



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

13-2019-14
На правах рукописи

НЕМЧЕНОК

Игорь Борисович

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

Специальность: 01.04.01 — приборы и методы
экспериментальной физики

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
доктора технических наук

Дубна 2019

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В.И. Дзелепова Объединенного института ядерных исследований.

Официальные оппоненты:

Бузулуцков Алексей Федорович, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник ФГБУ науки Институт ядерной физики им. Г.И. Булкера Сибирского отделения Российской академии наук.

Кузьмичев Леонид Александрович, доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией Научно-исследовательского института ядерной физики им. Д.В. Скобельцына МГУ им. М.В. Ломоносова.

Рыкалин Владимир Иванович, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник ФГБУ «Институт физики высоких энергий им. А.А. Логунова НИЦ «Курчатовский институт».

Ведущая организация:

ФГБУ науки Институт ядерных исследований Российской академии наук.

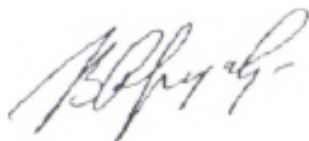
Защита состоится «___» _____ 2019 г. в _____ часов на заседании диссертационного совета Д 720.001.02 Лаборатории физики высоких энергий им. В.И. Векслера и А.М. Балдина Объединенного института ядерных исследований.

Адрес: ОИЯИ, ул. Жолио-Кюри, 6, 141980, Дубна, Московская область.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ и на сайте http://wwwinfo.jinr.ru/dissertation/Disser_NemchenokIB.pdf.

Автореферат разослан «___» _____ 2019 г.

Ученый секретарь диссертационного совета,
кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник



В.А. Артюхин

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Как и для детектора любой природы, основное свойство сцинтилляционного детектора – эффективность регистрации. Характеристикой, специфической для сцинтилляционного метода, но не менее важной, чем эффективность регистрации, является световыход, связанный с энергетическим разрешением. Абстрагируясь от конструкции детектора и условий измерения, можно утверждать, что оба эти параметра находятся в прямой зависимости от материала сцинтиллятора.

Органические сцинтилляторы (ОС) «стандартного состава» (не содержащие кроме углерода и водорода каких-либо других специально введенных элементов) чувствительны к заряженным частицам (электронам, протонам, α -частицам, мюонам космических лучей и др.), нейтронам средних и высоких энергий. Регистрация γ - и рентгеновских квантов возможна при использовании достаточных объемов рабочего вещества. Основными направлениями совершенствования ОС «стандартного состава» являются: увеличение световыхода, улучшение спектрометрических свойств и увеличение безопасности при работе. ОС «стандартного состава» можно рассматривать как основу для направленной модификации элементного состава и расширения спектра материалов детекторов, пригодных для решения разнообразных физических задач. Введение в пластмассовые (ПС) и жидкие (ЖС) сцинтилляторы соединений некоторых элементов открывает путь к новому поколению ОС с повышенной эффективностью регистрации отдельных видов излучений. Такие элементосодержащие органические сцинтилляторы (ЭОС) могут быть с успехом использованы в фундаментальных физических экспериментах (Таблица 1).

Таблица 1 – Области применения ЭОС в фундаментальных исследованиях

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

В то же время, они представляют интерес и для прикладных исследований: дозиметрия; радиоэкологический мониторинг воды, продуктов питания, строительных материалов; регистрация нейтронов в смешанных n, γ -полях; контроль несанкционированного перемещения радиоактивных материалов.

Таким образом, **актуальность** настоящей работы определяется постоянно возрастающей потребностью в детекторах на основе органических сцинтилляторов с повышенной эффективностью регистрации отдельных видов излучений,

пригодных для использования в крупномасштабных физических экспериментах.

Степень разработанности темы исследования. Автор в полной мере разработал сформулированную тему исследования. В работе описаны методы получения новых органических сцинтилляторов (как «стандартного состава», так и целого семейства элементосодержащих: гадолинийсодержащих, жидких и пластмассовых; борсодержащих, жидких и пластмассовых; неодимсодержащих жидких и пластмассовых; кадмийсодержащих, жидких и пластмассовых), пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах в области нейтринной физики. Проведено подробное исследование свойств новых детектирующих материалов. Одновременно с этим особое внимание уделено усовершенствованию оборудования для получения пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола, что привело к улучшению их качества и увеличению мощности их производства в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Цель исследования. Целью настоящего диссертационного исследования является разработка совокупности методов получения, а также усовершенствование и экспериментальное исследование пластмассовых и жидких сцинтилляторов для крупномасштабных нейтринных детекторов.

Задачи исследования:

1. Разработка и исследование свойств жидкого сцинтиллятора «стандартного состава», пригодного для использования в крупномасштабных детекторах.
2. Разработка и исследование свойств семейства элементосодержащих жидких сцинтилляторов, пригодных для использования в крупномасштабных детекторах.
3. Разработка и исследование свойств семейства элементосодержащих пластмассовых сцинтилляторов.
4. Усовершенствование технологии изготовления пластмассовых сцинтилляторов «стандартного состава» на основе полистирола для создания детекторов с улучшенными свойствами.

Объекты исследования – пластмассовые сцинтилляторы на основе полистирола и полиметилметакрилата, жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола и его смесей с трибутилфосфатом, смесей 1-метилнафталина с трибутилфосфатом, смесей фенилциклогексана с дифенилоксидом.

Предмет исследования – методы получения пластмассовых и жидких сцинтилляторов, их характеристики.

Научная новизна работы определяется:

1. Разработкой и исследованием свойств жидкого сцинтиллятора «стандартного состава», предназначенного для использования в крупномасштабных экспериментах.
2. Разработкой и исследованием свойств жидкого гадолинийсодержащего сцинтиллятора, предназначенного для использования в крупномасштабных экспериментах.
3. Использованием о-карборана в качестве элементосодержащей добавки для получения борсодержащих пластмассовых и жидких сцинтилляторов, при-

годных для использования в крупномасштабных экспериментах, исследованием их свойств.

4. Использованием комплексных соединений солей гадолиния и неодима с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты в качестве элементосодержащих добавок для получения гадолиний- и неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.

5. Разработкой и исследованием свойств гадолинийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов с рекордной массовой долей (4%) металла.

6. Разработкой и исследованием неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.

7. Разработкой и исследованием неодимсодержащих жидких сцинтилляторов, пригодных для использования в крупномасштабных экспериментах.

8. Разработкой и исследованием пластмассовых кадмийсодержащих сцинтилляторов.

9. Разработкой и исследованием свойств жидких кадмийсодержащих сцинтилляторов с высокой температурой вспышки.

Практическая ценность работы:

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

– эксперимента по исследованию двойного β -распада NEMO-3 (LSM, г. Модан, Франция);

– создания нескольких модификаций низкофонового детектора BiPO , предназначенного для измерения сверхнизких уровней естественной радиоактивности пленочных материалов (LSM, г. Модан, Франция; Canfranc, Испания);

– создания вето-системы Демонстратора SuperNEMO для поиска безнейтринного двойного β -распада ^{82}Se (LSM, г. Модан, Франция);

– экспериментов по исследованию широких атмосферных ливней: НЕВОД-ШАЛ (НИУ «МИФИ»), в Чешском Техническом университете в Праге.

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

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

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

Методология и методы исследования. В основу настоящей работы положены экспериментальные методы. Это исследования по разработке, оптимизации состава и направленному получению новых сцинтилляционных материа-

лов, изучение свойств разработанных сцинтилляторов ядерно-физическими и оптическими методами.

Положения и результаты, выносимые на защиту:

1. Разработан жидкий сцинтиллятор «стандартного состава», используемый в крупномасштабном нейтринном эксперименте Daya Bay.

2. Разработан жидкий гадолинийсодержащий сцинтиллятор, используемый в нейтринном эксперименте Daya Bay.

3. Разработаны технологические схемы производства гадолинийсодержащей добавки, ЖС «стандартного состава» и гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора для нейтринного эксперимента Daya Bay.

4. Показана возможность использования о-карборана в качестве добавки для получения борсодержащих сцинтилляторов: пластмассовых и жидких, пригодных для использования в крупномасштабных детекторах.

5. Разработан метод получения гадолиний- и неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов. Получены гадолинийсодержащие сцинтилляторы с рекордной концентрацией металла.

6. Получены неодимсодержащие жидкие сцинтилляторы, пригодные для использования в крупномасштабных экспериментах.

7. Получены пластмассовые и жидкие кадмийсодержащие сцинтилляторы с высокой температурой вспышки.

8. Разработан проект и введен в эксплуатацию участок по производству высококачественных пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола.

9. Исследованы свойства разработанных материалов.

Степень достоверности результатов. Достоверность полученных результатов определяется:

- воспроизводимостью разработанных экспериментальных методик;
- стандартными методами обработки экспериментальных данных;
- использованием сертифицированного оборудования или его комплектующих.

Апробация работы. Результаты, представленные в диссертации, доложены на семинарах и рабочих совещаниях в Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований (Дубна, Россия), в Лаборатории линейных ускорителей (LAL, Орсэ, Франция), в Карловом университете (Прага, Чехия), в Генуэзском отделении Национального института ядерной физики (Генуя, Италия), в Институте физики высоких энергий Китайской Академии Наук (Пекин, Китай), в Университете Гонконга (Гонконг, Китай), в Китайском университете Гонконга (Гонконг, Китай), в университете Новой Горицы (Новая Горица, Словения), а также на ряде научных конференций: Международная конференция по ядерной физике «Кластеры в ядерной физике» (50 совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра), Санкт-Петербург, 2000 г.; 33 научная Ассамблея Комитета космических исследований, Варшава, Польша, 2000 г.; 14 Международный симпозиум по спиновой физике, Осака, Япония, 2000 г.; III Международное совещание по идентификации Темной материи, Йорк, Великобритания, 2000 г.; V Международное совещание «Пробле-

мы прикладной спектроскопии и радиометрии. ППСР-2001», Дубна, Россия, 2001 г.; Международная конференция «Новая физика в неускорительных экспериментах. NANP'01», Дубна, Россия, 2001; Международная конференция Европейской федерации полимеров, EUROPOC 2001, Эйнховен, Нидерланды; 52 Международное Собрание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2002, Москва, Россия, 2002 г.; Пятая Международная конференция «Современные проблемы ядерной физики», Самарканд, Узбекистан, 2003 г.; 58 Международное Собрание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2008, Москва, Россия, 2008 г.; Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии, ИСМАРТ-2008» Харьков, Украина, 2008 г.; 60 Международная конференция по ядерной физике, Ядро 2010, Санкт-Петербург, Россия, 2010 г.; Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии», Харьков, Украина, 2010 г.; 61 Международная конференция по проблемам ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра, Ядро 2011, Саров, Россия, 2011 г.; Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии», Дубна, Россия, 2012 г.

Личный вклад. Автор был инициатором, руководителем и непосредственным участником всех работ, результаты которых вошли в диссертацию. Содержание диссертации, основные положения, выносимые на защиту, практическая значимость полученных результатов отражают персональный вклад автора.

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

Структура и объем диссертации

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

Содержание работы

Первая глава представляет собой литературный обзор, в котором охарактеризованы особенности состава и свойств органических сцинтилляторов, проанализировано современное состояние исследований в области разработки ЭОС.

Жидкие и пластмассовые сцинтилляторы достаточно близки по своей природе и являются растворами сцинтилляционных добавок и некоторых других веществ в жидких или полимерных растворителях, соответственно, в первую очередь, ароматического ряда. Постоянный интерес к органическим сцинтилляторам определяется их доступностью, низким собственным радиоактивным фоном, возможностями его дальнейшего снижения и устойчивостью к воздействиям окружающей среды. Естественным ограничением их использования является невысокая эффективность регистрации отдельных видов излу-

ний, связанная с элементным составом. Однако молекулярный характер люминесценции ОС предоставляет возможность направленного изменения их свойств для получения новых детектирующих материалов, обогащенных специально подобранными элементами и/или их изотопами и обладающих, поэтому, повышенной эффективностью регистрации отдельных видов излучения.

В настоящее время накоплен существенный опыт модификации состава ОС, введения в них элементов, придающих новые свойства. В качестве элементосодержащих добавок используются соединения различных классов: неорганические соли, соли карбоновых кислот, комплексные, элементоорганические и другие вещества (Таблица 2).

Таблица 2 – Элементосодержащие добавки, используемые для получения ЭОС

Элемент	Элементосодержащие добавки
Бор	1. Триметилборат (ЖС). 2. Метаборат, тетраборат, тетрафтороборат лития (ПС). 3. N,N,N-Триметилборазол (ЖС). 4. Декаборан, аллилдекаборан, изопронил-о-карборан (ПС).
Кадмий	1. Пропионат (ЖС). 2. Хлорид (ЖС).
Литий	1. Хлорид (ЖС). 2. Фторид (ПС). 3. Салициат (ЖС, ПС), метакрилат и другие карбоксилаты (ПС). 3. Метилат (ЖС). 5. Фосфат (ЖС).
Индий	1. Триметилгексаноат, 2- метилвалерат и другие карбоксилаты (ЖС). 2. Трифторацетат (ЖС). 3. Хлорид (ЖС). 4. Ацетилацетонат (ЖС).
Иттербий	1. 2-Метилгексаноат (ЖС). 2. Хлорид (ЖС).
Гадолиний	1. Нитрат (ЖС). 2. Дипивалоилметанат (ЖС). 3. Карбоксилаты (ЖС). 4. Ацетилацетонат (ЖС).
Неодим	2-Метилвалерат (ЖС).
«Тяжелые» элементы	Металлоорганические соединения: тетраметил-, тетрабутил-, тетрафенилолово; дифенилртуть; тетрафенилсвинец; трифенилвисмут; трифенилмышьяк (ЖС, ПС).

В качестве основ для получения ЭОС используются разнообразные жидкие и полимерные органические соединения и их смеси (Таблица 3).

Таблица 3 – Индивидуальные вещества и их смеси, используемые в качестве сцинтилляционных основ для получения ЭОС

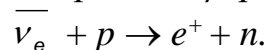
Сцинтилляторы	Сцинтилляционная основа
Жидкие	<p>Ароматические углеводороды: толуол; фенилциклогексан; 1,2,4-триметилбензол; ксилолы; линейный алкилбензол; фенилксилилэтан; изопропилбифенил; диизопропилбифенил; 1-метилнафталин; 1,6-диметилнафталин и др.</p> <p>Простые эфиры: диоксан; анизол.</p> <p>Другие соединения: 1-гидрокситолуол; атмосферный соляр.</p> <p>Смеси: толуол + метанол; вода + диоксан; фенилэтиловый спирт + этиленгликоль; ксилол + фенилэтиловый спирт; минеральное масло + 1,2,4-триметилбензол + 2-этоксиэтанол.</p>
Пластмассовые	Полистирол; поливинилтолуол; полиметилметакрилат; полиметилметакрилат + полистирол; полисилоксаны.

В главе описаны многочисленные примеры ЭОС. Особое внимание уделено их свойствам и использованию в крупномасштабных детекторах (Palo Verde, Daya Bay, Double Chooze, RENO), которое во многом определяет дальнейшее развитие фундаментальных физических представлений.

