

## ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРАЛЬНЫХ И ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК СЦИНТИЛЛЯТОРА НА ОСНОВЕ СИНТИНА

<sup>1,2</sup>Вересникова А.В., <sup>2</sup>Исупова З.Ю., <sup>2</sup>Калажоков З.Х.,  
<sup>2</sup>Пшуков А.М.\*, <sup>2</sup>Хаширова С.Ю., <sup>2</sup>Эльчепарова С.А.

<sup>1</sup>*Институт ядерных исследований РАН*  
<sup>2</sup>*Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова*

\*pshukov1959@mail.ru

*В работе представлены результаты исследования оптических и люминесцентных свойств сцинтиллятора на основе промышленного продукта синтина с добавками. Определен оптимальный состав сцинтиллятора для раствора синтина. Ожидается, что результаты оптимизации будут использованы при разработке сцинтилляционного детектора большой массы. Исследования проводились с помощью спектрофотометра «ПЭ-3000 УФ» и люминесцентным спектрометром PerkinElmer LS 55.*

**Ключевые слова:** безнейтринный двойной бета распад, синтин, фотолюминесценция, люминесценция, оптические свойства, добавка RPO, добавка ROROR, добавка bis-MSB, нейтрино, неодим.

## INVESTIGATION OF SPECTRAL AND LUMINESCENT CHARACTERISTICS OF A SCINTILLATOR BASED ON SINTIN

<sup>1,2</sup>Veresnikova A.V., <sup>2</sup>Isupova Z.Yu., <sup>2</sup>Kalazhokov Z.Kh.,  
<sup>2</sup>Pshukov A.M., <sup>2</sup>Khashirova S.Yu., <sup>2</sup>Elcheparova S.A.

<sup>1</sup>*Institute of Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences*  
<sup>2</sup>*Kabardino-Balkarian State University*

*The paper presents the results of a study of the optical and luminescent properties of a scintillator based on the industrial product sintin with additives. The optimal composition of the scintillator for the sintin solution has been determined. It is expected that the optimization results will be used in the development of a high-mass scintillation detector. The studies were carried out using a PE-3000 UV spectrophotometer and a PerkinElmer LS 55 luminescent spectrometer.*

**Keywords:** neutrinoless double beta decay, syntin, photoluminescence, luminescence, optical properties, RPO additive, ROROR additive, bis-MSB additive, neutrino, neodymium.

Детекторы жидких сцинтилляторов (ЖС) широко применяются в физике нейтрино на протяжении нескольких десятилетий [1]: измерение угла смешивания нейтрино  $\theta_{12}$  в KamLAND [2], точное измерение солнечных нейтрино в Борексине [3] и наблюдение осцилляции нейтрино, вызванной  $\theta_{13}$  в DayaBay [4]. Учитывая высокий световыход, хорошую прозрачность и относительно низкую цену, этот тип детектора также принят на вооружение подземной нейтринной обсерваторией (JUNO) [5, 6]. Поскольку чувствительность обусловлена точным измерением в энергетическом спектре, важнейшим требованием к детектору является улучшенное энергетическое разрешение  $\sim 3\%$  при 1 МэВ [5].

Такие оптические и люминесцентные свойства будущего сцинтиллятора, как прозрачность, максимум поглощения, оптическая стабильность и максимум люминесценции являются определяющими и позволяют судить, в какой мере эффективным будет сцинтиллятор при решении поставленных задач: чем выше световыход, тем лучше энергетическое разрешение и физическая чувствительность. Таким образом, одним из ключевых моментов разработки детектора является максимальное увеличение световыхода.

Важной частью разработки чистого ЖС детектора является выбор правильного сцинтиллятора (фтора) и шифтера, а также их концентрации. Выбор влияет на спектральное распределение светоотдачи и эффективность обнаружения, поскольку каждый фотодетектор имеет свою область спектральной чувствительности. В данной работе представлены результаты исследования новой среды ЖС на основе синтина, впервые предложенный в БНО ИЯИ РАН [7, 8] с 2,5-дифенилоксазолом (РРО) и 1,4-бис(5-фенилоксазол-2-ил)бензолом (РОРОР), 1,4-бис(2-метилстирил)бензол (bis-MSB) в качестве предпочтительного фтора и преобразователя.

