обнаружено.

**В третьей главе** описываются способы очистки жидких сцинтилляторов. Оптические свойства жидкого сцинтиллятора чрезвычайно важны в детекторах большого объема. Лабораторная система

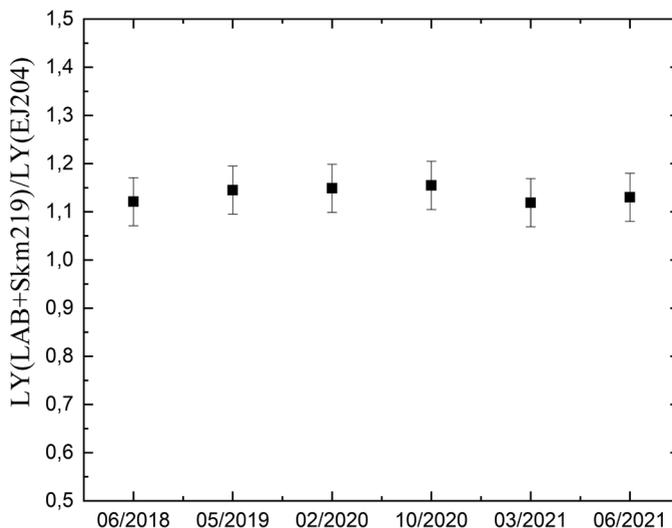


Рисунок 10. Долговременная стабильность световыхода разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки

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. Для эффективной очистки высота столба оксида алюминия должна составлять 5 диаметров колонки.

Для проверки эффективности адсорбционного метода очистки с использованием оксида алюминия было проведено измерение оптических свойств образцов очищенного и неочищенного LAB российского производства (ООО «Киреф», г. Кириши Ленинградской области) и китайского производства. На рисунке 12 представлены кривые поглощения для всех образцов. Образцы LAB помещались кварцевую кювету длиной 10 см. Спектры были получены с помощью спектрофотометра Perkin Elmer Lambda 35.

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. В таблице 2 приведены результаты измерения длины ослабления света для исследованных образцов LAB.

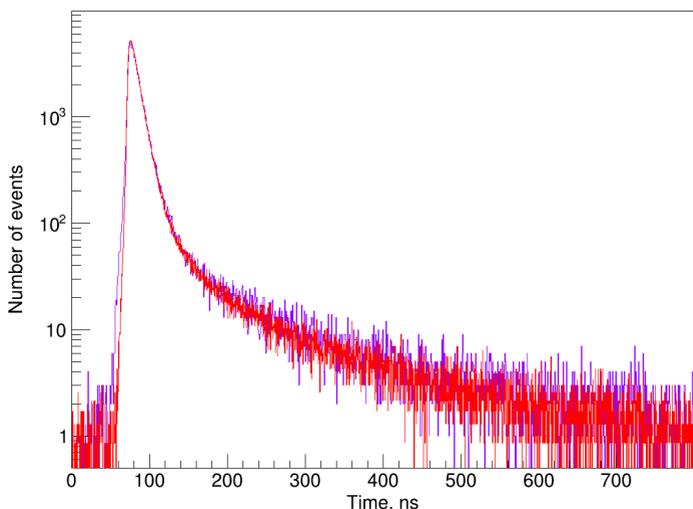


Рисунок 11. Долговременная стабильность кинетики свечения разработанного жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола и кремнийорганической сцинтилляционной добавки. Красный цвет – измерение сделано в июне 2019 года; синий цвет – измерение сделано в июне 2021 года

Таблица 2. 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

Для измерений в области низких энергий ( $E \sim 300$  кэВ) бета-распад долгоживущего радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  является основным источником фона в жидкосцинтилляционных детекторах. На сегодняшний день самое низкое отношение концентраций  $^{14}\text{C}$  к  $^{12}\text{C}$  в жидких сцинтилляторах измерено коллаборацией Borexino для псевдокумола (PC) —  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim (1,94 \pm 0,09) \times 10^{-18}$ . (*G. Alimonti et al. Physics Letters B. 1998. Vol. 422, P. 349*). Есть еще три опубликованных результата для РХЕ и смеси PC с додеканом с самым большим значением  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim (12,6 \pm 0,4) \times 10^{-18}$  (*C. Buck и др. Приборы и техника эксперимента. 2012. N.1. С. 40*) Как уже упоминалось, в настоящее время предпочтительным органическим растворителем для нового поколения крупномасштабных детекторов нейтрино является LAB.

