

**ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ЖИДКОГО ОРГАНИЧЕСКОГО
СЦИНТИЛЛЯТОРА НА ОСНОВЕ СИНТИНА И НАФТАЛИНА
ДЛЯ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ В НЕЙТРИННОЙ ФИЗИКЕ**

Пшуков А.М., Кокоева А.А.*

*Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова
Центр новых детекторных технологии регистрации нейтрино*

***al-aneta@mail.ru**

Проведены исследования оптических свойств по получению новых органических жидких сцинтилляторов на основе синтина («компонент-реактив»), где в качестве ароматических добавок использован нафталин с концентрацией до 10 мг/мл. При этом наблюдается увеличение выхода люминесценции более чем в 5,9 раз. Полученные результаты могут быть использованы для создания жидкосцинтилляционных детекторов при регистрации безнейтринного двойного бета распада неодима-150.

Ключевые слова: оптические свойства, безнейтринный двойной бета распад, неодим-150, жидкий сцинтиллятор, синтин, нафталин, световой выход, флуоресцентные свойства, механизм переноса энергии.

**INVESTIGATION OF OPTICAL PROPERTIES OF A LIQUID ORGANIC SCINTILLATOR
BASED ON SYNTHIN AND NAPHTHALENE FOR USE IN NEUTRINO PHYSICS**

Pshukov A.M., Kokoeva A.A.

*Kabardino-Balkarian State University
Center for New Detector Technologies for Neutrino Registration*

Studies of optical properties for the production of new organic liquid scintillators based on synthin («component-reagent»), where naphthalene with a concentration of up to 10 mg/ml was used as aromatic additives. At the same time, there is an increase in the luminescence output by more than 5.9 times. The results obtained will be used to create liquid scintillation detectors for the registration of neutrinoless double beta decay of neodymium-150.

Keywords: optical properties, neutrinoless double beta decay, neodymium-150, liquid scintillator, synthin, naphthalene, light output, fluorescent properties, energy transfer mechanism.

Введение

Жидкие сцинтилляторы играют значительную роль в современной экспериментальной астрофизике частиц, в особенности в нейтринной физике, которые подтверждены работой [1], экспериментами KamLAND [2] иorexino [3], которые являются жидкосцинтилляционными детекторами. Эта эпоха продолжилась экспериментами с реакторными антинейтрино Double Chooz [4], Daya Bay [5] и RENO [6]. Сегодня проводят крупномасштабные эксперименты с 20 кт [7], разрабатывается проект с 50 кт жидким сцинтиллятором LENA шахте Пюхасалми в Финляндии [8]. Проводится ряд экспериментов по поиску стерильных нейтрино (NEUTRINO-4 [9], NEOS [10]).

УФ-спектрофотометрия является широко используемым аналитическим методом для количественного определения микроэлементов в различных образцах, включая водные растворы. В данной работе представлен метод определения содержания неодима в жидкости с помощью УФ-спектрофотометра путем измерения спектров поглощения водного раствора NdCl_3 .

Обычно в жидких сцинтилляторах в качестве основного растворителя используют ароматические углеводороды [3, 5-10] или смесь предельных углеводородов и ароматических [12, 14].

В качестве основного растворителя для создания сцинтилляторов в работе используется синтин (карбюризатор для газовой цементации стали), который впервые предложен в работе [11]. Химический состав синтина («компонент-реактив»), его прозрачность (длина ослабления света) и световыход сцинтиллятора на основе синтина исследован в работе [12]. Показано, что в состав синтина входит всего 0,01 моль/л ароматических углеводородов, поэтому относительный световыход синтина составляет 33 % (такой же, как у минерального масла (МО)), но синтин, также как МО, может быть использован для создания сцинтилляторов с добавками ароматических углеводородов, таких как псевдокумол. Исследования [13] показали, что добавление ароматических углеводородов в жидкие сцинтилляторы может значительно увеличить светоотдачу. Обнаружили, что добавление нафталина в жидкий сцинтиллятор на основе линейного алкилбензола (ЛАБ) увеличивает светоотдачу до 1,5 раз. Авторы связывают это увеличение с передачей возбуждения от нафталина к возбужденному состоянию молекул сцинтиллятора.

Кроме того, известно, что световыход сцинтилляторов увеличивают добавки полициклических ароматических соединений, простейшими из которых являются нафталин и его производные (диизопропилнафталин (DIN), 2-метилнафталин и др.) Одна из последних работ, в которых для улучшения свойств сцинтиллятора применяются нафталин и DIN – работа А.П. Сереброва [14].