Как правило, каждая экспериментальная группа занимается оптимизацией состава сцинтиллятора в соответствии со своими потребностями. В данном случае это сделано для улучшения сцинтилляционных характеристик и минимизации количества используемых компонентов сцинтиллятора. Полученные количественные характеристики, предполагается использовать в расчетах эффективности регистрации при создании жидких органических сцинтилляторов, нагруженных металлами (РЗЭ – Nd, Gd, Yb и др.) для крупногабаритных детекторов и экспериментах в области нейтринной физики, в частности для исследования безнейтринного двойного бета-распада Nd-150.

### Методика эксперимента

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

*Люминесцентный спектрометр PerkinElmer LS 55.* Прибор предназначен для регистрации стационарных спектров флуоресценции образцов в различных агрегатных состояниях. Люминесцентный спектрометр LS 55 может работать в одном из четырех режимов – флуоресценция, фосфоресценция, хеми- и биолюминесценция. Управление осуществляется с персонального компьютера с помощью программы FL WinLab.

*Аналитические весы ALC-210d4Acculab*с точностью взвешивания до четвертого знака после запятой. (Цена деления 0,0001 г, предел взвешивания 110 г).

Для приготовления растворов РРО+синтин, bis-MSB и РОРОР+синтин брали соответствующие соли марки «о.с.ч.».

Чтобы приготовить исходный раствор РРО с концентрацией 7 г/л брали точную навеску РРО 0,35 г, растворяли в небольшом количестве чистого синтина и доводили объем до 50 мл тем же растворителем.

Растворы меньших концентраций готовились в мерных колбах на 25 мл путем кратного разбавления исходного раствора синтином, как показано в табл. 1.

Таблица 1

Приготовление различной концентрации растворов из РРО 7 г/л и РРО 5 г/л в синтине в объеме 25 мл

| Номер образца и конц. исход. растворов РРО в синтине | Концентрация РРО в растворе, г/л | Объем (аликвота) РРО в синтине, мл |
|------------------------------------------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| 1 – из 5 г/л                                         | 0,5                              | 2,5                                |
| 2 – из 7 г/л                                         | 1,0                              | 3,5                                |
| 3 – из 5 г/л                                         | 1,5                              | 7,5                                |
| 4 – из 7 г/л                                         | 2,0                              | 7,1                                |
| 5 – из 5 г/л                                         | 2,5                              | 15,6                               |
| 6 – из 7 г/л                                         | 3,0                              | 10,7                               |
| 7 – из 7 г/л                                         | 4,0                              | 14,2                               |
| 8 – из 7 г/л                                         | 5,0                              | 17,8                               |
| 9 – из 4г/л                                          | 6,0                              | 21,4                               |

Исходный раствор РОРОР готовили по аналогичной методике. Для получения раствора с концентрацией 10 мг/л точную навеску РОРОР 0,0001 г растворяли в 100 мл синтина. Другие концентрации растворов готовили в соответствии с табл. 2.

Таблица 2

Приготовление различной концентрации растворов из РОРОР 10 мг/л в синтине

| Номер образца | Концентрация РОРОР в растворе, мг/л | Объем (аликвота) РОРОР в синтине, мл | V <sub>общ</sub> , мл |
|---------------|-------------------------------------|--------------------------------------|-----------------------|
| 1.            | 1                                   | 2,5                                  | 25                    |
| 2.            | 2                                   | 5                                    | 25                    |
| 3.            | 3                                   | 7,5                                  | 25                    |
| 4.            | 4                                   | 10                                   | 25                    |
| 5.            | 5                                   | 12,5                                 | 25                    |
| 6.            | 6                                   | 15                                   | 25                    |
| 7.            | 7                                   | 17,5                                 | 25                    |
| 8.            | 8                                   | 20                                   | 25                    |
| 9.            | 9                                   | 22,5                                 | 25                    |

Чтобы приготовить исходный раствор bis-MSB с концентрацией 7 г/л брали точную навеску шифтера 0,0007 г, растворяли в небольшом количестве чистого синтина и доводили объем до 100 мл тем же растворителем.

Растворы меньших концентраций готовились в мерных пробирках на 15 мл путем кратного разбавления исходного раствора синтином, как показано в табл. 3.