Вторая глава посвящена разработке жидких сцинтилляторов для реакторного нейтринного эксперимента Daya Bay, а также нашим методическим исследованиям по получению гадолинийсодержащих жидких сцинтилляторов.

В 2012 г. в эксперименте Daya Bay впервые был надежно измерен угол смешивания нейтрино θ_{13} [1]. Вскоре этот результат был подтвержден и экспериментом RENO [2]. Измерение θ_{13} с высокой точностью стало возможным благодаря реализации в Daya Bay трех важных условий: наличию мощных реакторных установок; снижению и учету естественного фона; созданию крупнотоннажных детекторов.

В эксперименте измеряется поток электронных антинейтрино от реакторов, детектируемый посредством обратного β -распада на протоне



Для уменьшения времени захвата теплового нейтрона, образующегося в реакции, и увеличения энергии выделяемых γ -квантов, по сравнению с ОС «стандартного состава», в которых захват происходит в основном на ядрах водорода с энерговыделением 2,2 МэВ, в эксперименте Daya Bay используется Gd-содержащий жидкий сцинтиллятор. При захвате нейтрона изотопами ^{155}Gd и ^{157}Gd с сечением на 5 порядков выше, чем для водорода, испускаются каскады γ -кванты с суммарной энергией 8 МэВ [3]. Эта схема детектирования впервые была предложена Коуэном и Рейнесом [4].

Установка Daya Bay включает в себя три детектора: два ближних и один дальний. Все детекторы сегментированы и состоят из одинаковых модулей (Рисунок 1). Ближние детекторы состоят из двух модулей, дальний детектор – из четырех. Каждый модуль детектора является конструкцией, состоящей из трех коаксиальных цилиндров, полностью просматриваемой 192 фотоэлектронными умножителями. Наружный цилиндр изготовлен из нержавеющей стали. Промежуточный и внутренний цилиндры – из высококачественного акрилового полимера, прозрачного в видимой области спектра. Внутренний цилиндр заполнен мишенью – Gd-содержащим жидким сцинтиллятором с массовой долей металла 0,1%. В пространство между внутренним и промежуточным цилиндром помещен ЖС «стандартного состава», выполняющий роль ловушки γ -квантов. Пространство между наружным и промежуточным цилиндром заполнено минеральным маслом с высокой прозрачностью, играющим, в первую очередь, роль нейтронной защиты. Каждый модуль содержит 20 тонн Gd-содержащего жидкого сцинтиллятора и 20 тонн жидкого сцинтиллятора «стандартного состава».

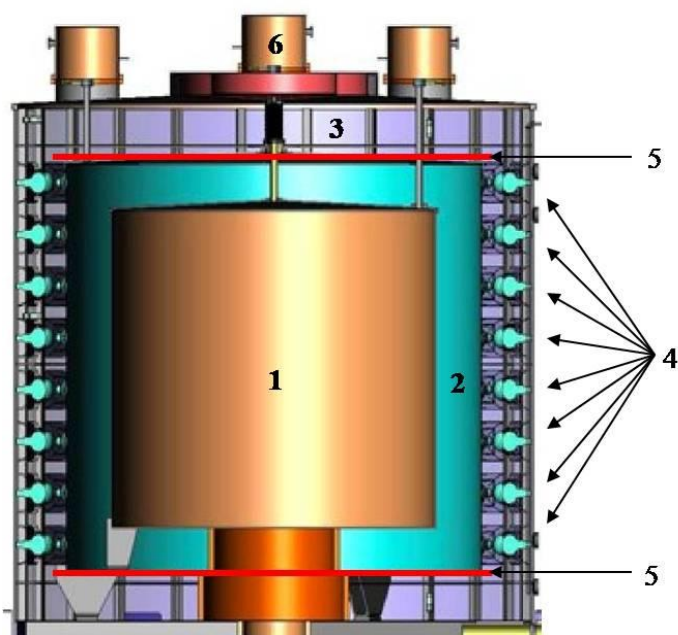


Рисунок 1 – Схема модуля детектора антинейтрино в эксперименте Daya Bay: 1 – внутренний цилиндр с Gd-содержащим жидким сцинтиллятором; 2 – промежуточный цилиндр с ЖС «стандартного состава»; 3 – наружный цилиндр с минеральным маслом; 4 – ФЭУ; 5 – отражатели света; 6 – устройство для калибровки

В коллаборации были сформулированы требования к жидким сцинтилляторам, пригодным для использования в эксперименте: высокое содержание водорода, высокий световыход, прозрачность, безопасность в использовании, инертность к материалу стенок детектора, доступность и низкая цена. Одновременная реализация этих условий – непростая задача, решать которую пришлось уже на первой стадии разработки – этапе выбора растворителя. В связи с этим внимание коллаборации привлек линейный алкилбензол (ЛАБ) – крупнотоннажный продукт нефтехимической промышленности. Линейный алкилбензол дешев и доступен, так как является полупродуктом для изготовления био-разлагающихся синтетических моющих средств и поэтому в больших количествах производится рядом крупных нефтехимических компаний. Линейный алкилбензол – торговое наименование смеси моноалкилпроизводных бензола. Его

компоненты содержат от 10 до 13 атомов углерода в боковой цепи (Таблица 4). Ароматический характер ЛАБ позволил ожидать от него высокой конверсионной эффективности, обеспечивающей хороший световыход ЖС на его основе.

Таблица 4 – Состав линейного алкилбензола производства ООО «ПО Киришинефтеоргсинтез» [5]

Компоненты ЛАБ	Массовая доля, %
Децилбензолы	13
Ундецилбензолы	27
Додецилбензолы	35
Тридецилбензолы	25

Очень важно, что физико-химические свойства линейного алкилбензола (высокие температуры кипения и вспышки, высокое содержание водорода) (Таблица 5) полностью соответствуют требованиям, сформулированным выше.

Таблица 5 – Физико-химические характеристики линейного алкилбензола производства ООО «ПО Киришинефтеоргсинтез» [5]

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

Для исследований по разработке нового ЖС нами использован ЛАБ производства ООО «ПО Киришинефтеоргсинтез». В спектрах его поглощения присутствуют три достаточно интенсивные полосы в области 350 – 400 нм, а в спектрах излучения – три полосы в области 380 – 450 нм. Эти полосы не характерны для моноалкилпроизводных бензола и, по нашему мнению, имеют «примесное» происхождение. Действительно, очистка линейного алкилбензола на стеклянных адсорбционных колонках, заполненных свежепрокаленной окисью алюминия, позволила практически полностью избавиться от них.

В качестве сцинтилляционной добавки для этого ЖС выбран 2,5-дифенилоксазол (РРО), а в качестве кандидатов на использование вторичными сцинтилляционными добавками – три соединения: 1,4-бис(5-фенил-2-оксазолил)-бензол (РОРОР), его гомолог 1,4-бис(4-метил-5-фенил-2-оксазолил)-бензол (диметил-РОРОР) и 1,4-бис(2-метилстирил)-бензол (bis-MSB). Оптимизация состава нового ЖС основана на измерении световыхода как функции концентрации первичной и вторичной сцинтилляционных добавок. Нами установлено, что оптимальное значение массовой доли РРО составляет 0,5%. Что касается вторичных добавок, то максимальный световыход достигается уже при их концентрациях, равных 0,0025%.

Окончательный выбор состава ЖС сделан с учетом его прозрачности (расстояния, на котором происходит ослабление света в «е» раз) (Таблица 6).

Все три сцинтиллятора имеют практически одинаковый световыход. Однако ЖС, содержащий диметил-РОРОР, существенно менее прозрачен. Таким образом, для использования в эксперименте Daya Bay нами были рекомендованы сцинтилляторы, содержащие РОРОР или bis-MSB.

Таблица 6 – Свойства жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» на основе линейного алкилбензола

Состав сцинтиллятора	Световыход*	Прозрачность, м
0,5% РРО; 0,0025% РОРОР	1,02	9,8 ± 1,4
0,5% РРО; 0,0025% диметил-РОРОР	1,00	3,0 ± 1,4
0,5% РРО; 0,0025% bis-MSB	1,02	9,8 ± 1,4

*Относительно жидкого сцинтиллятора состава: растворитель – псевдокумол; первичная добавка – РРО (5 г/л); вторичная добавка – bis-MSB (10 мг/л).

Анализ результатов контроля качества ЛАБ за 2005 год, предоставленных производителем, показал, что в процессе его изготовления возможна вариация содержания основных компонентов, не превышающая, однако, 4%. В связи с этим нами было изучено влияние компонентного состава ЛАБ на световыход ЖС. Для этого на его основе приготовлены и исследованы ЖС (Таблица 7), обогащенные отдельными компонентами (децилбензолом, ундецилбензолом и додецилбензолом), взятыми количестве 20% от объема ЛАБ.

Таблица 7 – Световыход жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола, обогащенного отдельными компонентами

Состав сцинтиллятора	Световыход*
ЛАБ + 0,5 % РРО + 0,0025% РОРОР	1,02 ± 0,07
ЛАБ + децилбензол + 0,5 % РРО + 0,0025% РОРОР	0,86 ± 0,06
ЛАБ + ундецилбензол + 0,5 % РРО + 0,0025% РОРОР	0,99 ± 0,07
ЛАБ + додецилбензол + 0,5 % РРО + 0,0025% РОРОР	0,92 ± 0,07

*Относительно жидкого сцинтиллятора состава: растворитель – псевдокумол; первичная добавка – РРО (5 г/л); вторичная добавка – bis-MSB (10 мг/л).

Оказалось, что возможные незначительные колебания состава ЛАБ не должны приводить к заметному изменению свойств ЖС, так как даже 20% обогащение одним из его компонентов снижает световыход не более, чем на 15%.

Одной из центральных задач эксперимента стала разработка нового гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора (Gd-ЖС), соответствующего следующим критериям:

- массовая доля металла – 0,1%÷0,15%;
- высокая прозрачность;
- высокий световыход;
- высокая устойчивость;

- высокая температура вспышки;
- низкая токсичность;
- совместимость с материалом стенок детектора;
- доступность и стоимость сырья для производства 185 тонн сцинтиллятора.

Два существенных момента определили направления исследований по разработке нового сцинтиллятора: выбор растворителя и выбор гадолинийсодержащей добавки. Наиболее приемлемым, в качестве растворителя, оказался ЛАБ. Что касается гадолинийсодержащей добавки, то предварительные исследования показали, что наиболее подходящими для этого являются карбоксилаты гадолиния. Примером удачного использования одного из них (2-этилгексаноата гадолиния) служит эксперимент Palo Verde [6, 7]. В коллаборации Daya Bay была исследована возможность использования солей нескольких карбоновых кислот: 2-метилвалериановой, 2-этилгексановой и 3,5,5-триметилгексановой (НТМНА). Обнаружено, что 2-метилвалерат гадолиния недостаточно устойчив, а 2-этилгексаноат малорастворим в ЛАБ. Этих недостатков лишен 3,5,5-триметилгексаноат гадолиния (Gd-ТМНА).

Таким образом, был сформулирован окончательный состав Gd-ЖС:

- основное вещество сцинтиллятора – линейный алкилбензол;
- концентрация гадолиния – 0,1% (в форме Gd-ТМНА);
- сцинтилляционная добавка – РРО (3 г/л);
- вторичная сцинтилляционная добавка – bis-MSB (15 мг/л).

Производство Gd-ТМНА состоит из шести стадий:

1. Первая вакуумная перегонка НТМНА;
2. Вторая вакуумная перегонка НТМНА;
3. Приготовление водного раствора $GdCl_3 \times 6H_2O$;
4. Получение аммонийной соли НТМНА: $NH_3 + НТМНА \longrightarrow NH_4ТМНА$;
5. Получение Gd-ТМНА:
 $GdCl_3 \times 6H_2O + 3NH_4ТМНА \longrightarrow Gd(ТМНА)_3 \times 3H_2O + 3NH_4Cl + 3H_2O$;
6. Фильтрация и промывка Gd-ТМНА.

Для производства Gd-ТМНА нами предложена технологическая схема (рисунок 2). При ее разработке учтены следующие условия:

- безопасность производства;
- простота;
- невысокая стоимость оборудования;
- возможность масштабирования.

Для приготовления ЖС и Gd-ЖС нами разработаны три варианта технологической схемы, отличающиеся друг от друга способом перемещения жидкостей: давлением газообразного азота, самотеком или при помощи перекачивания насосами. Последний из них (Рисунок 3) был принят коллаборацией за основу для дальнейшего проектирования.

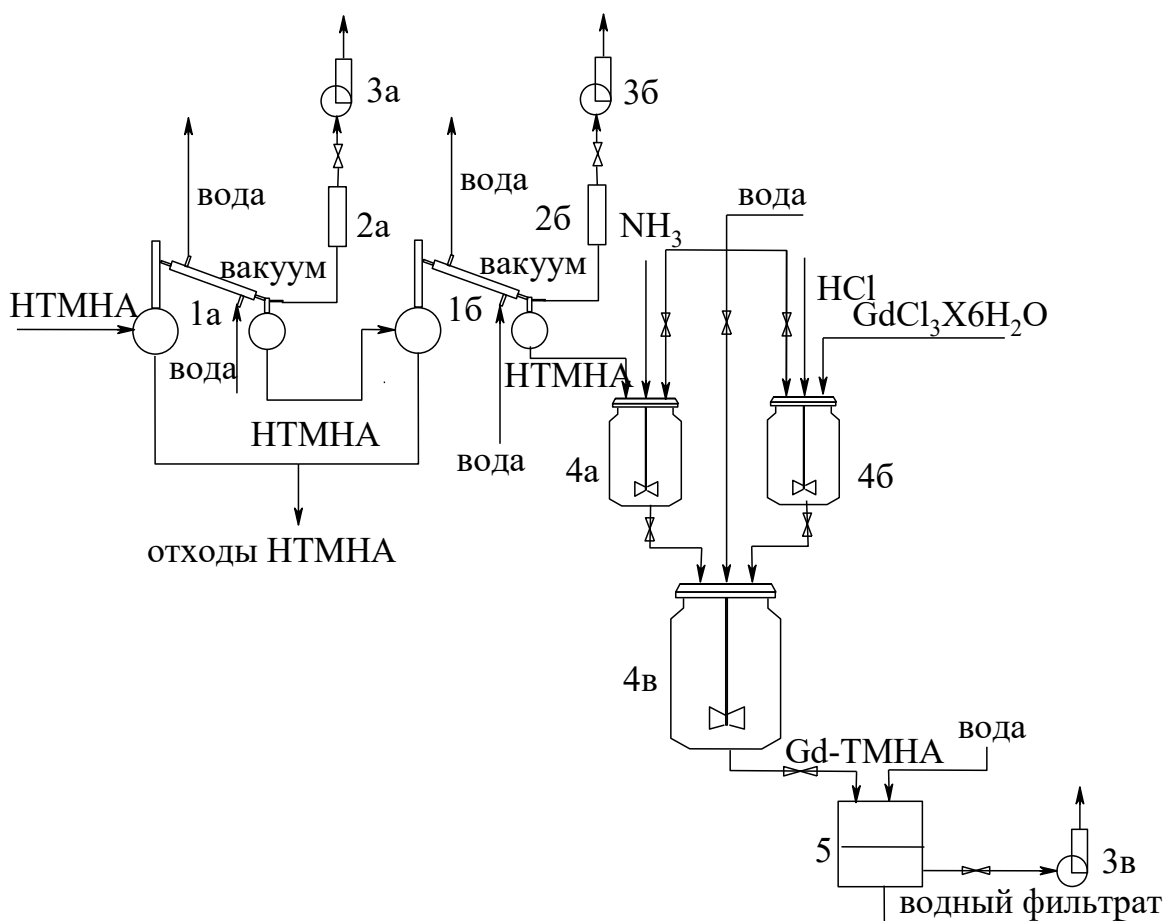


Рисунок 2 – Технологическая схема производства 3,5,5-триметилгексаноата гадолиния: 1а,1б – установки для вакуумной перегонки; 2а, 2б – вакуумные ловушки; 3а – 3г – форвакуумные насосы; 4а – 4в – реакционные аппараты; 5 – фильтр

Интересно было исследовать временные свойства ЖС и Gd-ЖС на основе линейного алкилбензола. Это тем более важно, что ЛАБ достаточно нов в качестве основы для сцинтилляторов. В Таблице 8 представлены результаты выполненных нами измерений временных характеристик (с точностью около 10 %) трех ЖС на основе ЛАБ. Оказалось, что введение гадолиния в количестве 0,1% приводит лишь к незначительному «замедлению» сцинтиллятора.