В ароматических углеводородах в кольцах из углеродных атомов чередуются одинарные и двойные связи. Они обладают высокими квантовыми выходами люминесценции и могут передавать возбуждение другим молекулам, увеличивая светоотдачу. Добавление ароматических углеводородов в жидкие сцинтилляторы позволяет улучшить их характеристики, так как они действуют как сенсбилизаторы, поглощая энергию из возбужденного состояния сцинтиллятора и переводя ее в более низкоэнергетическое состояние, которое излучает свет.

При добавлении ароматических углеводородов в жидкие сцинтилляторы передача энергии может стать более эффективной, что приведет к увеличению светоотдачи. При добавлении в жидкий сцинтиллятор ароматических углеводородов выход люминесценции увеличивается. Это явление происходит благодаря механизму переноса энергии, который включает передачу энергии от возбужденной флуоресцентной молекулы к ароматическим углеводородам.

Процесс передачи энергии можно объяснить с помощью теории Форстера, также известной как теория резонансной передачи энергии, согласно которой передача энергии происходит посредством безызлучательного процесса, когда энергия передается от молекулы-донора (флуоресцентной молекулы) к молекуле-акцептору (ароматический углеводород) посредством диполь-дипольного взаимодействия.

Эффективность переноса энергии зависит от расстояния между молекулами донора и акцептора, их ориентации и спектрального перекрытия между спектром излучения донора и спектром поглощения акцептора. Для эффективной передачи энергии расстояние между донором и акцептором должно быть в пределах критического расстояния, называемого радиусом Форстера, которое обычно составляет менее 10 нм.

В случае жидких сцинтилляторов добавленные ароматические углеводороды действуют как молекулы-акцепторы, а флуоресцентные молекулы действуют как молекулы-доноры. Когда ионизирующее излучение попадает в сцинтиллятор, оно возбуждает флуоресцентную молекулу, которая затем передает свою энергию добавленному ароматическому углеводороду посредством переноса энергии.

Сцинтилляция становится возможной благодаря наличию в ароматических молекулах делокализованных электронов. При sp^2 -гибридизации одна p-орбиталь остается неизменной, тогда как две других p-орбитали и одна s-орбиталь смешиваются и образуют плоскость, которая ортогональна неизменной p-орбитали. Такое расположение является основой для образования гексагональной кольцевой структуры молекулы бензола (C_6H_6). Это приводит к увеличению выхода люминесценции, что повышает чувствительность сцинтиллятора к излучению.

Таким образом, механизм переноса энергии играет решающую роль в увеличении выхода люминесценции в жидких сцинтилляторах при добавлении ароматических углеводородов.

Материалы и методы

Описание приборов и оборудования

Спектрофотометр ПЭ-3000УФ. Исследование прозрачности синтина, перед приготовлением сцинтиллятора на его основе, проводилось на спектрофотометре ПЭ-3000УФ.

Люминесцентный спектрометр PerkinElmer LS 55 предназначен для регистрации стационарных спектров флуоресценции образцов в различных агрегатных состояниях. Прибор может работать в одном из четырех режимов – флуоресценция, фосфоресценция, хеми – и биолюминесценция. Использование люминесцентного спектрофотометра позволяет качественно и количественно оценить особенности растворов жидких сцинтилляторов, а также предоставляет информацию для оптимизации их характеристик. Управление осуществляется с персонального компьютера с помощью программы FL WinLab.

Люминесцентный спектрофотометр измеряет световые спектры, образованные в процессе переходов между энергетическими уровнями молекул жидких сцинтилляторов. Это позволяет анализировать различные свойства этих веществ, такие как энергетические уровни, ширину линий спектра, относительный световыход и другие характеристики. Прибор LS 55 оснащен ксеноновой лампой в качестве источника возбуждения. Лампа излучает свет с различной длиной волны в зависимости от выбранного диапазона длин волн.

Исследуемый образец помещали в кювету, затем в держатель образца прибора. После этого прибор калибровали с помощью холостого растворителя, чтобы убедиться, что любой фоновый сигнал вычитается из сигнала, полученного от образца.