Концентрация  $^{14}\text{C}$  в LAB еще не измерена с достаточной чувствительностью. Подземная лаборатория в шахте Пюхясалми — одна из площадок, где создается специальная установка для таких измерений. Данная лаборатория предназначена для проведения систематического анализа проб органических растворителей различного происхождения и состава с целью определения отношения концентраций  $^{14}\text{C}$  к  $^{12}\text{C}$  ниже  $10^{-18}$  для использования в нейтринных экспериментах следующего поколения.

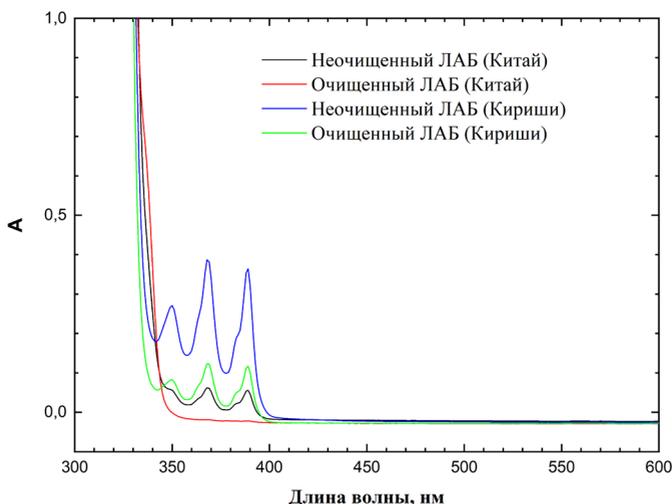


Рисунок 12. Спектры поглощения очищенного и неочищенного LAB различных производителей

Тщательные измерения концентраций  $^{14}\text{C}$  в настоящее время проводятся одновременно в двух глубоких подземных лабораториях: в Баксанской нейтринной обсерватории (БНО) (*Gavriljuk Ju.M. et al. Nuclear Instruments and Methods A. 2013. V.729. P.576*), и в новой низкофоновой лаборатории в Пюхясалми (*L. B. Bezrukov, et al. Physics of Particles and Nuclei. 2018. V.49. N.4. P.769*).

Новая низкофоновая лаборатория в шахте Пюхясалми начала свою работу в начале 2017 года. В этой низкофоновой лаборатории в настоящее время ведутся измерения концентрации радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  в различных образцах жидких сцинтилляторов с помощью разработанной и созданной специализированной экспериментальной установки. Центральная часть этой экспериментальной установки состоит из двух низкофоновых фотоумножителей (ЕТ

9302В с фотокатодом диаметром 3 дюйма), двух акриловых световодов и кварцевого сосуда объемом 1,6 л. Кварцевый сосуд и световоды покрываются пленкой с высоким коэффициентом отражения.

Защита от фона гамма-квантов и нейтронов осуществляется слоями меди и свинца толщиной 10–15 см 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. Система сбора данных разработана с использованием платы DRS4 (V5) (<http://www.psi.ch/drs/documentatio>). Выходные сигналы 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, Германия.

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  $^{241}\text{Am}$ ).

Калибровка 3-дюймовых фотоэлектронных умножителей ET9302В проводилась в лаборатории с использованием быстрого источника света на основе синего светодиода. При обработке данных оцифрованные формы сигналов фотоумножителей анализируются, и формы сигналов используются для подавления фоновых событий.

**Четвертая глава** диссертации посвящена исследованию фотоэлектронных умножителей для использования в жидкосцинтилляционных детекторах.

В коллаборации с ООО «МЭЛЗ ФЭУ» нами были разработаны пилотные образцы фотоэлектронных умножителей с полусферическим фотокатодом диаметром 3 дюйма для жидкосцинтилляционных детекторов следующего поколения. Данный фотоумножитель оснащен полупрозрачным сурьмяно-калиево-цезиевым фотокатодом, 10-диодной линейной умножительной системой и обладает чувствительностью в диапазоне спектра от 300 до 650 нм.