Таблица 3

Состав ЖС (РРО и bis-MSB в синтине)

| Концентрация РРО в растворе, г/л | Концентрация bis-MSB в растворе, мг/л |
|----------------------------------|---------------------------------------|
| 1                                | 0,01                                  |
| 2                                | 1                                     |
| 2                                | 4                                     |
| 2                                | 7                                     |
| 2,5                              | 7                                     |
| 3                                | 7                                     |
| 4                                | 7                                     |

## Результаты и их обсуждения

### 1. Исследование прозрачности синтина

Высокая прозрачность жидких сцинтилляторов необходима при создании на их основе сцинтилляционных детекторов больших размеров с массой вплоть до нескольких сотен тонн. Спектры поглощения каждого образца синтина, который использовался для приготовления растворов, был измерен с помощью спектрофотометра «ПЭ-3000 УФ» с кварцевыми кюветами длиной 3,5 и 10 см.

Длина поглощения света в синтине определяется по методу, описанному в работе [9] и составила  $25 \pm 2$  нм на длине волны 420 нм. Спектр поглощения приведен на рис. 1.

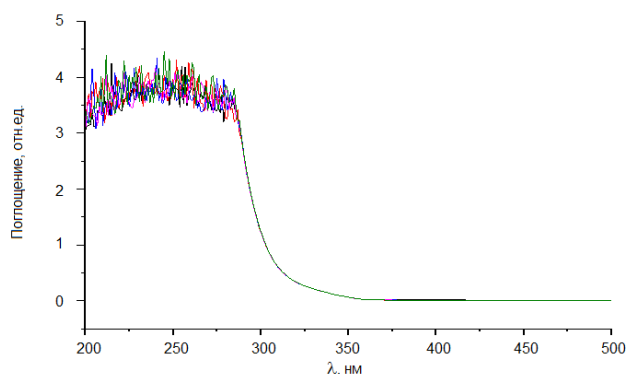


Рис. 1. Зависимость поглощения синтина от длины волны в 10 см бюксе

Учитывая, что измерения в люминесцентном спектрофотометре LS 55 проводились в кварцевых кюветах толщиной 12 мм, полученные значения длины прозрачности синтина, вполне достаточны, для измерения люминесцентных характеристик сцинтиллятора.

## 2. Оптимизация состава жидких органических сцинтилляторов на основе синтина

Во время распространения фотон может либо поглощаться или рассеиваться в объеме детектора, либо поглощаться при достижении оптических границ, таких как ФЭУ. Поглощение может происходить на любом компоненте ЖС в соответствии с законом Бера – Ламберта и спектром поглощения каждого компонента. Новый фотон с большей длиной волны может быть испущен, если исходный фотон поглощается PPO, POPOP или bis-MSB. Вероятность переизлучения определяется как конверсионная эффективность флуоресценции (КЭФ). Таким образом, ключевые оптические параметры состоят из спектров излучения PPO, POPOP и bis-MSB, спектров поглощения и возбуждения ЖС, PPO, POPOP и bis-MSB, а также зависящих от длины волны конверсионной эффективности флуоресценции PPO, POPOP и bis-MSB.

В данной работе спектры излучения сцинтилляторов на основе синтина с добавками PPO, POPOP и bis-MSB (рис. 4, 8, и 12) были измерены с помощью высокоточного люминесцентного спектрофотометра LS55 фирмы PerkinElmer. Измерения основных люминесцентных характеристик описаны ниже.

### а) Синтин + PPO

При создании жидкого сцинтиллятора традиционно в качестве сцинтиллирующей добавки применяется PPO.

Для измерения спектров излучения были приготовлены серии растворов с различной концентрацией PPO в синтине (см. табл. 1).

Для каждого образца, максимумы длин волн возбуждения и излучения предварительно определяли с помощью функции Pres-Scan, а точные измерения спектров излучения растворов проводили с помощью функции Emission. Спектр излучения, записывался с использованием фиксированной длины волны возбуждения. Значения максимумов длин волн спектров возбуждения после их определения передавались из подфункции Pres-Scan в Emission. Полученные спектры приведены на рис. 2.