Для получения спектра люминесценции образца прибор был настроен на сканирование интересующего диапазона длин волн, в соответствии с параметрами в Setup: Start 275 nm, End 450 nm и скорость сканирования 100 nm/min. Длина волны фотовозбуждения была установлена на фиксированное значение Emission 270 nm в области УФ. Щели возбуждения и излучения имели соответствующую ширину ExSlit nm 15, EmSlit nm 20, обеспечивая достаточное отношение сигнал/шум.

Во время измерения возбуждающий свет фокусировался на образце, а результирующее люминесцентное излучение образца собиралось и измерялось с помощью фотоумножителя (ФЭУ). ФЭУ преобразовывал собранный свет в электрический сигнал, который затем усиливался, обрабатывался и записывался программным обеспечением прибора. Полученный результат был представлен в виде графика зависимости интенсивности излучения люминесценции образца.

Весы аналитические ALC-210d4Acculab – цена деления 0,0001 г, предел взвешивания 110 г.

Приготовление растворов нафталина в синтине. Нафталин (бицикло-[4.4.0]-дека-1,3,5,7,9-пентаен, гексален, антимит) – органическое соединение состава $C_{10}H_8$, представляет собой твёрдое кристаллическое вещество с характерным запахом. В воде мало растворим. Хорошо растворим в бензоле, эфире, спирте, хлороформе [15].

Методика проведения исследований

В ходе работы приготовили ряд растворов различной концентрации нафталина в синтине. Для этого необходимое количество нафталина взвешивали на аналитических весах и переносили в мерную колбу на 50 мл, добавляли синтин и растворяли. Процесс растворения нафталина в синтине возможен при небольших концентрациях, но с увеличением концентрации растворяется только при небольшом нагревании на водяной бане до 60 °С. При концентрациях 15 мг/мл и 20 мг/мл нафталин при нагревании растворился в синтине, но после охлаждения раствора кристаллы вновь выпали в осадок. Таким образом, для дальнейших исследований готовили растворы нафталина в синтине концентрации не более 10 мг/мл, согласно *табл. 1*.

Таблица 1

Концентрация растворов нафталина в синтине

№	Объем раствора, мл	Концентрация раствора, мг/мл
1	50 мл	4
2		5
3		6
4		7
5		8
6		10

После добавления нафталина к жидкому сцинтиллятору раствор тщательно перемешивали в течение нескольких часов при комнатной температуре для обеспечения полного растворения. Затем, полученный раствор исследовали по его сцинтилляционным свойствам и стабильности, чтобы обеспечить достижение желаемой эффективности сцинтилляции.

Результаты и их обсуждение

Полученный раствор сцинтиллятора исследуется различными методами, в том числе фотолюминесцентной спектроскопией, измерениями эффективности сцинтилляции и энергетического разрешения. Также проводится тестирование на стабильность и устойчивость к старению. В данной работе определяются оптические свойства сцинтиллятора методом фотолюминесцентной спектроскопии.

Добавление нафталина к жидким сцинтилляторам может вызывать некоторые ограничения, такие как снижение световых выходов при высоких концентрациях, понижение прозрачности и увеличение вязкости. Поэтому для достижения желаемых сцинтилляционных свойств необходимо оптимизировать концентрацию и тип производных нафталина. Также важно, чтобы производный нафталин был совместим с основным растворенным веществом и любыми добавками, используемыми в жидком сцинтилляторе. Выход люминесценции каждого образца сцинтиллятора измерялся при помощи люминесцентного спектрофотометра.

Для количественной оценки изменения относительного квантового выхода флюоресцирующего раствора при фотовозбуждении на длине волны 270 нм был использован факт пропорциональности значения коэффициента квантового выхода (КВ) площади под пиками спектра излучения.

В табл. 2 приведены величины площадей под пиками спектров излучения указанных образцов. Интегрирование базовой линии производится в диапазоне от 310 нм до 480 нм.

Таблица 2

Спектры излучения сцинтиллятора и результаты площади под пиком с вычетом «подложки»

№	Сцинтиллятор	Начальная длина волны, нм	Конечная длина волны, нм	Площадь под пиком
1	Синтин-нафталин 10 мг/мл	310,00	480,00	1747,7
2	Синтин-нафталин 8 мг/мл			1492,8
3	Синтин-нафталин 7 мг/мл			1410,0
4	Синтин-нафталин 6 мг/мл			923,1
5	Синтин-нафталин 5 мг/мл			811,3
6	Синтин-нафталин 4 мг/мл			651,4
7	Синтин чистый			296,1

На рис. 1 представлены спектры излучения сцинтилляторов на основе синтина с различной концентрацией нафталина до 10 мг/мл. С увеличением содержания нафталина наблюдается увеличение максимальной высоты спектра излучения и увеличения площади под соответствующим пиком, с вычетом «подложки».