Таблица 8 – Временные свойства жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола

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

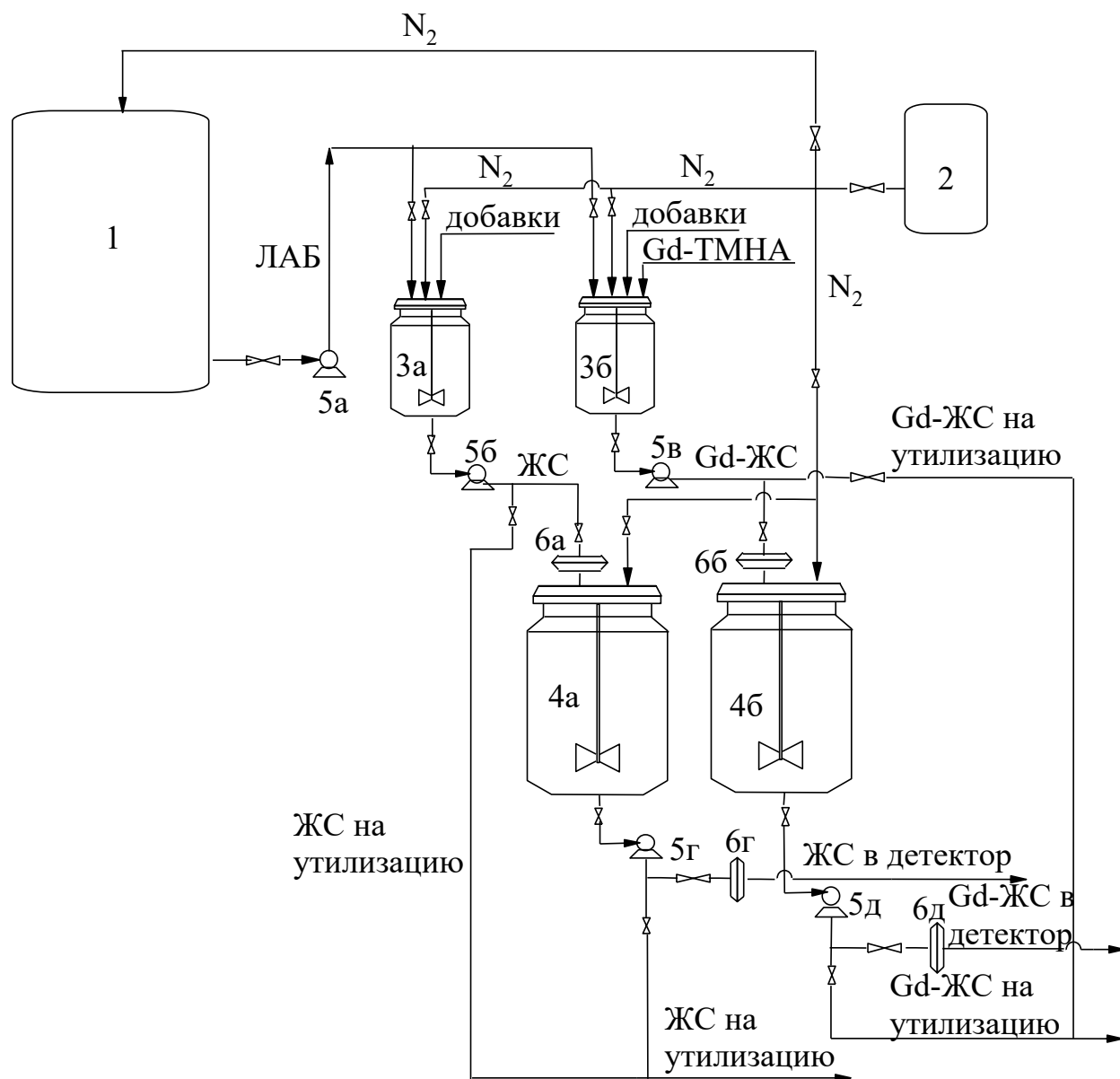


Рисунок 3 – Технологическая схема производства ЖС «стандартного состава» и Gd-ЖС проекта Daya Bay: 1 – емкость для хранения ЛАБ; 2 – азотная станция; 3а – аппарат для получения ЖС «стандартного состава»; 3б – аппарат для получения Gd-ЖС; 4а – емкость для хранения ЖС «стандартного состава»; 4б – емкость для хранения Gd-ЖС; 5а – 5д – насосы для перекачки жидкостей; 6а – 6д – фильтры

Нами также было измерено (Таблица 9) энергетическое разрешение (FWHM) ряда ЖС на основе ЛАБ. Измерения проводили в тefлоновой кювете диаметром 5 см по пику электронов с энергией 976 кэВ от ^{207}Bi . Высота слоя ЖС – 1,8 см.

Полученные результаты убедительно свидетельствуют о том, что особенности состава и технологии получения Gd-ЖС не приводят к ухудшению его спектрометрических свойств, по сравнению с ЖС «стандартного состава».

Таблица 9 – Энергетическое разрешение жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола

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

Нами были проведены измерения эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ жидкими сцинтилляторами. Для этого выбраны два образца: ЖС-2 и Gd-ЖС (Таблица 8, Таблица 9). Gd-ЖС исследовали при нескольких толщинах слоя (1 см, 2 см, 3,5 см, 4,5 см), а ЖС – при одной (4,5 см) (Таблица 10). Показано, что в случае Gd-ЖС полученные значения подчиняются линейному закону (Рисунок 4) и позволяют легко прогнозировать эффективность регистрации нейтронов для других толщин.

Таблица 10 – Эффективность регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ образцами жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола

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

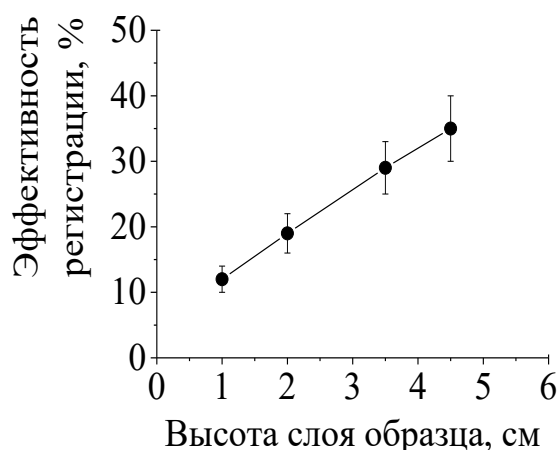


Рисунок 4 – Зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ от толщины слоя гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора

Совокупность характеристик ЖС «стандартного состава» и Gd-ЖС эксперимента Daya Bay полностью отвечают критериям, выработанным для крупномасштабных подземных детекторов. Предложенные нами варианты технологических схем производства элементосодержащей добавки, жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» и гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора послужили основой для производства 200 тонн и 185 тонн каждого из них, соответственно. Опыт разработки, изготовления и исследования этих материалов, накопленный нами совместно с коллегами по коллаборации Daya Bay, оказался ценным и для других групп исследователей: в эксперименте RENO также использовали Gd-ЖС на основе ЛАБ, содержащий Gd-ТМНА.

На протяжении 2000 – 2005 годов нами проведены предварительные исследования по получению и изучению свойств гадолинийсодержащих жидких сцинтилляторов, не связанные с каким-либо конкретным экспериментом.

Для получения Gd-ЖС с высокой температурой вспышки отобраны два растворителя: α -метилнафталин и фенилциклогексан. Этот выбор обусловлен следующим:

- оба растворителя относятся к соединениям ароматического ряда и давно и успешно применяются для получения жидких сцинтилляторов;
- оба растворителя достаточно безопасны в использовании, так как имеют высокие температуры кипения и вспышки [8].

Однако, растворимость металлосодержащих добавок в α -метилнафталине и фенилциклогексане очень низка. Поэтому для получения гадолинийсодержащих жидких сцинтилляторов использованы смеси этих веществ с другими органическими соединениями (трибутилфосфат и дифенилоксид), играющими роль вторичных растворителей и обеспечивающими достаточное содержание металла в сцинтиляторе. Трибутилфосфат имеет высокую температуру кипения (288,3 °С) и высокую температуру вспышки (193,3 °С) [8] и широко применяется в технологии получения редкоземельных элементов. Температура кипения дифенилоксида – 258,3 °С, температура вспышки – 99,3 °С [8].

На основе смесей этих соединений изучены две системы. Первая из них:

- α -метилнафталин : трибутилфосфат = 40 : 60 (по объему);
- элементосодержащая добавка – шестиводный нитрат гадолиния;
- сцинтилляционная добавка – ВРО.

Свойства полученных сцинтилляторов представлены в Таблице 11.

На основе смеси другой пары соединений, фенилциклогексана с дифенилоксидом, взятых в соотношении 70:30 (по объему) было получено семейство жидких сцинтилляторов, содержащих три комбинации сцинтилляционных добавок:

- РРО + РОРОР;
- п-терфенил (РРР) + РОРОР;
- ВРО.

Таблица 11 – Свойства гадолинийсодержащего жидкого сцинтиллятора на основе α -метилнафталина и трибутилфосфата

Показатели	Концентрация гадолиния, г/л				
	0	17,3	51,3	61,8	85,9
Число атомов Gd, см^{-3} , $\times 10^{20}$	0	0,66	1,96	2,36	3,28
λ_{max} люминесценции, нм	395	397	398	398	400
Пропускание* ($\lambda_{\text{max}}^{\text{lum}}$), %	47,5	54	54,5	53,6	55,8
Относительный световыход, %	100	67 ± 6	41 ± 4	37 ± 3	26 ± 2

*Кварцевая ячейка длиной 5 см, относительно воздуха.

В качестве элементосодержащей добавки во всех случаях использовано комплексное соединение гексаметилтриамида фосфорной кислоты с хлоридом гадолиния. Растворимость этого вещества в смешанном растворителе фенилциклогексан-дифенилоксид оказалась достаточной для того, чтобы получить гадолинийсодержащие жидкие сцинтилляторы с массовой долей металла 0,1%. Определены оптимальные концентрации сцинтилляционных добавок, включая ВРО (0,5%) и вторичной сцинтилляционной добавки (РОРОР) – 0,01%.

Самым прозрачным из Gd-ЖС этого ряда оказался образец, содержащий ВРО (Рисунок 5). Образец на основе РРР также несколько прозрачнее сцинтиллятора, содержащего РРО.

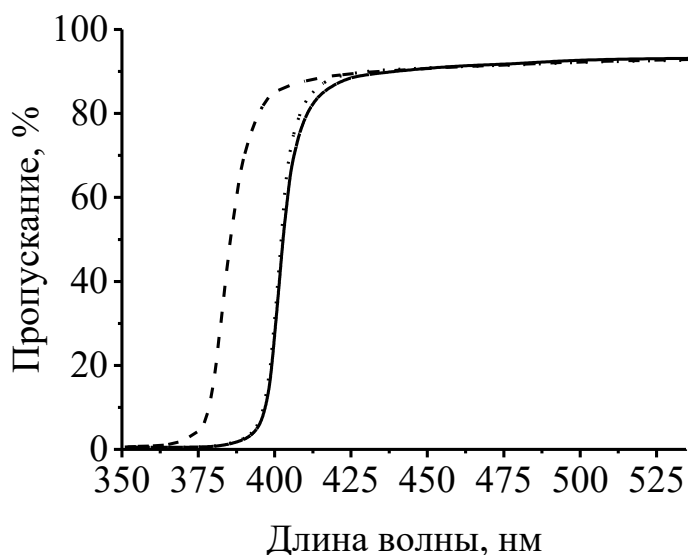


Рисунок 5 – Спектры пропускания гадолинийсодержащих жидких сцинтилляторов на основе смешанного растворителя фенилциклогексан-дифенилоксид (кварцевая кювета, 1 см относительно воздуха): сплошная линия – РРО + РОРОР; точки – РРР + РОРОР; тире – ВРО

Значения световыхода сцинтилляторов на этой основе представлены в Таблице 12.

Таблица 12 – Световыход ЖС на основе смеси фенилциклогексана с дифенилоксидом, измеренный относительно монокристалла антрацена

Сцинтилляционные добавки	Сцинтиллятор	
	«Стандартного состава»	Gd- ЖС (0,1% Gd)
PPP + PPOP	47,6% ± 4	34,0% ± 3
PPO + PPOP	42,3% ± 4	26,1% ± 2
BPO	38,1% ± 3	28,1% ± 2

В третьей главе описаны новые, разработанные нами, борсодержащие органические сцинтилляторы – материалы для регистрации тепловых нейтронов. Образующиеся при захвате ядром ^{10}B α -частица и ^7Li регистрируются локально, в пределах нескольких микрометров от точки взаимодействия, что, в отличие от использования гадолиния, дает координаты события.

При подборе борсодержащей добавки учтено, что она должна быть прозрачной в видимой области спектра и устойчивой к различным воздействиям. Такими свойствами обладает о-карборан – бесцветное соединение состава $\text{C}_2\text{H}_{12}\text{B}_{10}$ (Рисунок 6) с высоким содержанием бора, устойчивое к действию кислот, оснований, окислителей и выдерживающее нагрев до $450\text{ }^\circ\text{C}$.

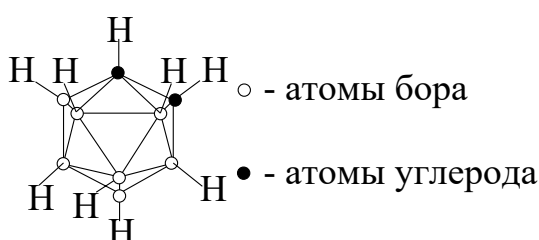


Рисунок 6 – Молекулярная структура о-карборана.

В качестве борсодержащей добавки о-карборан имеет ряд преимуществ по сравнению с изопрופןил-о-карбораном, ранее использованным для этих же целей [9]:

- массовая доля бора в о-карборане (75%) выше, по сравнению с изопрופןил-о-карбораном (60%), что позволило ожидать меньшего снижения световыхода борсодержащего сцинтиллятора по сравнению со сцинтиллятором «стандартного состава»;
- при получении ПС о-карборан в отличие от изопрופןил-о-карборана не способен образовывать ковалентные связи с исходным мономером в результате сополимеризации;
- о-карборан имеет более низкую стоимость.