Для исследования характеристик фотоумножителей были разработаны измерительные стенды. Исследуемый фотоумножитель помещается в светонепроницаемый ящик. Для засветки фотокатода фотоумножителя используется оптическое волокно. В качестве источника света во всех измерениях использовался быстродействующий источник на базе ультра ярких синих светодиодов. Сигналы фотоумножителей регистрируются зарядовоцифровым преобразователем LeCroy 2249W. Для исследования распределения времени пролета фотоэлектронов (“джиттер”) при однофотоэлектронной засветке фотокатода использовался времяцифровой преобразователь БПТ-12А1.

На рисунке 13а представлен типичный зарядовый спектр однофотоэлектронных импульсов фотоумножителей. В самых лучших образцах фотоумножителей диаметром 3 дюйма однофотоэлектронное разрешение составляет, 70%, а значения отношения пик-долина ( $P/V$  – Peak-to-Valley ratio) для исследованных фотоумножителей лежат в пределах  $P/V=1,7-5$ . На рисунке 13б представлен типичный зарядовый спектр импульсов фотоумножителей, где интенсивность засветки фотокатода составляет несколько фотоэлектронов. На данном спектре можно различить пики до 4 фотоэлектронов.

Типичные значения частоты счета темного тока при пороге дискриминации  $0,25 Q_{1pe}$  для данного типа фотоумножителей в среднем составляет  $\sim 1$  кГц, а для лучших образцов не превышает 200-300 Гц, где  $Q_{1pe}$  — средний заряд однофотоэлектронного импульса фотоумножителя.

Для исследуемых фотоэлектронных умножителей было также измерено распределение времени пролета фотоэлектронов (“джиттер”) при однофотоэлектронной засветке фотокатода. Результаты измерения для одного из образцов разработанного полусферического фотоумножителя представлены на рисунке 14. Распределение характеризуется величиной  $\Delta t_{FWHM} \sim 3$  нс.

В **пятой главе** представлены результаты тестирования высокоэффективных и быстрых неорганических сцинтилляционных кристаллов 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 ней-

трино (антинейтрино) в жидкосцинтилляционных экспериментах очень важно точно знать энергетический отклик сцинтиллятора. Для исследования эффектов нелинейности в жидких сцинтилляторах могут использоваться неорганические сцинтилляционные кристаллы, поскольку они обладают хорошей линейностью в широком диапазоне энергий.

GAGG(Ce) — гадолиний-алюминий-галлиевый гранат ( $\text{Cd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ ), легированный церием, новый сцинтилляционный кристалл, который зарекомендовал себя как многообещающий материал для различных сфер применения. Преимуществами данного сцинтиллятора является высокий световыход, который может достигать значений 60000 фотонов/МэВ, превосходная линейность в широком диапазоне энергий, отсутствие гигроскопичности. Максимум спектра излучения GAGG(Ce) лежит в области  $\sim 520$  нм. Постоянная времени высвечивания может варьироваться от 50 до 150 нс. Недостатком является наличие значительного послесвечения, которое может наблюдаться в течение многих часов. Данный сцинтиллятор значительно дешевле и доступнее, чем  $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ . Следует отметить, что имеются возможности его производства у нас в стране.

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.

Измерение энергетического разрешения образцов кристаллов GAGG(Ce) проводилось на разработанном для этих целей измерительном стенде. Кристалл GAGG(Ce) просматривается либо фотоэлектронным умножителем XP5301B производства фирмы Photonis либо кремниевым фотоумножителем Hamamatsu MPPC S13360-6075CS с чувствительной площадью  $6 \times 6$  мм<sup>2</sup>. Сигналы фотоумножителей регистрируются быстродействующим оцифровщиком импульсов CAEN N6730. Кристалл облучался источником гамма-квантов с энергией 662 кэВ от радиоактивного источника <sup>137</sup>Cs.

На рисунке 15 представлены измеренные энергетические спектры образцов кристаллов GAGG(Ce) размером  $5 \times 5 \times 5$  мм<sup>3</sup>. На основе этих данных были получены значения энергетического разрешения для каждого образца кристалла. В таблице 3 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>.