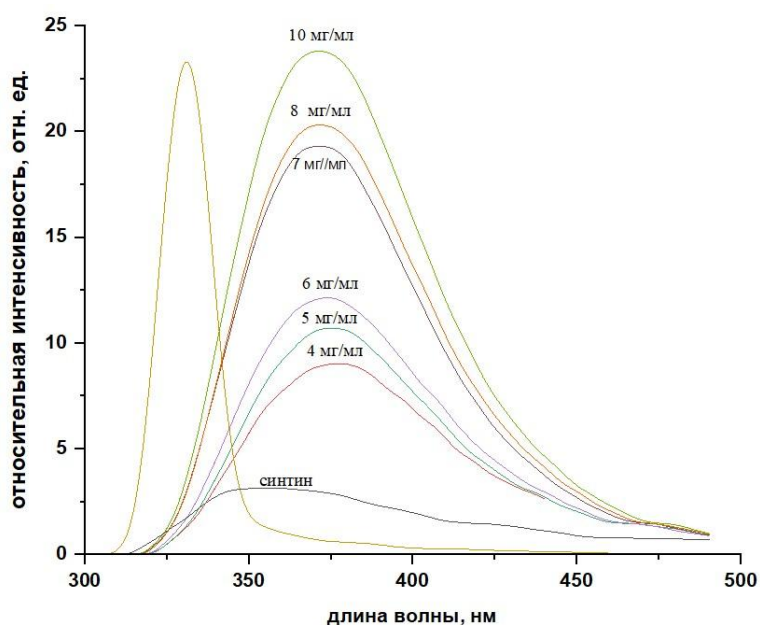


Рис. 1. Спектры излучения сцинтиллятора на основе синтина с добавкой нафталина

На *рис. 2* изображена зависимость относительного квантового выхода от процентного содержания нафталина в растворе. На оси ординат откладывается отношение площади под спектром излучения синтина к площади под спектром излучения синтина, обогащенного нафталином. Из графика видно, что добавление нафталина в синтин существенно увеличивает выход люминесценции. Максимальный эффект достигается при концентрации ароматических углеводородов порядка 10 мг/мл по объему. Добавление соответствующего количества нафталина к синтину приводит к увеличению выхода люминесценции более чем в 5,9 раз. Однако дальнейшее увеличение концентрации нафталина ведет к его отложению в осадок.

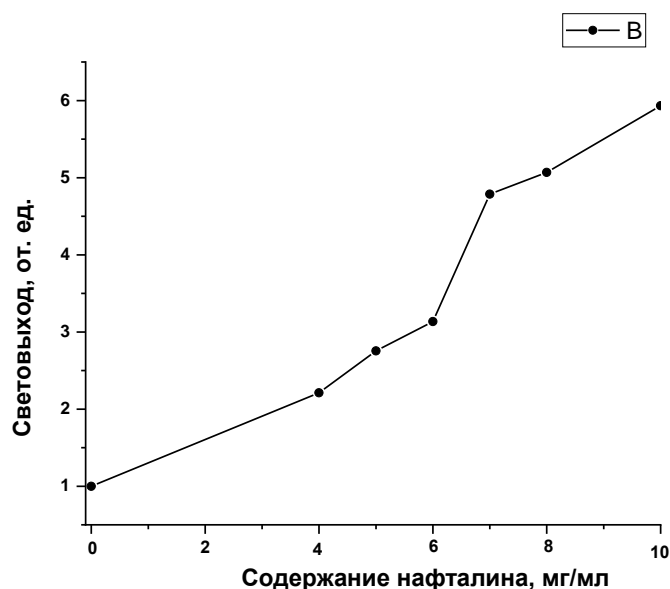


Рис. 2. Зависимость относительного квантового выхода от содержания нафталина в растворе

Увеличение выхода люминесценции при добавлении ароматических углеводородов можно объяснить несколькими факторами.

Во-первых, ароматические углеводороды имеют более высокий показатель преломления по сравнению с растворителями, используемыми в смеси сцинтилляторов, что приводит к увеличению вероятности поглощения света молекулой сцинтиллятора.