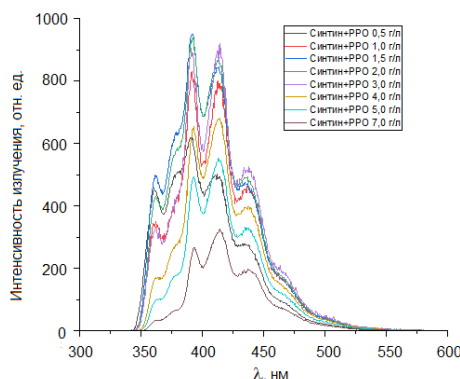


Рис. 2. Спектры излучения растворов синтин+PPO от концентрации PPO (от 0,5 до 7 г/л)

Из рис. 2 видно, что с увеличением концентрации от 0,5 г/л PPO в растворе, интенсивность излучения увеличивается до определенной концентрации, потом падает.

Для количественной оценки изменения относительного КВ флуоресцирующего раствора при фотовозбуждении, использовали известный факт пропорциональности значения КВ площади под пиками излучения.

Используя значения площадей, сумма дискретных значений интенсивности излучения в диапазоне длин волн от 320 нм до 570 нм, под спектрами излучения растворов различных концентраций PPO, получили зависимости, представленные на рис. 3 и 4.

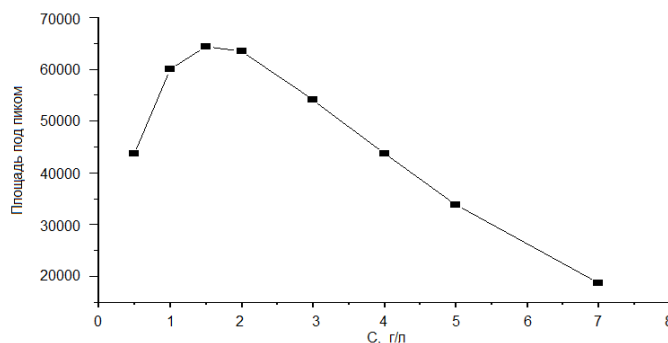


Рис. 3. Зависимость площади под пиком спектра излучения от концентрации PPO от 0,5 до 7 г/л

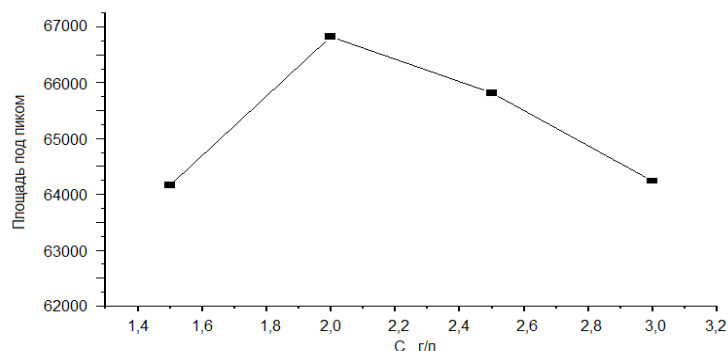


Рис. 4. Зависимость площади под пиком спектра излучения от концентрации РРО от 1,5 до 3 г/л

По оси ординаты отложены площади по оси абсцисс значения концентрации РРО в растворе. Общее количество фотонов испускаемых РРО, линейно увеличивается с концентрацией РРО, пока не достигнет значения 2 г/л. Данная концентрация дает точку нормализации, при которых обнаруживается наибольший КВ раствора. Выше этой концентрации рост выходит на плато и при более высоких концентрациях падает (рис. 3 и 4). Относительный КВ увеличивается более чем на 35 % при повышении концентрации РРО с 0,5 г/л до 2 г/л.

Дальнейшие исследования проводились с использованием найденного значения концентрации 2 г/л РРО в растворе.

Линия спектра фотолюминесценции раствора концентрации 2 г/л РРО была разложена на составляющие с использованием функций Лоренца, с возможностью задания асимметрии в специализированной системе CasaXPS. На спектре видно, что присутствуют области, где пики имеют более низкое значение параметра ПШПВ, поэтому, для более точного описания, несколько пиков были специально ограничены до 15 нм по ПШПВ. В конечном итоге, спектр был описан с использованием 7 пиков (рис. 5).