Нами получены образцы борсодержащих пластмассовых сцинтилляторов (В-ПС) на основе полистирола с массовой долей бора 0,38%, 0,75%, 2,00% и 5,00%. В качестве сцинтилляционной добавки использован п-терфенил (массо-

вая доля – 1,5%), а в качестве сместителя спектра – РОРОР (массовая доля – 0,015%). Для исследования использованы диски диаметром 30 мм и высотой 9 мм.

Результаты измерений показали, что введение о-карборана практически не меняет прозрачность образцов вплоть до содержания бора 2%, незначительно снижая ее в дальнейшем, и не приводит к существенному уменьшению световыхода ПС. Так, световыход образца с массовой долей бора 0,75% составляет 88%, а световыход образца с 5% бора – 70% от световыхода сцинтиллятора «стандартного состава» (Рисунок 7). При этом энергетическое разрешение также значительно не ухудшается: 10% для образца, содержащего 5% бора, по сравнению с 8% для образца «стандартного состава» (для конверсионных электронов с энергией 976 кэВ).

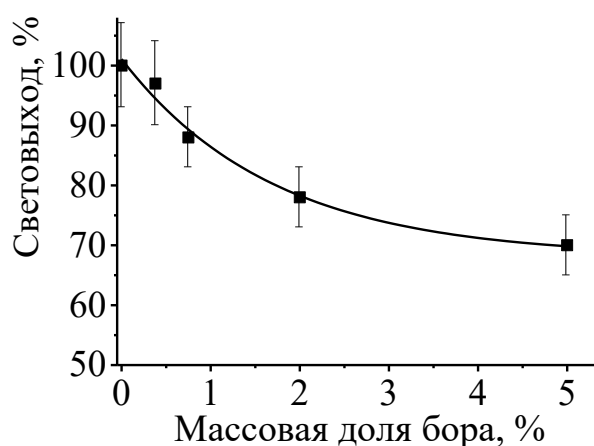


Рисунок 7 – Зависимость световыхода борсодержащих пластмассовых сцинтилляторов от концентрации бора

Для всех полученных В-ПС измерены значения эффективности регистрации нейтронов различных энергий (Таблица 13).

Таблица 13 – Эффективность регистрации нейтронов борсодержащими пластмассовыми сцинтилляторами

Массовая доля бора, %	Эффективность регистрации, %, нейтронов с энергией	
	0,3 эВ	0,4 эВ
0,38	2,7 ± 0,6	3 ± 0,5
0,75	6,0 ± 0,2	5 ± 1
2,00	16,0 ± 0,4	13 ± 3
5,00	26 ± 6	22 ± 5

Для оценки возможности использования новых В-ПС в реальных физических экспериментах изготовлен прототип детектора тепловых нейтронов – цилиндрический образец диаметром 70 мм и высотой 57 мм с массовой долей бора 5 %, для которого измерены световыход и энергетическое разрешение. Эти

измерения показали хорошие результаты: 12% для конверсионных электронов с энергией 976 кэВ по сравнению с 11% для ПС «стандартного состава». Введение о-карборана не приводит к возрастанию собственного радиоактивного фона такого детектора, по сравнению с образцом «стандартного состава». Для обоих образцов получены ограничения на содержание изотопов ^{232}Th , ^{238}U и ^{40}K на уровне $< 10^{-9}$ г/г, что говорит о возможности их применения в низкофоновых подземных экспериментах.

В развитие этих исследований нами изготовлены жидкие борсодержащие сцинтилляторы (В-ЖС) с массовой долей бора: 0,5%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5%, 5,5% и 6%. В качестве борсодержащей добавки также выбран о-карборан, в качестве растворителя – ЛАБ. Сцинтилляционные добавки – РРО и РОРОР. Для новых ЖС измерена эффективность регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ (Рисунок 8), которая существенно возрастает при увеличении концентрации бора. Образец с массовой долей бора 6% в пять раз лучше в этом отношении образца «стандартного состава». К такому же эффекту приводит и увеличение толщины слоя сцинтиллятора (Таблица 14). Для ЖС с массовой долей бора 6% увеличение толщины слоя с 10 мм до 40 мм приводит к полуторакратному росту эффективности регистрации нейтронов.

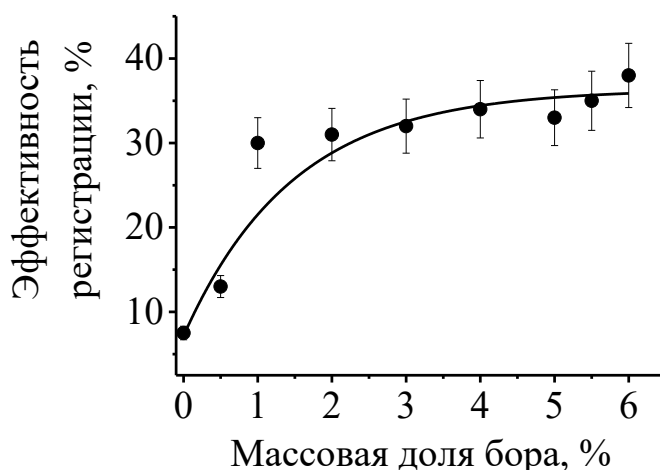


Рисунок 8 – Зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ В-ЖС от концентрации бора (высота слоя образца – 20 мм)

Таблица 14. Эффективность регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ в зависимости от высоты слоя образца борсодержащими жидким сцинтиллятором с массовой долей бора 6%

Толщина слоя образца, мм	Эффективность регистрации, %
10	30±3
20	38±4
30	40±4
40	45±5

Световыход, в противоположность эффективности регистрации, претерпевает плавное и закономерное снижение с увеличением концентрации бора (Рисунок 9). Такой ход зависимости, очевидно, связан с двумя факторами:

- разбавлением основного вещества сцинтиллятора неактивным в сцинтилляционном отношении о-карбораном;
- снижением прозрачности ЖС с увеличением концентрации о-карборана (Рисунок 10).

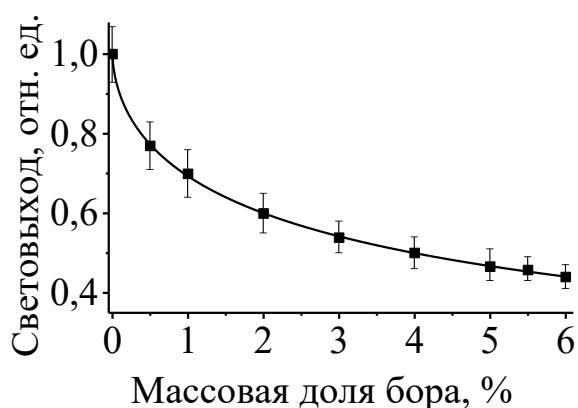


Рисунок 9 – Зависимость световыхода В-ЖС от концентрации бора

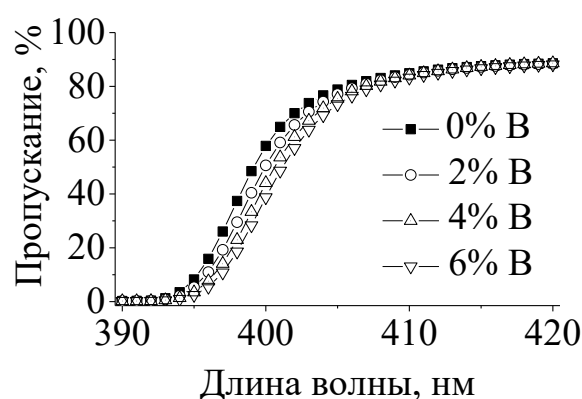


Рисунок 10 – Спектры пропускания некоторых образцов В-ЖС

Состав и свойства новых борсодержащих жидких сцинтилляторов позволяют рекомендовать их широкое использование, в том числе, и в крупномасштабных физических экспериментах.

Четвертая глава посвящена разработке и исследованию новых ОС, содержащих гадолиний и неодим:

- пластмассовых гадолиний- (Gd-ПС) и неодимсодержащих (Nd-ПС);
- жидких неодимсодержащих (Nd-ЖС).

Интерес к этим сцинтилляторам связан с экспериментами по измерению параметров нейтринных осцилляций, регистрации солнечных нейтрино и исследованию двойного β -распада [10 – 14]. Основная проблема их получения заключается в выборе подходящих элементосодержащих добавок. Ни неорганические соли этих элементов, ни их карбоксилаты не растворяются в полимерах, применяемых для получения ПС. В связи с этим наше внимание привлекли комплексные соединения нитратов и хлоридов редкоземельных элементов с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты (НМРА) [15, 16].

Для их получения нами разработана оригинальная методика. Установлен состав этих комплексов – $[Ln(НМРА)_3]X_3$, где Ln = Gd или Nd, а X – ион нитрата или хлорида и то, что они хорошо растворимы как в стироле, так и в метилметакрилате. Однако, эти соединения оказались недостаточно устойчивыми и разлагались в условиях полимеризации стирола. Их растворимость в полистироле оказалась также крайне низкой. Даже в условиях низкотемпературной полимеризации (комнатная температура) не удалось получить прозрачных образ-

цов. Поэтому все дальнейшие усилия были нацелены на получение пластмассовых сцинтилляторов на основе полиметилметакрилата (ПММА).

Gd-ПС и Nd-ПС получены полимеризацией растворов элементосодержащих, сцинтилляционных добавок (РРО – 1,5%, РОРОР – 0,08%) и нафталина (15%) в метилметакрилате. Для исследования их свойств использованы образцы диаметром 30 мм и высотой 10 мм.

Вначале охарактеризуем сцинтилляторы, содержащие комплексы НМРА с нитратами гадолиния и неодима. Увеличение массовой доли металла в образцах приводит к закономерному ухудшению световыхода. Например, световыход сцинтиллятора с массовой долей гадолиния 3% составляет 51% от световыхода ПС «стандартного состава». Серия неодимсодержащих ПС характеризуется еще более резким снижением световыхода из-за заметного поглощения света элементосодержащей добавкой в видимой области спектра (Рисунки 11 и 12).

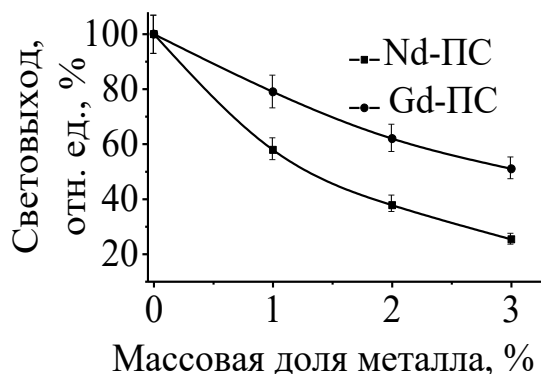


Рисунок 11 – Зависимость световыхода образцов Gd-ПС и Nd-ПС от концентрации металла

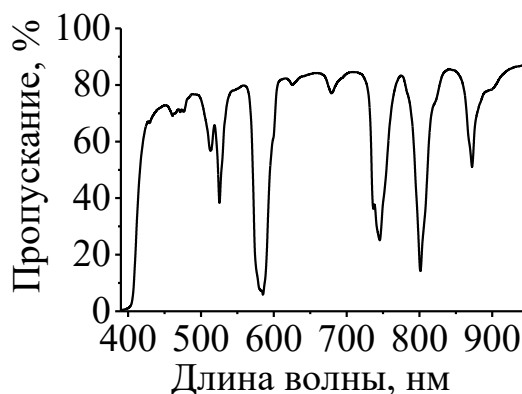


Рисунок 12 – Спектр пропускания образца Nd-ПС, содержащего 1% неодима, относительно воздуха

Эффективность регистрации нейтронов ($E < 0,4$ эВ) гадолинийсодержащими ПС закономерно возрастает с увеличением массовой доли металла и достигает 12,5% для 3% Gd. Однако ее абсолютные значения ниже, чем для борсодержащих ПС. Для исследованных образцов малого размера это согласуется с низкой эффективностью регистрации вторичного излучения в случае Gd-ПС (γ -кванты; n, γ -реакция) по сравнению с В-ПС (α -частицы; n, α -реакция).

Особенно интересные результаты получены при использовании в качестве элементосодержащих добавок комплексов НМРА с хлоридами гадолиния и неодима. Во-первых, для Gd-ПС достигнут новый рекорд концентрации металла – 4%. Во-вторых, использование новых добавок позволило уменьшить крутизну снижения световыхода при увеличении массовой доли металла (Рисунки 13 и 14).

Для обоих типов Gd-ПС эффективность регистрации нейтронов образцами с одинаковой концентрацией гадолиния практически одинакова и отличается только в пределах погрешности измерений (Рисунок 15).

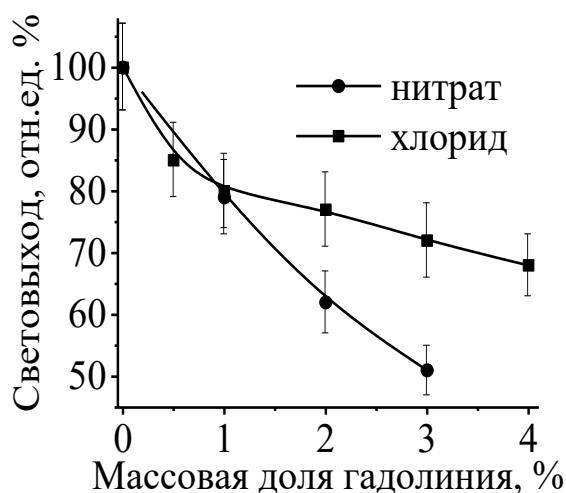


Рисунок 13 – Зависимость световыхода гадолинийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов, содержащих комплексы хлорида или нитрата гадолиния с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты, от массовой доли металла

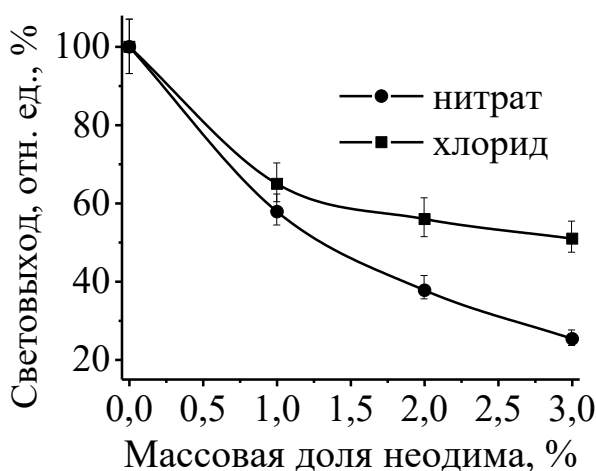


Рисунок 14 – Зависимость световыхода неодимсодержащих пластмассовых сцинтилляторов, содержащих комплексы хлорида или нитрата неодима с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты, от массовой доли металла

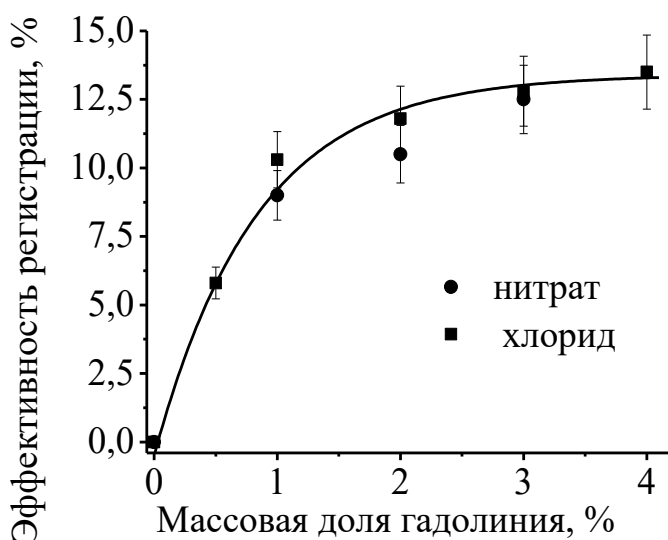


Рисунок 15 – Зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ гадолинийсодержащими пластмассовыми сцинтилляторами, содержащими комплексы хлорида и нитрата гадолиния с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты, от массовой доли металла

Разработанная нами методика получения ПС на основе полиметилметакрилата позволила получить гадолинийсодержащие ПС с рекордной концентрацией металла, составляющей 4%, и впервые в мире получить неодимсодержащие пластмассовые сцинтилляторы.