Во-вторых, ароматические углеводороды обладают высоким квантовым выходом флуоресценции, что увеличивает количество фотонов, испускаемых молекулой сцинтиллятора.

Кроме того, присутствие ароматических углеводородов может уменьшить образование безызлучательных путей переноса энергии, что приводит к увеличению выхода люминесценции.

Заключение

В ходе исследования было выявлено, что добавление нафталина в жидкий сцинтиллятор синтин приводит к существенному увеличению выхода по люминесценции. Наиболее оптимальная концентрация ароматических углеводородов составляет около 10 мг/мл в объеме. Для более точного подтверждения возможности использования раствора нафталина в синтине в качестве сцинтиллятора требуются дополнительные лабораторные исследования.

Дальнейшие исследования могут быть направлены на оптимизацию условий включения ароматических углеводородов в жидкие сцинтилляторы на основе синтина, а также на исследования стабильности сцинтилляционных характеристик таких смесей.

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, мнемокод FZZR-2022-0004.

Библиография

1. Cowan C.L., Reines F., Harrison F.B., Kruse H.W., McGuire A.D. Detection of the free neutrino: A Confirmation // *Science*. 1956. N 124. P. 103–104.

2. Suzuki A., Collaboration K. Results from KamLAND Reactor Neutrino Detection // *Physica Scripta*. 2005. V. 121, N 33. P. 374–387.
3. Alimonti G., Arpesella C., Back H., Balata M. The Borexino detector at the Laboratori Nazionali del Gran Sasso // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2009. V. 600, N 3. P. 568–593.
4. Abe Y., Aberle C., Akiri T., Anjos J. C., Ardellier F. Indication of Reactor electron antineutrinos Disappearance in the Double Chooz Experiment // *Physical Review Letters*. 2012. V. 108, N 13. P. 273–282.
5. An F.P., Bai J.Z., Balantekin A.B., Band H.R., Beavis D., Beriguete W., Bishai M., Blyth S., Boddy K., Brown R.L. Observation of electron-antineutrino disappearance at Daya Bay // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 108, N 7. P. 108.
6. Ahn J.K., S. Chebotaryov Observation of Reactor Electron Antineutrinos Disappearance in the RENO Experiment // *Physical Review Letters*. 2012. V. 108, N 19. P. 191802.
7. An F., An G., An Q., Baussan E., Bellato M. Neutrino Physics with JUNO // *Physics*. 2016. V. 192, N 1. P. 224.
8. Wurm M., Beacom J. F., Bezrukov L. B., Bick D. The next-generation liquid-scintillator neutrino observatory LENA // *Astroparticle Physics*. 2012. V. 35, N 11. P. 685–732.
9. Serebrov A.P., Samoilov R.M., Ivochkin V.G., Fomin A.K.. First Observation of the Oscillation Effect in the Neutrino-4 Experiment on the Search for the Sterile Neutrino // *JETP Letters*. 2019. V. 109, N 4. P. 8–16.
10. Ko Y.J., Kim B.R., Kim J.Y., Han B.Y., Jang C.H. Sterile Neutrino Search at the NEOS Experiment // *Physical Review Letters*. 2017. V. 118, N 12. P. 1–24.
11. Пшуков А.М., Умеров Ш.И. Жидкий сцинтиллятор на основе синтина // *Препринт ИЯИ РАН 1442/2019. М., 2019. 18 с.*
12. Барабанов И.Р., Вересникова А.В., Моисеева А.А., Моргалюк В.П., Новикова Г.Я., Янович Е.А. Новые базовые растворители для жидких органических сцинтилляторов. Создание Nd-содержащих сцинтилляторов на основе смеси синтина и псевдокумола // *Ядерная физика*. 2023. Т. 86, № 2. С. 310–319.
13. Platt J.R. Classification of Spectra of Cata-Condensed Hydrocarbons // *The Journal of Chemical Physics*. 1949. V. 17, N 5. P. 217.
14. Серебров А.П., Ивочкин В.Г., Самойлов Р.М. Фомин А.К., Зиновьев В.Г., Создание второй нейтринной лаборатории на реакторе СМ-3 с целью увеличения точности эксперимента «НЕЙТРИНО-4» // *Журнал технической физики*. 2023. Т. 93, № 1. С. 294.
15. Никольский Б.П. Справочник химика. Л.: Химия, 2015. 709 с.