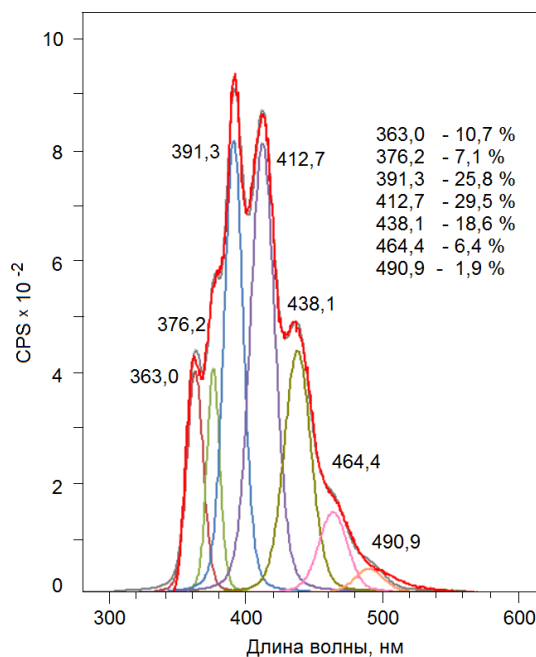


Рис. 5. Аппроксимация спектра излучения сцинтиллятора синтин + РРО 2 г/л

Видно, что спектр излучения раствора синтин + РРО 2 г/л разлагается на 7 базовых линий при этом линии 363 нм и 376 нм не попадают в область хорошей чувствительности ФЭУ. Кроме этого, они накладываются на область спектра собственного возбуждения. Эти пики составляют 18 % от общей площади спектра, линия 391 нм с вкладом 26 % значительно меньше максимальной (420 нм) чувствительности ФЭУ (см. рис. 10).

В связи с этим, для увеличения выхода света собственного излучения РРО из раствора и эффективной регистрации ФЭУ, необходимо его сместить в область, максимально близкой к 420 нм. В жидких органических сцинтилляторах в качестве сместителей спектров традиционно применяются так называемые шифтеры. В данной работе использовались шифтеры POPOP и bis-MSB.

б) синтин + РОРОР

Исследовались спектры излучения шифтера РОРОР в синтине с различными концентрациями, (см. табл. 2) с точки зрения их согласованности с максимальной чувствительностью ФЭУ.

Измерения спектров возбуждения и излучения измерялись на люминесцентном спектрометре PerkinElmer LS 55, аналогично, как и с растворами синтин + РРО.

На рис. 6 показаны спектры излучения растворов синтин + РОРОР. Видно, что с увеличением содержания РОРОР в чистом синтине вплоть до 7 мг/л КЭФ растет. Из сравнения спектров найдено, что оптимальное значение содержания РОРОР в синтине получается в интервале от 3 до 4 мг/л.

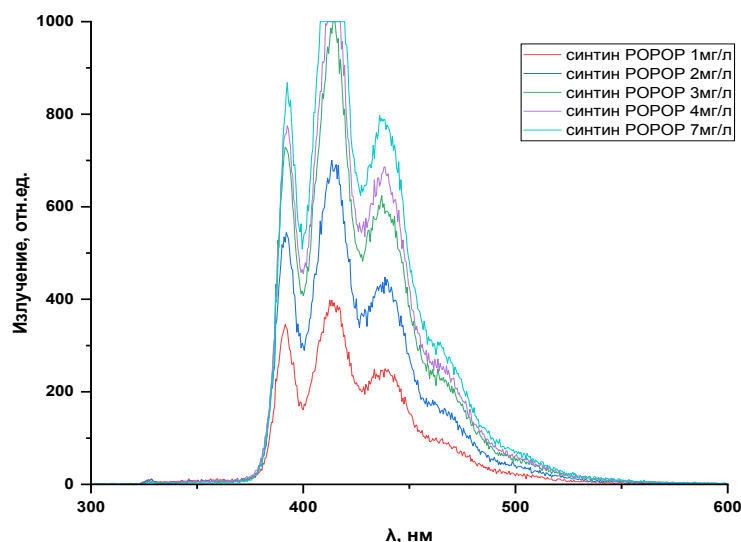


Рис. 6. Спектры излучения растворов синтин+РОРОР 1-7 мг/л

На рис. 7 приводятся спектры излучения для оптимальных содержаний РРО и РОРОР, где виден сдвиг между спектрами излучения различной концентрации.