Опыт, накопленный при работе с Gd-ЖС, оказался полезным при разработке новых Nd-содержащих жидких сцинтилляторов (Nd-ЖС). В качестве растворителя использован линейный алкилбензол, в качестве металлосодержащих добавок – три карбоксилата неодима: 4-метилоктаноат (Nd-МО), 2-этилгексаноат (Nd-ЕН) и 3,5,5-триметилгексаноат (Nd-ТМНА). Были исследованы две технологические возможности получения растворов карбоксилатов неодима в ЛАБ:

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

В результате получены следующие растворы неодима в ЛАБ:

- раствор с массовой долей неодима 0,32% (Nd-МО, экстракция);
- раствор с массовой долей неодима 0,30% (Nd-ЕН, экстракция);
- раствор с массовой долей неодима 0,70% (Nd-ТМНА, экстракция);
- серия растворов с массовой долей неодима 0,63%, 1,26% и 2,52% (Nd-ТМНА, растворение).

На основе этих растворов приготовлены 10 неодимсодержащих ЖС, отличающихся составом сцинтилляционных добавок (Таблица 15):

- с классической комбинацией РРО и РОРОР (0,5% и 0,0025%, соответственно);
- с 2-(4-бифенилил)-5-фенилоксазолом (ВРО) (0,5%).

Для каждого из них измерены спектры пропускания, примеры которых приведены на Рисунке 16.

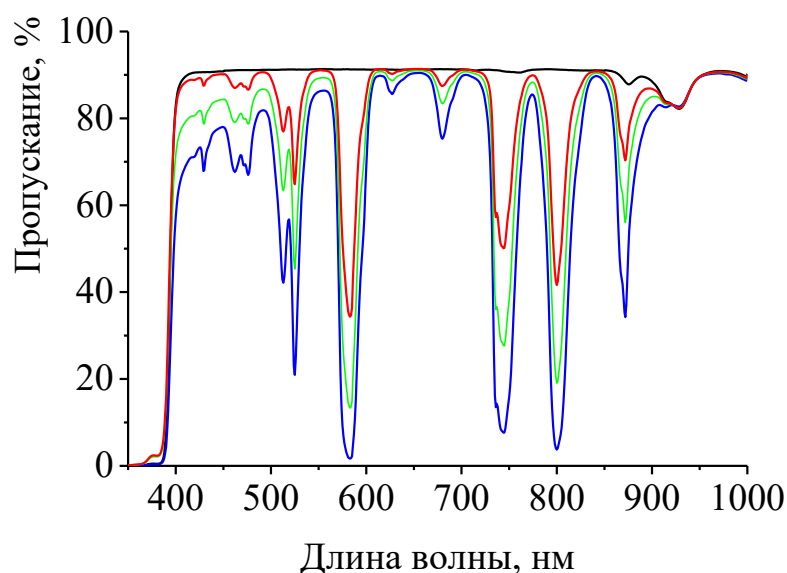


Рисунок 16 – Спектры пропускания Nd-ЖС на основе ЛАБ, содержащие Nd-ТМНА (растворение), измеренные в 1 см кварцевой кювете относительно воздуха: черный – 0% Nd, красный – 0,63% Nd, зеленый – 1,26% Nd, синий – 2,52% Nd. Сцинтилляционные добавки – РРО и РОРОР

Таблица 15 – Состав неодимсодержащих жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола

Элементосодержащая добавка	Сцинтилляционные добавки	
	0,5% PPO + 0,025% РОРОР	0,5% ВРО
Nd-МО, экстракция	0,32%	0,32%
Nd-ЕН, экстракция	0,30%	–
Nd-ТМНА, экстракция	0,70%	–
Nd-ТМНА, растворение	0,63%; 1,26%; 2,52%	0,63%; 1,26%; 2,52%

Исследование световыхода новых сцинтилляторов показало, что использование PPO и РОРОР в качестве сцинтилляционных добавок является практически равноценным использованию ВРО (Таблица 16).

Таблица 16 – Световыход неодимсодержащих жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола

Элементосодержащая добавка/концентрация неодима	Сцинтилляционные добавки	
	PPO + РОРОР	ВРО
Nd-МО, экстракция/0,32%	63% ± 5	64% ± 5
Nd-ЕН, экстракция/0,30%	50% ± 4	–
Nd-ТМНА, экстракция/0,70%	49% ± 4	–
Nd-ТМНА, растворение/0,63%	60% ± 5	44% ± 4
Nd-ТМНА, растворение/1,26%	22% ± 2	27% ± 2
Nd-ТМНА, растворение/2,52%	14% ± 1	10% ± 1

Что касается зависимости световыхода новых сцинтилляторов от концентрации неодима (Рисунок 17), то следует отметить ее более выраженный характер, по сравнению с другими материалами, описанными выше.

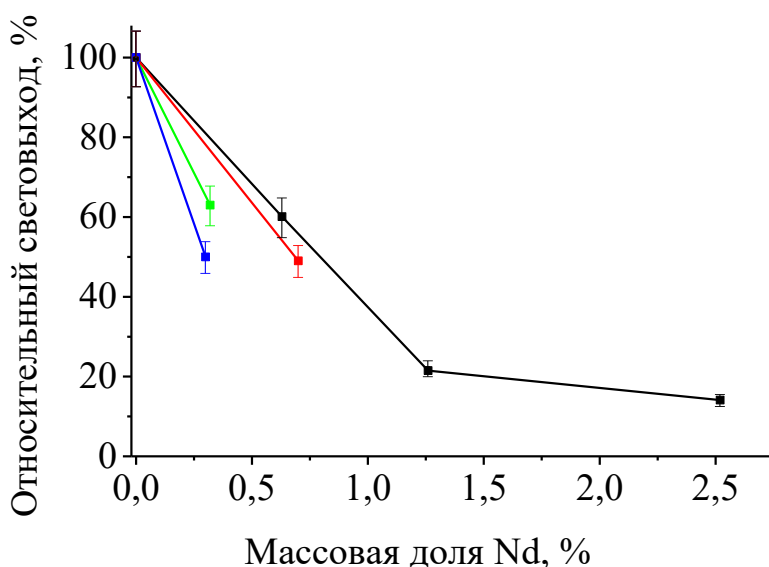


Рисунок 17 – Зависимость световыхода Nd-ЖС, содержащих PPO и РОРОР от концентрации неодима: черный – Nd-ТМНА, растворение; красный – Nd-ТМНА, экстракция; зеленый – Nd-МО, экстракция; синий – Nd-ЕН, экстракция

Этот эффект был ожидаем из-за интенсивных полос поглощения Nd в видимой области спектра (Рисунок 16). В наибольшей степени снижение световых выходов с увеличением концентрации металла проявилось для образцов, полученных методом жидкостной экстракции. Возможно, что условия их получения способствуют загрязнению сцинтиллятора примесями, снижающими световых выходов.

Разработанный метод позволил впервые получить неодимсодержащие жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола с рекордным содержанием металла, составляющим 2,52%, в полной мере отвечающие требованиям крупномасштабных экспериментов.

В **пятой главе** описаны исследования по разработке кадмийсодержащих органических сцинтилляторов (Cd-OC), являющихся альтернативой Gd-содержащим детекторам. Естественная смесь изотопов кадмия содержит 12% ^{113}Cd , ядро которого имеет высокое сечение захвата тепловых нейтронов ($2,0 \cdot 10^4$ барн) и в (n, γ)-реакции с тепловым нейтроном образует каскад γ -квантов с суммарной энергией до 9 МэВ [3]. Кроме этого, кадмийсодержащие органические сцинтилляторы интересны еще по одной причине: изотоп ^{116}Cd перспективен с точки зрения исследования двойного β -распада.

Отдельные попытки получения Cd-содержащих ЖС были предприняты еще в 1950-х–1960-х гг. Рейнес (Reines) и Коуэн (Cowan) разработали состав на основе смеси толуола с метанолом и пропионата кадмия [17]. Описанные ими Cd-ЖС содержали до 3,12% кадмия, но обладали двумя существенными недостатками: низкая температура вспышки и низкая прозрачность. Бёрд (Beard) и Келли (Kelly) также предприняли попытку получения Cd-ЖС [18]. Однако в их работе отсутствуют какие-либо сведения о составе сцинтиллятора за исключением массовой доли металла (0,98%). Введение этого количества кадмия привело к резкому ухудшению сцинтилляционных характеристик. Что касается Cd-ПС, то они в литературе не описаны вовсе.

Для получения кадмийсодержащих ПС мы воспользовались опытом, накопленным при работе с Gd- и Nd-содержащими сцинтилляторами. Однако точно воспроизвести эту методику оказалось невозможно из-за особенностей химии кадмия [19]. Выяснилось, что полученная нами элементосодержащая добавка, комплексное соединение хлорида кадмия с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты, изначально растворимое в полиметилметакрилате, теряет растворимость через несколько дней после синтеза и очистки. Как оказалось, некоторые комплексные соединения кадмия могут отщеплять несколько молекул лиганда, переходя в более устойчивую форму. И, действительно, нам удалось подтвердить это предположение. Результаты элементного анализа хорошо согласуются не с ожидаемым составом $[\text{Cd}(\text{НМРА})_4]\text{Cl}_2$, а с формой, содержащей на две молекулы НМРА меньше, $[\text{Cd}(\text{НМРА})_2]\text{Cl}_2$.

Такая особенность свойств комплексного соединения хлорида кадмия с НМРА привела к отказу от предварительного получения металлсодержащей добавки. Новая схема предполагает непосредственное растворение хлорида

кадмия в метилметакрилате в присутствии избытка гексаметилтриамида фосфорной кислоты.

Наряду с хлоридом кадмия и НМРА Cd-ПС содержат:

- вторичный растворитель – нафталин (15%);
- сцинтилляционная добавка – PPO (1,5%);
- вторичная сцинтилляционная добавка – POPOP (0,08%).

Полимеризацией в стеклянных ампулах нами были впервые получены Cd-ПС. Концентрация металла достигает 2%. Для исследования изготовлены цилиндрические образцы диаметром 30 мм и высотой 10 мм.

Увеличение концентрации металла приводит к закономерному ухудшению световыходов Cd-ПС (Рисунок 18). Световыход сцинтиллятора с максимальной концентрацией кадмия составляет 67% от ПС «стандартного состава».

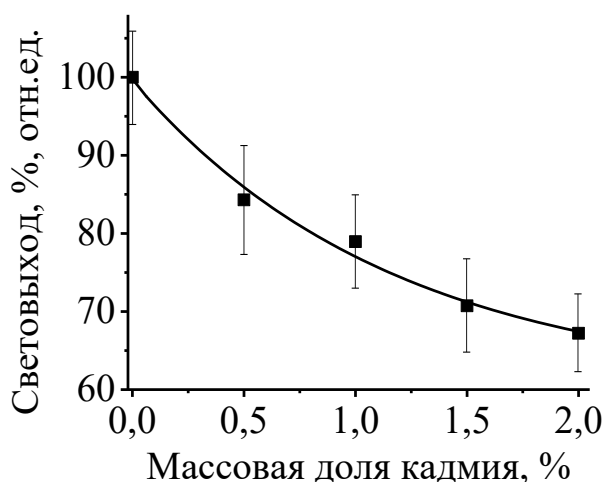


Рисунок 18 – Зависимость световыхода кадмийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов от массовой доли кадмия

Этот эффект, очевидно, связан как с тушением люминесценции, вызванным присутствием кадмия, так и с систематическим уменьшением прозрачности образцов (Рисунок 19).

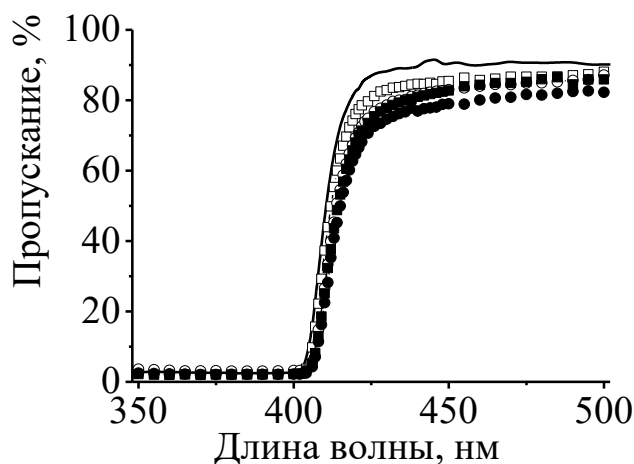


Рисунок 19 – Спектры пропускания образцов кадмийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов: сплошная линия – 0% Cd, белые квадраты – 0,5% Cd, белые кружки – 1% Cd, черные квадраты – 1,5% Cd, черные кружки – 2% Cd

Результаты исследования эффективности регистрации нейтронов новыми сцинтилляторами (Рисунок 20) показывают, что увеличение массовой доли кадмия до 2% приводит к увеличению этого параметра более чем в два раза.

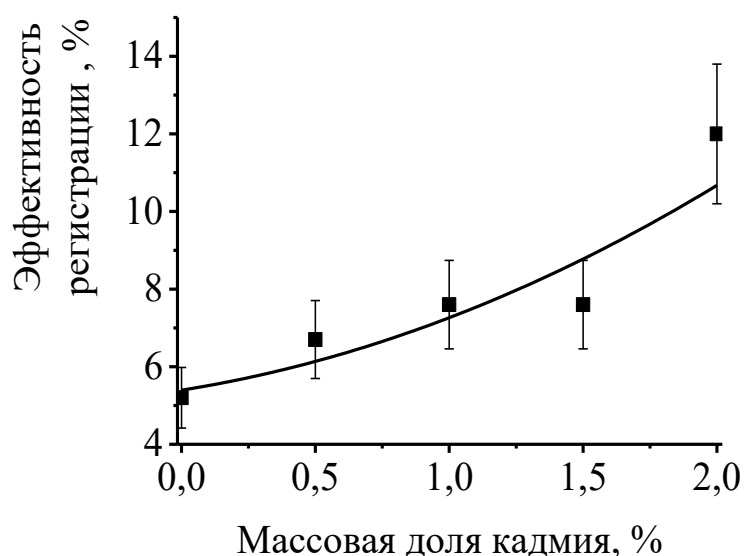


Рисунок 20 – Зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ образцами кадмийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов от массовой доли кадмия

Для получения кадмийсодержащих жидких сцинтилляторов (Cd-ЖС) в качестве сцинтилляционной основы использованы двухкомпонентные системы: линейный алкилбензол-трибутилфосфат. Первое соединение обеспечивает высокую конверсионную эффективность, а второе, обладающее хорошей координирующей способностью в отношении катионов металлов, – растворимость хлорида кадмия, выбранного в качестве металлосодержащей добавки.