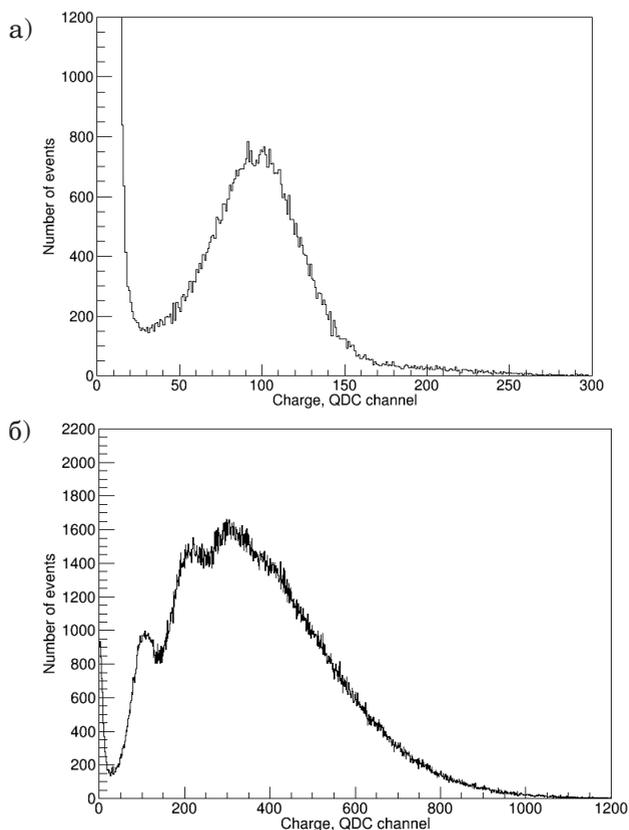


Рисунок 13. Типичные зарядовые спектры однофотозлектронных (а) и многофотозлектронных (б) импульсов разработанного полусферического фотоумножителя

Таблица 3. Энергетическое разрешение и световыход кристаллов GAGG(Ce)

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

На основе полученных данных можно сделать вывод, что наилучшее энергетическое разрешение и световыход показывает обра-

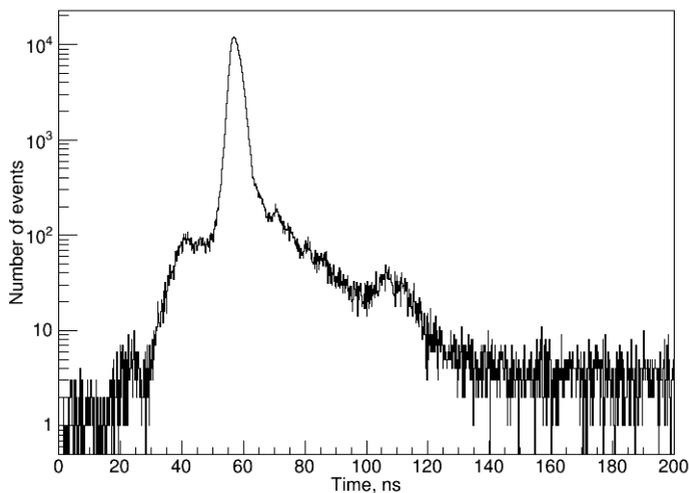


Рисунок 14. Распределение времени пролета фотоэлектронов при однофотоэлектронной засветке фотокатода разработанного полусферического фотоумножителя

зец №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 измерении использовался фотоумножитель XR5301B, производства фирмы Photonis.

Значение энергетического разрешения образца кристалла GAGG(Ce) с использованием кремниевого фотоумножителя Hamamatsu MPPC S13360-6075CS составляет  $R=3,4\%$ .

На рисунке 16 представлены спектры кинетики сцинтилляционного свечения образцов кристаллов GAGG(Ce). Результаты измерений параметров кинетики свечения кристаллов GAGG(Ce) приведены в таблице 4. В скобках указаны вклады различных компонент излучения в общий световыход кристаллов.