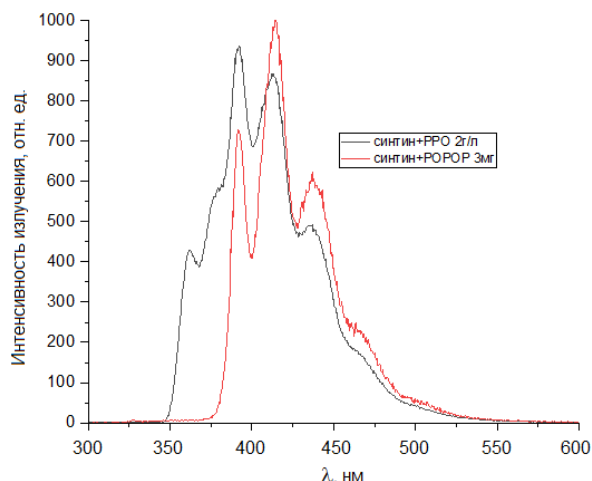


Рис. 7. Спектры излучения растворов синтин + РРО (2 г/л) и синтин+РОРОР (3 мг/л)

Используя найденные оптимальные значения концентрации РРО и РОРОР, приготовили сцинтиллятор состава: синтин + 2 г/л РРО + 3 мг/л РОРОР.

С целью определения согласованности спектров излучения сцинтиллятора с ФЭУ был проведен анализ.

На рис. 8 и приводится зависимость квантовой эффективности и фототока (потока электронов, излучаемый фотокатодом под действием оптического излучения), от длины волны падающего на фотокатод излучения для ФЭУ R5912 фирмы Hamamatsu, который применялся в подготовительных исследованиях в нейтринном эксперименте DAYBAU. Из рисунка видно, что максимум фототока приходится на область 420 нм.

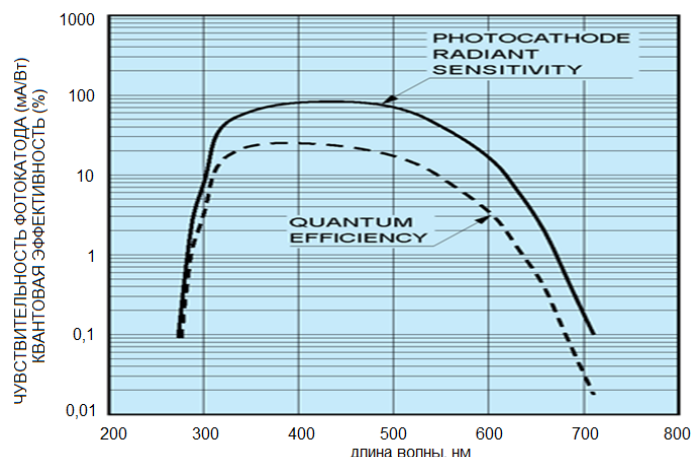


Рис. 8. Зависимость квантовой эффективности ФЭУ R5912

В то же время сцинтиллятор синтин, с добавкой РОРОР имеет сложный спектр излучения с тремя отчетливыми максимумами (рис. 9).

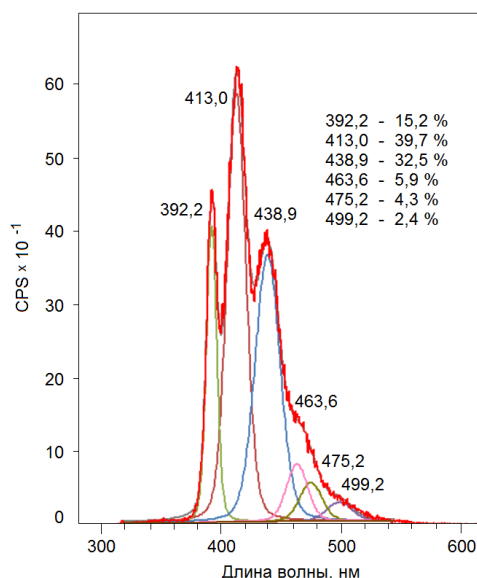


Рис. 9. Разложение спектра излучения готового сцинтиллятора (синтин + PPO 2г + РОРОР 3мг) на базовые линии

Как видно рис. 8 и 9 значительная часть, порядка 15 % интенсивного излучения не попадает в область высокой квантовой эффективности ФЭУ. Максимум пика с длиной волны 413 нм, порядка 40 % излучения все еще не совпадает с максимумом 420 нм чувствительности ФЭУ. Кроме того, не стоит забывать, что шифтеры имеют свою конверсионную эффективность обычно не превышающий 40 % и их добавки приводят к значительному падению общей эффективности. Добавка традиционного шифтера РОРОР в синтин не дает возможного максимального значения эффективности регистрации первичного излучения.