Нами получены и исследованы две серии Cd-ЖС:

- на основе смеси ЛАБ и ТБФ, взятых в объемном соотношении 70:30 с массовой долей кадмия 0,1%, 0,3%, 0,5%, 0,6% и 0,8%;
- на основе смеси ЛАБ и ТБФ, взятых в объемном соотношении 60:40 с массовой долей кадмия 0%, 0,1%, 0,3%, 0,5%, 0,6%, 0,8%, 1,0%, 1,25% и 1,5%.

В качестве сцинтилляционных добавок использованы РРО и РОРОР с массовой долей 0,5% и 0,0025%, соответственно.

Увеличение содержания ТБФ в сцинтилляционной основе практически не влияет на спектр ее поглощения (Рисунок 21), но существенно снижает световыход сцинтилляторов (Рисунок 22). Этот эффект вполне естественно объясним разбавлением активного в сцинтилляционном отношении линейного алкилбензола трибутилфосфатом. Как и в случае с пластмассовыми сцинтилляторами, увеличение концентрации металла в образцах приводит к закономерному ухудшению световыхода.

На Рисунке 23 приведена концентрационная зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ новыми сцинтилляторами. Для обеих серий Cd-ЖС эффективность регистрации нейтронов образцами с одинаковой концентрацией кадмия практически одинакова и отличается только в пределах погрешности измерений.

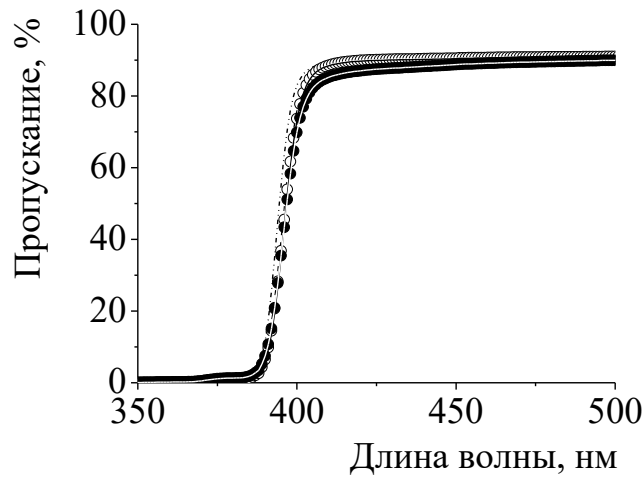


Рисунок 21 – Спектры пропускания образцов ЖС с толщиной поглощающего слоя 1 см: точка-тире – «стандартного состава» на основе ЛАБ; пунктирная линия – «стандартного состава» на основе 70% ЛАБ и 30% ТБФ; белые кружки – на основе 70% ЛАБ и 30% ТБФ с массовой долей металла 0,8%; черная линия – «стандартного состава» на основе 60% ЛАБ и 40% ТБФ; черные кружки – на основе 60% ЛАБ и 40% ТБФ с массовой долей металла 1,5%

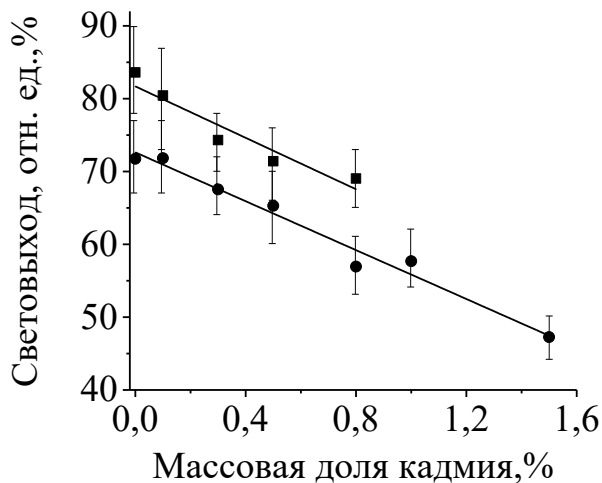


Рисунок 22 – Зависимость световыхода кадмийсодержащих жидких сцинтилляторов от массовой доли кадмия: верхняя линия – на основе 70% ЛАБ и 30% ТБФ, нижняя линия – на основе 60% ЛАБ и 40% ТБФ (за 100% принят световыход жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» на основе ЛАБ)

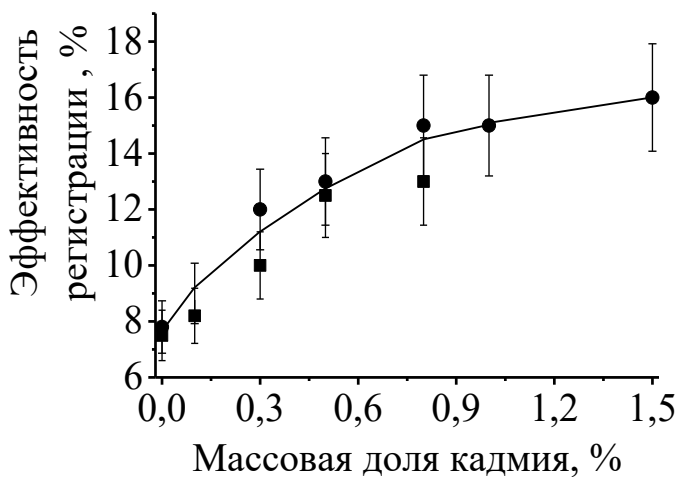


Рисунок 23 – Зависимость эффективности регистрации нейтронов с энергией ниже 0,4 эВ кадмийсодержащими жидкими сцинтилляторами от массовой доли кадмия: кружки – на основе 60% ЛАБ и 40% ТБФ, квадраты – на основе 70% ЛАБ и 30% ТБФ

В результате проделанной работы впервые в мире получены кадмийсодержащие пластмассовые сцинтилляторы и кадмийсодержащие жидкие сцинтилляторы с высокой температурой вспышки. Исследованы их спектральные и сцинтилляционные свойства.

В **шестой главе** описаны исследования по усовершенствованию технологии получения пластмассовых сцинтилляторов «стандартного состава» и их использование для международного эксперимента NEMO-3 по изучению двойного безнейтринного β -распада.

Изготовление пластмассовых сцинтилляторов основано на известных методах получения высокомолекулярных соединений и изделий из них:

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

Выбор метода получения ПС определяется областью их применения, размерами и конфигурацией изделия.

Наиболее распространенным способом получения ПС на основе полистирола является радикальная полимеризация в массе. Она обеспечивает наилучшие счетные и спектрометрические характеристики детектора, высокую прозрачность, возможность изготовления сцинтилляторов больших размеров и различной конфигурации.

Для изготовления пластмассовых сцинтилляторов высокого качества и с хорошей производительностью в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ создан экспериментальный участок, оборудование которого позволяет получать до 800 кг заготовок ПС в месяц. Одним из его основных компонентов является разработанная нами установка для вакуумной ректификации стирола (Рисунок 24).

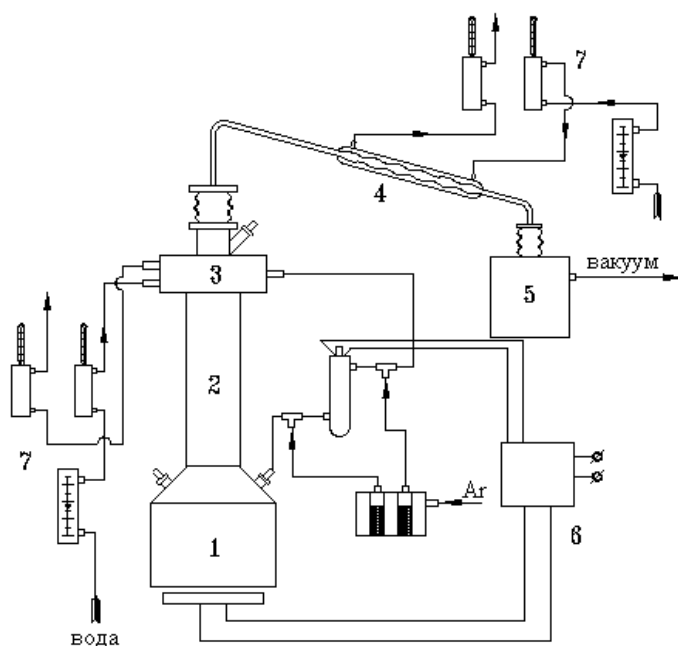


Рисунок 24 – Схема установки для вакуумной ректификации стирола: 1 – куб; 2 – колонна с внутренней насадкой; 3 – дефлегматор; 4 – стеклянный конденсатор; 5 – вакуумный шкаф со стеклянными приемниками; 6 – система регулирования подачи тепла; 7 – система регулирования подачи воды

Основные достоинства установки для вакуумной ректификации стирола – высокая производительность и хорошее качество очищенного мономера (Рисунок 25).

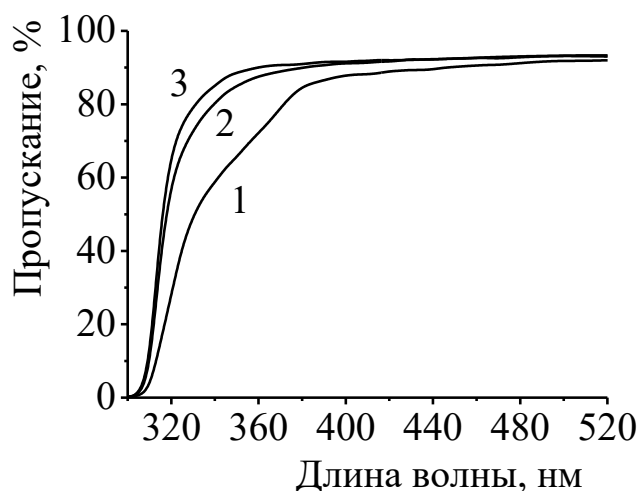


Рисунок 25 – Спектры пропускания стирола, измеренные в кварцевой кювете (5 см) относительно воздуха: 1 – технический стирол; 2 – стирол после вакуумной перегонки на лабораторной установке; 3 – стирол после вакуумной ректификации

Другими ключевыми компонентами технологического оборудования экспериментального участка по производству пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола являются:

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

Свойства ПС, полученных на этом оборудовании, содержащих в качестве сцинтилляционных добавок *p*-терфенил и РОРОР, представлены в Таблице 17.

В 1994 – 1999 годах группа ЛЯП ОИЯИ принимала участие в создании калориметра эксперимента NEMO-3, основной целью которого был поиск двойного безнейтринного β -распада для 7 изотопов: ^{48}Ca , ^{82}Se , ^{100}Mo , ^{150}Nd , ^{130}Te , ^{116}Cd и ^{96}Zr . Его существование – один из актуальных вопросов нейтринной физики. Обнаружение этой моды двойного бета-распада будет означать, что нейтрино является массивной майорановской частицей, идентичной своей античастице.

ПС, изготовленные в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ, стали основой калориметрической части установки NEMO-3.

Таблица 17 – Свойства ПС «стандартного состава» на основе полистирола

Плотность, г/см ³	1,050
Число атомов Н в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	4,847
Число атомов С в 1 см ³ , $\times 10^{22}$	4,863
λ_{max} люминесценции, нм	421
Световыход, % отн. антрацена	52 \pm 4

Детектор NEMO-3 был установлен в подземной лаборатории LSM (Laboratoire Souterrain de Modane) во Франции. Основная концепция, заложенная в его конструкцию – создание возможности для прямого наблюдения двух электронов от двойного бета-распада в трековой и калориметрической частях установки. В общих чертах NEMO-3 подобен своему прототипу NEMO-2, но имел более низкий уровень радиоактивной загрязненности конструкционных материалов и фольг-источников и вмещал порядка 10 кг изотопов-источников для двойного бета-распада. Это установка цилиндрического дизайна (Рисунок 26), разделенная на 20 одинаковых секторов. Фольги-источники двойного бета-распада были закреплены в вертикальном положении и располагались между двумя концентрическими трековыми объемами, состоявшими из 6180 дрейфовых камер, работавших в режиме счетчиков Гейгера и заполненных смесью гелия с парами этилового спирта.

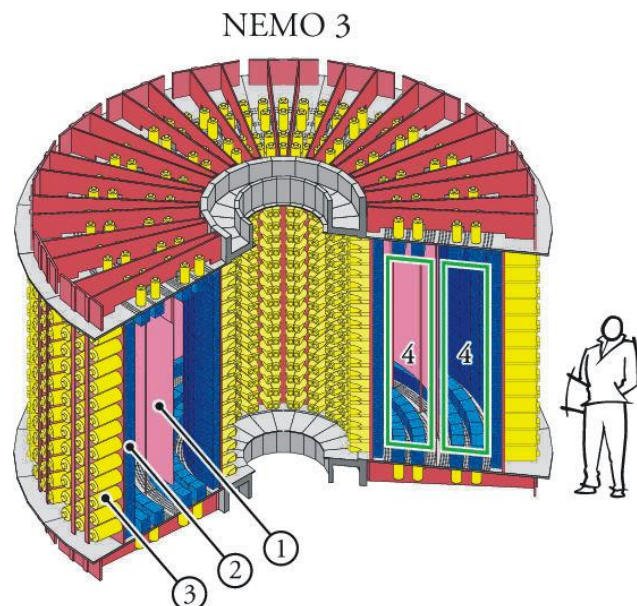


Рисунок 26 – Общая схема детектора NEMO-3: 1 – радиоактивные источники; 2 – пластмассовые сцинтилляторы (калориметр); 3 – фотоэлектронные умножители, 4 – трековый объем

Калориметрическая часть детектора сформирована пластмассовыми сцинтилляторами в сочетании с низкофоновыми ФЭУ, образующими две концентри-

ческие цилиндрические стенки, определяющими внутреннюю и внешнюю поверхность детектора. Для обеспечения $\sim 4\pi$ геометрии измерений верхняя и нижняя плоскости установки имели дополнительные ряды сцинтилляционных блоков, заполняющих свободное пространство между рядами ячеек гейгеровских счетчиков. Полная масса сцинтилляторов боковых стен – 5600 кг, верхней и нижней частей – 1600 кг. Площадь поверхности всех сцинтилляторов приблизительно равна 50 м². Калориметрическая часть установки состояла из 1940 оптических модулей (ПС + низкофоновые ФЭУ).

Для сборки цилиндрических стен установки использовали сцинтилляционные блоки трех типов: для внешней стены – ЕЕ и ЕС, для внутренней – IN (Рисунок 27). Всего было изготовлено 2515 сцинтилляторов ЕЕ, ЕС и IN типов для чего переработано свыше 23000 кг исходных материалов.