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

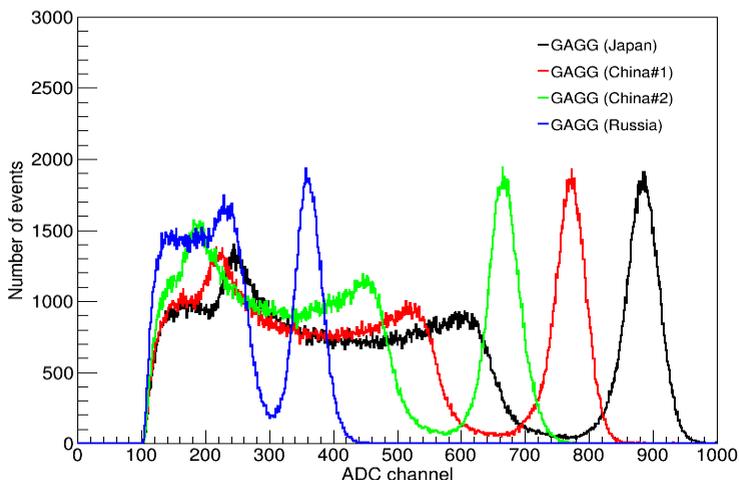


Рисунок 15. Энергетические спектры импульсов при облучении кристаллических сцинтилляторов GAGG(Ce) гамма-квантами с энергией 662 кэВ ( $^{137}\text{Cs}$ ), полученные с помощью фотоумножителя XP5301B

№1), поскольку он имеет достаточно быструю кинетику свечения и показывает лучшее энергетическое разрешение и световыход из всех исследованных образцов.

Таблица 4. Параметры кинетики сцинтилляционного свечения 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%)

В настоящее время нами разрабатывается установка по измерению нелинейности отклика жидкого сцинтиллятора на базе комптоновской спектрометрии с использованием сцинтилляционного кристалла GAGG(Ce). Подобные системы комптоновской спектрометрии для измерения нелинейности отклика жидких сцинтилляторов с использованием неорганических кристаллов LaBr<sub>3</sub>:Ce

и NaI(Tl) создавались ранее, (*Zhang Fei-Hon et al. arXiv:1403.3257. 2014, H. Wan Chan Tseung, et al. arXiv:1105.2100. 2011*). Однако, сцинтиллятор GGAG(Ce) дешевле и доступнее, чем LaBr<sub>3</sub>:Ce, и имеет существенно более быструю кинетику свечения и значительно больший световой выход, чем NaI(Tl). Параллельно планируется провести измерения нелинейности отклика и с набором радиоактивных изотопов с энергиями гамма-квантов от 20 кэВ и выше для проверки и калибровки системы.

**В Заключение** приведены основные результаты работы.

1. Разработаны и созданы совместно с ИСПИМ РАН жидкие сцинтилляторы с повышенным световым выходом на основе новых кремний-органических сцинтилляционных добавок и линейного алкилбензола для экспериментов следующего поколения в астрофизике частиц. Световой выход новых сцинтилляторов в  $\sim 1,87 \pm 0,08$  раза превышает световой выход 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 светового выхода),  $\tau_2 = 49,6 \pm 7,3$  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 светового выхода 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 жидкосцинтилляционных 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 эффек-

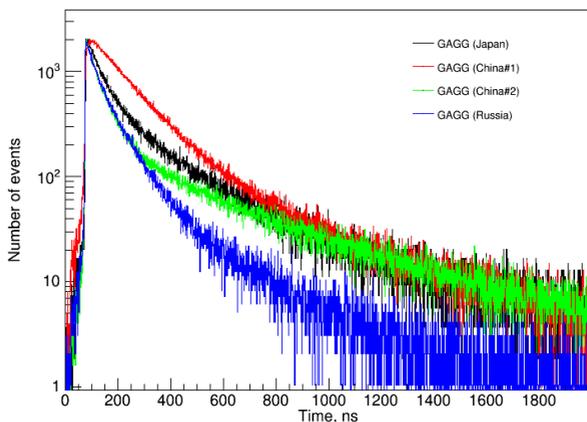


Рисунок 16. Кинетика сцинтилляционного свечения кристаллов GAGG(Ce)

тов 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 фотомножителя Hamamatsu-MPPC S13360-6075CS и  $R=6,8\%$  (FWHM) для фотомножителя 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.

Научное издание

Сидоренков Андрей Юрьевич

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

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Ф-т 60x84/16 Уч.-изд.л. 1,7 Зак. № 22475 Тираж 80 экз. Бесплатно

Печать цифровая

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт ядерных исследований Российской академии наук

Издательский отдел

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