В связи с этим актуальным остается поиск новых шифтеров, спектр излучения которых лучше согласуется с квантовым выходом фотокатода ФЭУ.

В последнее время для оптимизации ЖС нейтринных детекторов вызывает большой интерес шифтер bis-MSB [10]. В свою очередь, в данной работе мы исследовали сцинтилляторы на основе синтина с добавками PPO и bis-MSB.

#### в) синтин + PPO+ bis-MSB

Были приготовлены растворы различных концентрации (см. табл. 3).

Для каждой концентрации спектр излучения определяли путем измерения сцинтилляционного света, возникающего при фотовозбуждении, аналогично с растворами PPO и РОРОР. На рис. 10 показаны спектры излучения разных композиций PPO и bis-MSB.

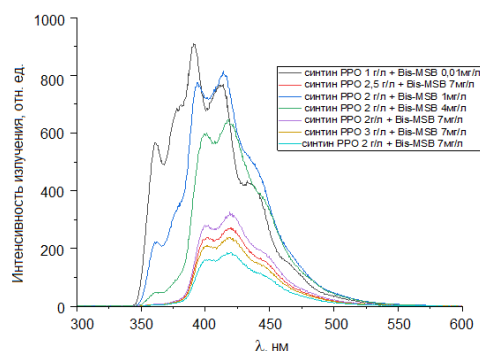


Рис. 10. Спектры излучения растворов синтин + PPO + bis-MSB для 7 композиций ЖС

Видно, что с увеличением концентрации bis-MSB спектр излучения трансформируется, интенсивность излучения падает, а состав длин волн смещается в «видимую» для ФЭУ область.

На рис. 11 приводится спектр фотолюминесценции раствора синтин + 2 г/л PPO + bis-MSB 4 мг/л, разложенный на составляющие с использованием функций Лоренца.

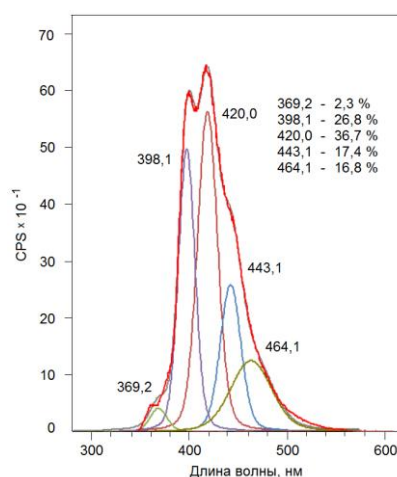


Рис. 11. Спектр излучения раствора синтин +2 г/л PPO + bis-MSB 4мг/л

Видно, что спектр излучения сцинтиллятора синтин + PPO 2 г/л + bis-MSB 4 мг/л разлагается на 5 базовых линий при этом доля линии 398 и 420 нм составила 64 % от всей площади и эти линии попадают в область максимальной чувствительности ФЭУ.

Очевидно, что спектр излучения данного состава сцинтиллятора существенно лучше согласуется с областью чувствительности ФЭУ, а его состав синтин +2 г/л PPO + bis-MSB 4мг/л является оптимальным.

Для количественной оценки эффективности перекачки спектра в область чувствительности ФЭУ проведен анализ спектров излучения с условной разбивкой на два разных интервала длин волн. Первая область от 300 до 550 нм, охватывающий весь диапазон спектра излучения сцинтиллятора. Вторая область от 395 до 550 нм соответствующий области высокой чувствительности ФЭУ. На рис. 12 приводится зависимость отношения площадей во втором интервале по отношению к первому в зависимости от концентрации шифтера bis-MSB.