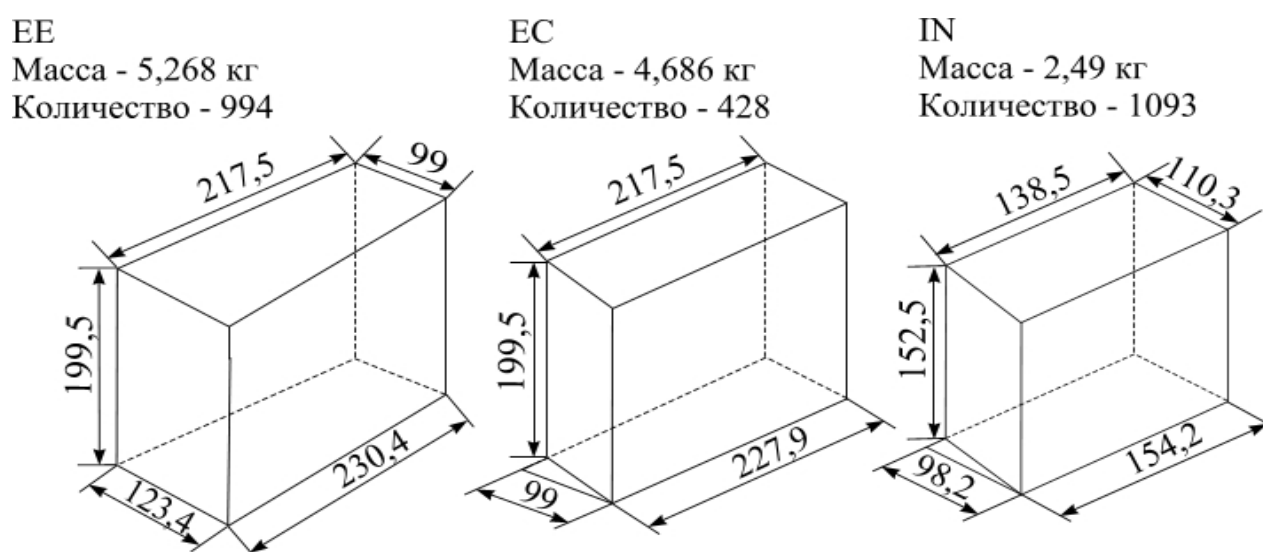


Рисунок 27 – Сцинтилляционные блоки, использованные для сборки цилиндрических стен установки NEMO-3

Важным требованием эксперимента было качество сцинтилляторов, характеризуемое энергетическим разрешением, определяемым как $FWHM \Delta(E)/E$. Разрешение контролировалось с помощью стенда с использованием конверсионных электронов с энергией 482 и 979 кэВ радиоактивного источника ²⁰⁷Bi. Было установлено, что диффузное отражение улучшает светосбор и энергетическое разрешение сцинтилляторов нужной для NEMO-3 геометрии. Такой характер отражения достигался шлифовкой поверхности ПС и последующим обертыванием тефлоновой лентой, что, в итоге, приводило к улучшению разрешения.

В качестве сцинтилляционных добавок выбрана классическая комбинация для пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола: п-терфенил (PPP) и 1,4-ди-(5-фенил-2-оксазолил)бензол (POPOP). Исследования по оптимизации состава ПС показали, что наилучшее энергетическое разрешение достигается при следующих концентрация сцинтилляционных добавок: PPP – 1,5%; POPOP – 0,01%. На Рисунках 28 и 29 представлены зависимости энергетического раз-

решения (электроны, $E = 976$ кэВ) образцов ПС диаметром 3 см и толщиной 1 см от концентрации этих веществ.

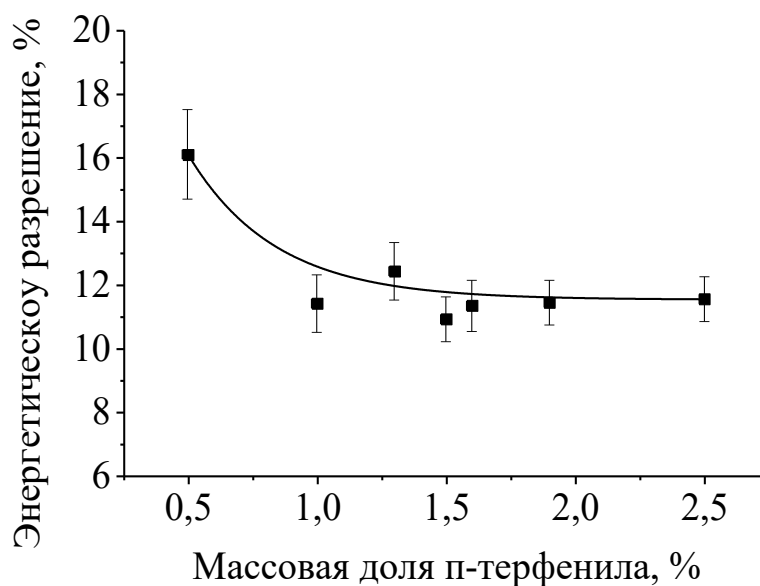


Рисунок 28 – Зависимость энергетического разрешения (электроны, $E = 976$ кэВ, ^{207}Bi) образцов (диаметр – 3 см, толщина – 1 см) ПС на основе полистирола от концентрации п-терфенила

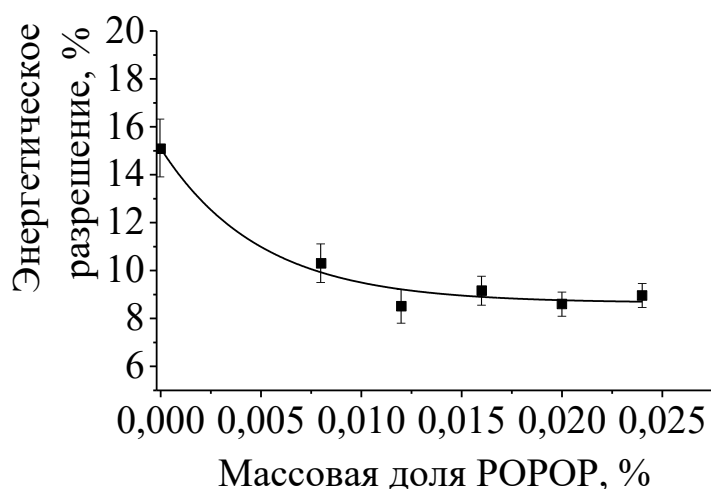


Рисунок 29 – Зависимость энергетического разрешения (электроны, $E = 976$ кэВ, ^{207}Bi) образцов (диаметр – 3 см, толщина – 1 см) ПС на основе полистирола, содержащих 1,5% п-терфенила, от концентрации РОРОР

Для возможности отбора сцинтилляторов наилучшего качества было изготовлено 1093 блока IN типа, из которых использовано 680 (62%), 994 блока EE типа (использовано 520 или 51%) и 428 блоков EC типа (использовано 260 или 61%). На Рисунке 30 представлены распределения изготовленных ПС по их энергетическому разрешению (электроны, $E = 976$ кэВ, ^{207}Bi).

Для отбора сцинтилляторов использованы следующие критерии:

- FWHM для блоков ЕЕ-типа должно быть не хуже 14,6%;
- FWHM для блоков ЕС-типа должно быть не хуже 14,6%;
- FWHM для блоков IN-типа должно быть не хуже 12,8%.

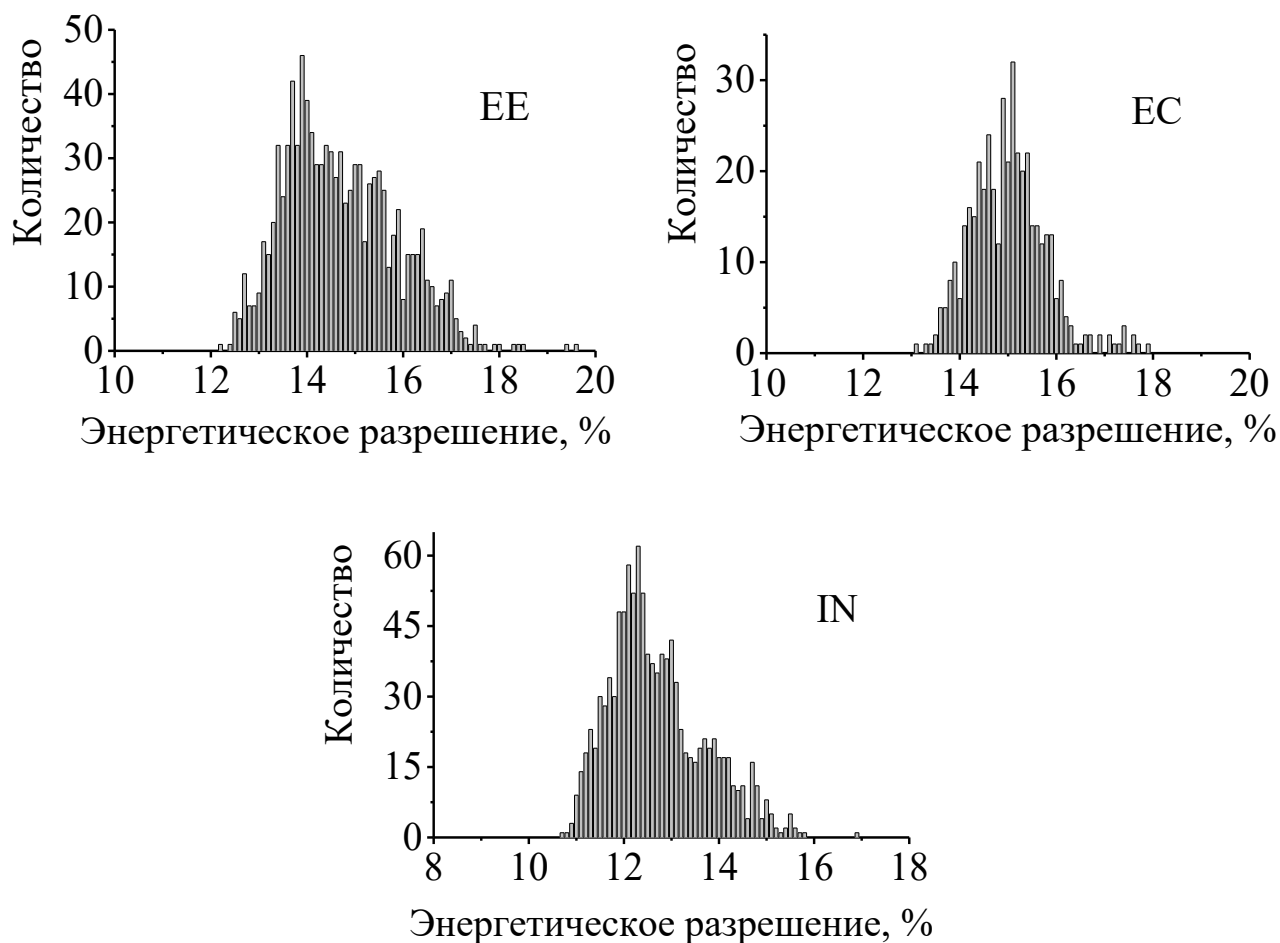


Рисунок 30 – Распределение изготовленных для эксперимента NEMO-3 сцинтилляторов различных типов (ЕЕ, ЕС и IN) по энергетическому разрешению (электроны, $E = 976$ кэВ, ^{207}Bi)

Для сравнения качества блоков различных типов проводились измерения прозрачности относительно воздуха цилиндрических образцов длиной 10 см и диаметром 3 см с полированными основаниями и шлифованной образующей цилиндра. Среднее значение пропускания составило 75% (относительно воздуха) для длины волны 420 нм. На Рисунке 31 представлена типичная кривая пропускания.

Радиационная чистота ПС, изготовленных по описанной выше технологии, проверялась с помощью низкофоновых HPGe-детекторов и в полной степени соответствовала требованиям эксперимента NEMO-3: содержание ^{214}Bi и ^{208}Tl , основных источников фона, было в 430 и 60 раз, соответственно, ниже, чем в используемых низкофоновых фотоэлектронных умножителях.

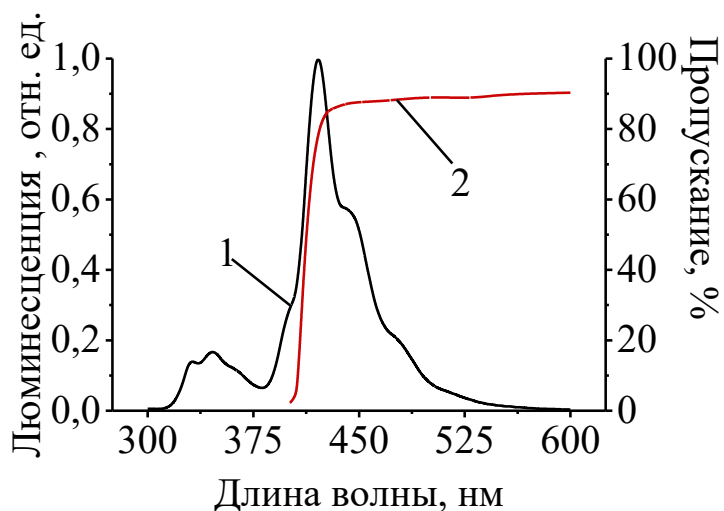


Рисунок 31 – Спектры люминесценции (1) и пропускания (2) цилиндрического образца ПС «стандартного состава» на основе полистирола (относительно воздуха). Массовая доля п-терфенила – 1,5%, РОРОР – 0,01%. Длина образца – 10 см, диаметр – 3 см

Разработка проекта и введение в эксплуатацию участка по производству пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола позволили кроме обеспечения эксперимента NEMO-3:

- улучшить условия труда персонала;
- увеличить производительность труда;
- обеспечить стабильный уровень качества сцинтилляторов;
- обеспечить высококачественными пластмассовыми сцинтилляторами:
 - создание нескольких модификаций низкофонового детектора BiPO_4 , предназначенного для измерения сверхнизких уровней естественной радиоактивности пленочных материалов (LSM, г. Модан, Франция; Sanfranc, Испания);
 - создание вето-системы Демонстратора SuperNEMO для поиска безнейтринного двойного β -распада ^{82}Se (LSM, г. Модан, Франция);
 - эксперименты по исследованию широких атмосферных ливней: НЕВОД-ШАЛ (НИУ «МИФИ»), в Чешском Техническом университете в Праге.

В **седьмой главе** описаны экспериментальные методики, использованные при выполнении настоящей диссертационной работы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

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

Основные результаты работы:

1. Совместно с коллегами по коллаборации Daya Bay разработан состав и проведены подробные исследования жидкого сцинтиллятора «стандартного состава» на основе линейного алкилбензола.

Показано, что адсорбционная очистка основного вещества сцинтиллятора приводит к значительному увеличению его прозрачности. В качестве сцинтилляционной добавки рекомендовано использовать 2,5-дифенилоксазол (PPO), в

качестве вторичной сцинтилляционной добавки – 1,4-ди-(5-фенил-2-оксазолил)-бензол (POPOP) или 1,4-бис-(2-метилстирил)бензол (bis-MSB).

Исследованы спектрометрические и временные характеристики сцинтиллятора. Установлено, что колебания состава промышленных партий линейного алкилбензола лишь незначительно влияют на характеристики детектора на его основе.

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

2. Для использования в нейтринном эксперименте Daya Bay совместно с коллегами по коллаборации разработан новый жидкий гадолинийсодержащий сцинтиллятор, в котором в качестве основного вещества используется линейный алкилбензол.

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

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

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

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

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

стве основы крупномасштабных низкофоновых детекторов в различных областях нейтринной физики.

Впервые получены борсодержащие жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола с орто-карбораном в качестве борсодержащей добавки, полностью соответствующие требованиям, предъявляемым к крупномасштабным детекторам. Эти сцинтилляторы прозрачны, имеют высокие световыход и эффективность регистрации нейтронов с энергией менее 0,4 эВ.

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

Проведены подробные исследования свойств новых сцинтилляторов: измерены спектры поглощения и люминесценции, зависимость световыхода от концентрации металла; для гадолинийсодержащих пластмассовых сцинтилляторов дополнительно определена зависимость эффективности регистрации нейтронов от содержания гадолиния. Показано, что световыход сцинтилляторов, содержащих добавки комплексных соединений хлоридов этих металлов с гексаметилтриамидом фосфорной кислоты, заметно превышает световыход сцинтилляторов, содержащих комплексы на основе их нитратов (в полтора раза для гадолиния и в два раза для неодима при массовой доле металла 3%).

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

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

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

Исследованы спектральные и сцинтилляционные свойства новых материалов. Показано, что увеличение массовой доли кадмия как в пластмассовых, так и в жидких сцинтилляторах приводит к снижению их световыхода. Полученные новые сцинтилляционные материалы обладают хорошей эффективностью реги-

страции нейтронов с энергией менее 0,4 эВ и могут быть использованы в ряде экспериментов.

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

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

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

Статьи в журналах, рекомендованных ВАК:

1. Бруданин, В.Б. Боросодержащий пластмассовый сцинтиллятор на основе полистирола / В.Б. Бруданин, О.И. Кочетов, **И.Б. Немченко** и др. // Известия РАН. Серия физическая. – 2001. – Т. 65. – №1. – С. 60-65.

2. Bregadze, V.I. Element-loaded organic scintillators for neutron and neutrino physics / V.I. Bregadze, V.B. Brudanin, D.V. Filosofov, ... **I.B. Nemtchenok** et al. // Particles and Nuclei, Letters. – 2001. – No 6[109]. – P. 69-77.

3. Arnold, R. Technical design and performance of the NEMO 3 detector / R. Arnold, C. Augier, A.M. Bakalyarov, ... **I. Nemchenok** et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2005. – V. 536. – P. 79-122.

4. Богомолов А.В. Прототип спектрометра нейтронов и гамма-квантов для исследования солнечной активности на расстояниях от 0,5 астрономических ед. до 25 солнечных радиусов / А.В. Богомолов, С.Н. Кузнецов, А.Э. Лишнеvский, **И.Б. Немченко** и др. // Приборы и техника эксперимента. – 2005. – №3. – С. 24-36.

5. Амельчаков М.Б. Кластер сцинтилляционных счетчиков для ливневой установки НЕВОД-ШАЛ / М.Б. Амельчаков, В.Б. Бруданин, К.С. Ерин, ... **И.Б. Немченко** и др. // Известия РАН. Серия физическая. – 2007. – Т. 71. – №4. – С. 580-582.

6. Ампилогов Н.В. Сцинтилляционный детектор с оптоволоконным съемом информации / М.Б. Амельчаков, Г.И. Бритвич, В.Б. Бруданин, **И.Б. Немченко** и др., // Известия РАН. Серия физическая. – 2009. – Т. 73. – № 5. – С. 675-679.

7. Argyriades J. Results of the BiPo-1 prototype for radiopurity measurements for the SuperNEMO double beta decay source foils / J. Argyriades, R. Arnold, C. Augier, ... **I.B. Nemchenok** et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2010. – V. 622. – P. 120-128.

8. Argyriades J. Spectral modeling of scintillator for the NEMO-3 and SuperNEMO detectors / J. Argyriades, R. Arnold, C. Augier, ... **I.B. Nemchenok** et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2011. – V. 625. – P. 20-28.

9. **Немченко И.Б.**, Жидкий сцинтиллятор на основе линейного алкилбензола / **И.Б. Немченко**, В.И. Бабин, В.Б. Бруданин и др. // Письма в ЭЧАЯ. – 2011. – Т. 8. – №2. – С. 218-227.

10. **Немченко И. Б.**, Неодимсодержащий жидкий сцинтиллятор / **И.Б. Немченко**, В.Б. Бруданин, О.И. Кочетов и др. // Известия РАН. Серия физическая. – 2011. – Т. 75. – № 7. – С. 1070-1073.

11. An F. P. Side-by-side comparison of Daya Bay Antineutrino Detectors / F.P. An, Q. An, Bai J. Z., ... **I. Nemchenok** et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2012. – V. 685. – P. 78 – 97.

12. An F.P. Observation of Electron-Antineutrino Disappearance at Daya Bay / F. P. An, J. Z. Bai, A. B. Balantekin, ... **Nemchenok I.** et al.// Physical Review Letters. – 2012. – V. 108. – P. 171803-1 – 171803-7.

13. **Немченко И.Б.** Cd-содержащие органические сцинтилляторы / **И.Б. Немченко**, А.А. Шуренкова, В.Б. Бруданин и др. // Известия РАН. Серия физическая. – 2012. – Т. 76. – № 11. – С. 1326–1329.

14. Beriguete, W. Production of a gadolinium-loaded liquid scintillator for the Daya Bay reactor neutrino experiment / W. Beriguete, J. Cao, Ya. Ding ...**I. Nemchenok** et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2014. – V. 763. – P. 82-88.

Другие статьи:

1. Ding Ya. A liquid scintillator for thermal neutron detection / Ya Ding, N.A. Gundorin, Zh. Zhang ... **I.B. Nemchenok** et al. // Functional materials. – 2009. – V. 16. – No. 1. – P. 73-75.

2. Бруданин В.Б. **Немченко И.Б.** Элементосодержащие органические сцинтилляторы // В сб.: Сцинтилляционные материалы. Инженерия, устройство, применение - Харьков: «ИСМА», 2009. - С. 254 - 286.

3. **Немченко И.Б.**, Ольшевский А.Г. Нейтринный эксперимент DAYA BAY // В сб.: Сцинтилляционные материалы. Инженерия, устройство, применение - Харьков: «ИСМА», 2011, С. 181–195.

4. **Nemchenok I.B.** Boron-loaded liquid scintillator / **I.B. Nemchenok**, N.A. Gundorin, I.I. Kamnev et al. // Functional Materials. – 2013. – V.20. – No 3. – P. 300 – 303.

5. **Nemchenok I.B.** Plastic scintillators for thermal neutrons detection / **I.B. Nemchenok**, Gundorin N.A., Shevchik E.A., Shurenkova A.A. // Functional Materials. – 2013. – V.20. – No 3. – P. 310 – 314.

Тезисы докладов:

1. **Немченко И.Б.**, Философов Д.В. Исследование возможности создания жидкого сцинтиллятора с высоким содержанием гадолиния // Международная конференция по ядерной физике «Кластеры в ядерной физике» (50 совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра). Тезисы докладов, Санкт-Петербург, 2000, С. 388.

2. Бруданин В. Б., Кочетов О. И., **Немченко И.Б.** и др. Боросодержащий пластмассовый сцинтиллятор на основе полистирола // Международная конференция по ядерной физике «Кластеры в ядерной физике» (50 совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра). Тезисы докладов, Санкт-Петербург, 2000, С. 399.

3. Bogomolov V., Brudanin V. B., Kuznetsov S. N., **Nemchonok I.B.**, et al. Neutron Spectrometer for Energies 0.05-5 MeV // 33rd COSPAR Scientific Assembly, Warsaw, Poland, 16-23 July 2000, Book of Abstracts, Scientific Commission F, F2.5-0014.

4. Бруданин В.Б., Гальперина Р.С., Кочетов О.И., **Немченко И.Б.** и др. Производство и разработка новых типов пластмассовых сцинтилляторов в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ // Проблемы прикладной спектрометрии и радиометрии. ППСР-2001. V Международное совещание. Тезисы докладов. Дубна, 2001, С. 31.

5. Бруданин В.Б., Гальперина Р.С., Кочетов О.И., **Немченко И.Б.** и др. Разработка и изготовление пластмассовых сцинтилляторов для неускорительной физики // 52 Международное Совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра – Ядро 2002. Тезисы докладов, Москва, 2002, С. 315.

6. Brudanin V.B., Galperina R.S., Kochetov O.I., **Nemchenok I.B.** et al. Plastic scintillators design and production in JINR // The Fifth International Conference “Modern problems of Nuclear Physics”, Book of Abstracts, Samarkand, 2003, P. 312 – 313.

7. Бабин В.И., Бруданин В.Б., Васильев Р.В., **Немченко И.Б.** и др. Жидкий сцинтиллятор на основе линейного алкилбензола // 58 Международное Совещание по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра – Ядро 2008. Тезисы докладов, Санкт-Петербург, 2008, С. 275.

8. Динг Я., Гундорин Н.А., Жанг Ж., **Немченко И.Б.** и др. Жидкий сцинтиллятор для регистрации тепловых нейтронов // Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии, ИСМАРТ-2008». Тезисы докладов, Харьков, 2008, С. 71.

9. Бруданин В.Б., **Немченко И.Б.** Элементосодержащие органические сцинтилляторы в современных физических исследованиях // Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии, ИСМАРТ-2008». Тез. докл., Харьков, 2008, С. 41.

10. Brudanin V.B., Kochetov O.I., **Nemchenok I.B.**, et al. Nd-Loaded liquid scintillator // LX International Conference on Nuclear Physics "Nucleus 2010.

Methods of Nuclear Physics for Femto- and Nanotechnologies"/ Book of abstracts, July 6-9, 2010, P.391.

11. Ольшевский А.Г., **Немченко И.Б.** Нейтринный эксперимент DAУА ВАУ // Международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии», 14-19 ноября, 2010, Харьков, Украина, С. 43.

12. **Немченко И.Б.**, Шуренкова А.А., Бруданин В.Б. и др. Cd-содержащие органические сцинтилляторы // «Ядро 2011. 61 Международная конференция по проблемам ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра». Сборник тезисов, 10-14 октября, 2011, С. 259-260.

13. **Немченко И.Б.** Органические сцинтилляторы для физики высоких энергий: пути повышения эффективности регистрации // Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии: Тезисы докладов третьей международной конференции (Дубна, 19-23 ноября 2012 г.). – Дубна: ОИЯИ, 2012, С. 3.

14. **Немченко И.Б.**, Шуренкова А.А., Гундорин Н.А. и др. Боросодержащие жидкие сцинтилляторы. // Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии: Тезисы докладов третьей международной конференции (Дубна, 19-23 ноября 2012 г.). – Дубна: ОИЯИ, 2012, С. 33-34.

15. **Немченко И.Б.**, Шуренкова А.А., Гундорин Н.А. и др. Пластмассовые сцинтилляторы для регистрации тепловых нейтронов // Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии: Тезисы докладов третьей международной конференции (Дубна, 19-23 ноября 2012 г.). – Дубна: ОИЯИ, 2012, С. 49.

Список использованной литературы

1. An F. P. Side-by-side comparison of Daya Bay Antineutrino Detectors / F.P. An, Q. An, Bai J. Z., et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2012. – V. 685. – P. 78 – 97.

2. Ahn, J.K. Observation of reactor electron antineutrinos disappearance in the RENO experiment / J.K. Ahn, S. Chebotaryov, J.H. Choi, et al. // Physical Review Letters. – 2012. – V. 108. – P. 191802-1 – 191802-6.

3. Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. акад. И.К. Кикоина. – М.: «Атомиздат», 1976. – 1008 с.

4. Cowan, C.L. Detection of the free neutrino: a confirmation / C.L. Cowan, F. Reines, F.V. Harrison et al. // Science. – 1956. – V. 124. – P. 103-104.

5. ТУ 2414-028-05766480-2006.

6. Boehm, F. The Palo Verde reactor neutrino experiment. A Test for long base-line neutrino oscillations / F. Boehm, J. Buzenitz, J. Cornis et. al. // Nuclear Physics B (Proceedings Supplement). – 1999. – V. 70. – P. 191-194.

7. Results from the Palo Verde neutrino oscillation experiment / F. Boehm, J. Busenitz, B. Cook et al. // *Physical Review D*. – 2000. V. – 62. – P. 072002-1-072002-18.
8. www.chemnet.com.
9. Анисимова, Г.И. Пластические борсодержащие сцинтилляторы / Г.И. Анисимова, Л.С. Данелян, А.Ф. Жигач и др. // *Приборы и техника эксперимента* – 1969. – № 1. – С. 49-51.
10. Raghavan, R.S. New Prospects for Real-Time Spectroscopy of Low Energy Electron Neutrinos from the Sun / R.S. Raghavan // *Physical Review Letters*. – 1997. – V. 78. – No 19. – P. 3618-3621.
11. Cribier, M. The LENS experiment / M. Cribier // *Nuclear Physics B (Proceedings Supplement)*. – 2000. – V. 87. – P. 195 – 197.
12. Gratta, G. Towards low-threshold, real-time solar neutrino detectors / G. Gratta, Y.F. Wang // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. – 1999. – V. 438. – P. 317-321.
13. Tretyak, V.I. Tables of double beta decay data – an update / V.I. Tretyak, Y.G. Zdesenko // *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. – 2002. – V. 80. – No 1. – P. 83-116.
14. Zdesenko, Y. Colloquium: The future of double β decay research / Y. Zdesenko // *Reviews of modern physics*. – 2002. – V. 74. – P. 663-684.
15. Araujo Melo, D.M. Calorimetric study of the reaction between lanthanoid trifluoromethanesulphonates and hexamethylphosphoramide (HMPA) in ethanolic solution / D.M. Araujo Melo, Z.R. da Silva // *Thermochimica Acta*. – 1999. V. – 328. – P. 183-185.
16. Oliveira, S.S. Preparation and properties of complexes between rare earth trifluoroacetates and hexamethylphosphoramide (HMPA) / S.S. Oliveira, D.M. Araujo Melo, Z.R. da Silva et al. // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2000. – V. 303-304. – P. 157-161.
17. Reines, F. Detection of neutrons with a large liquid scintillation counter / F. Reines, C.L. Cowan, Jr., F.B. Harrison, D.S. Carter // *The Review of Scientific Instruments*. – 1954. – V. 25. – № 11. – P. 1061-1068.
18. Beard, G.B. Beta decay of naturally radioactive In115 / G.D. Beard, W.H. Kelly // *Physical Review*. – 1961. – V. 122. – No. 5. – P. 1576 – 1579.
19. Щербов, Д.П. Аналитическая химия кадмия / Д.П. Щербов, В.А. Матвеец. М.: Наука, 1973. – 256 с.

Отпечатано методом прямого репродуцирования
с оригинала, предоставленного автором.

Подписано в печать 15.03.2019.

Формат 60×90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 2,75. Уч.-изд. л. 2. Тираж 100 экз. Заказ № 59640.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/