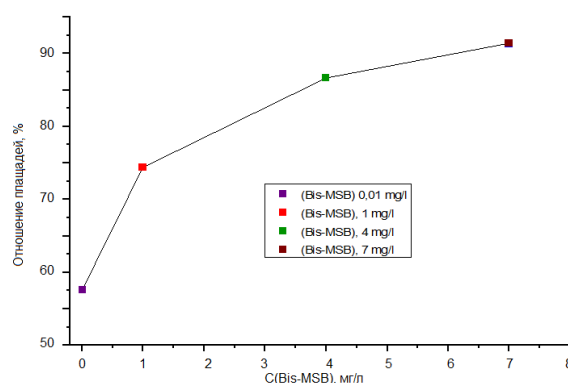


Рис. 12. Зависимость отношений площадей в пределах длин волн от 300 до 550 нм к диапазону чувствительности ФЭУ от 395 до 550 нм от концентрации bis-MSB (0,01–7 мг/л)

Видно, что с увеличением содержания bis-MSB от 1 мг/л до 4 мг/л увеличивается доля спектра максимально совпадающий со спектром максимальной чувствительности ФЭУ. Однако дальнейшее повышение концентрации bis-MSB не приводит к улучшению эффективности регистрации. Добавление большего количества шифтера только смещает доли фотонов от максимума излучения РРО к максимуму излучения bis-MSB при достижении ФЭУ, из-за переизлучения часть света теряется. Для синтина с высокой прозрачностью, свет, излучаемый РРО, может достигать ФЭУ, не поглощаясь шифтером. В связи с этим, для дальнейшей оптимизации сцинтиллятора на основе синтина, необходим расчет эффективности регистрации первичного света в объеме детектора пилотной установки.

Таким образом, в работе проведены исследования растворов синтина с сцинтиллятором РРО, шифтерами РОРОР и bis-MSB. Показано, что раствор на основе синтин + РРО (2г/л) + bis-MSB (4мг/л) является более эффективным сцинтиллятором. Такой состав жидкого органического сцинтиллятора может быть использован при создании крупногабаритных детекторов для исследования безнейтринного двойного бета распада Nd-150.

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

Авторы выражают благодарность и глубокую признательность канд. физ.-мат. наук, старшему научному сотруднику ИЯИ РАН ОЛВЭНА Игорю Романовичу Барабанову и канд. хим. наук, старшему научному сотруднику УНИИД КБГУ Анете Ахмедовне Кокоевой за советы, ценные замечания при работе и помощь в оформлении данной статьи.

### **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. Abe S., Ebihara T., Enomoto S., Furuno K., Gando Y., Ichimura K., Ikeda H., Inoue K., Kibe Y., Kishimoto Y., Koga M., Kozlov A., Minekawa Y., Mitsui T., Nakajima K., Nakajima K., Nakamura K., Nakamura M., Owada K., Shimizu I., Shimizu Y., Shirai J., Suekane F., Suzuki A., Takemoto Y., Tamae K., Terashima A., Watanabe H. Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 1, N 1. P. 52–61.
3. Arpesella C., Back H.O., Balata M., Bellini G.B. Direct Measurement of the Be-7 Solar Neutrino Flux with 192 Days of Borexino Data // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 39, N 12. P. 101.
4. 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. 51, N 7. P. 108.
5. Adam T., An F., An G., An Q., Anfimov N., Antonelli V., Baccolo G., Baldoncini M., Baussan E., Bellato M., Bezrukov L., Djurcic D.Z. JUNO Conceptual Design Report // Phys. Rev. Lett. 2015. V. 75, N 6. P. 328.
6. An F., An G., An Q., Baussan E., Bellato M. Neutrino Physics with JUNO // Physics. 2016. V. 192, № 1. P. 224.
7. Пшуков А.М., Умеров Ш.И. Жидкий сцинтиллятор на основе синтина. Препринт ИЯИ РАН 1442/2019. М., 2019. 14 с.
8. Пшуков А.М., Азизов И.К., Шериева Э.Х. Участие электронных уровней синтина в образовании центров люминесценции // Прикладная физика. 2019. № 3. С. 86–91.
9. Пшуков А.М. Сцинтилляторы на основе LiF, активированного окислами поливалентных металлов. Препринт ИЯИ РАН 1282/2011. М., 2011. 8 с.
10. Wurm M., Beacom J.F., Bezrukov L.B., Dasgupta B., Horiuchi S., Ciemniak C., VonFeilitzsch F., Göger-Neff M., Hellgartner D., Lewke T., Meindl Q., Möllenberg R., Oberauer L., Potzel W., Thorne F., Tippmann M., Winter J., Bick D., Hagner C., Lorenz S. Large-volume detector at the Baksan Neutrino Observatory for studies of natural neutrino fluxes for purposes of geo- and astrophysics // Astropart. Phys. 2012. V. 35. P. 685–697.