

ЖИДКИЙ СЦИНТИЛЛЯТОР НА ОСНОВЕ ЛИНЕЙНОГО АЛКИЛБЕНЗОЛА

*И. Б. Немченко^{а,б}, В. И. Бабин^а,
В. Б. Бруданин^а, О. И. Кочетов^а, В. В. Тимкин^а*

^а Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

^б Международный университет природы, общества и человека «Дубна», Дубна

Представлены результаты исследований по оптимизации состава нового жидкого сцинтиллятора (ЖС) на основе линейного алкилбензола. Измерены световыход, прозрачность, спектры поглощения и люминесценции. Для образцов ЖС, помещенных в тефлоновую цилиндрическую кювету размером 50×50 мм, энергетическое разрешение, измеренное для электронов с энергией 1 МэВ (^{207}Bi), составило 8 %.

The results of the optimization of the composition of the new liquid scintillator (LS) based on the linear alkylbenzene are presented in the paper. The light output, transparency, absorption and emission spectra have been measured. The energy resolution of the LS samples placed into the cylindrical cell (50×50 mm) measured for the 1 MeV (^{207}Bi) forms 8 %.

PACS: 29.40.Mc

ВВЕДЕНИЕ

Для эффективной регистрации нейтрино, имеющих малое сечение взаимодействия с веществом, необходимы детекторы большой массы с высоким содержанием водорода. В качестве рабочего вещества таких детекторов наибольшее распространение получили жидкие сцинтилляторы. Описание их свойств и областей применения можно найти в целом ряде обзоров и монографий, в частности, в [1–4]. Несомненными достоинствами этих сцинтилляционных материалов по сравнению с пластмассовыми и кристаллическими являются высокая прозрачность для собственного излучения, низкая цена и возможность создания на их основе детекторов большого объема и практически любой формы. ЖС обычно имеют низкий собственный радиоактивный фон и могут быть подвергнуты простым методам очистки для его дальнейшего снижения. Использование ЖС в крупномасштабных нейтринных детекторах предполагает выполнение ряда дополнительных условий, а именно:

- высокая температура вспышки;
- низкая токсичность;
- низкая коррозионная активность по отношению к полимерам акрилового ряда;
- доступность и низкая стоимость.

Одновременная реализация этих условий является непростой задачей, решать которую приходится уже на первом этапе разработки сцинтиллятора — этапе выбора растворителя (основного вещества). В связи с этим наше внимание привлек линейный алкилбензол (ЛАБ) — крупнотоннажный продукт нефтехимической промышленности, широко используемый для производства биоразлагающихся синтетических моющих средств.

Линейный алкилбензол — торговое наименование смеси нескольких моноалкилпроизводных бензола. Основные компоненты ЛАБ содержат от 10 до 13 атомов углерода в боковой цепи (табл. 1).

Около 80–85 % компонентов ЛАБ имеют структуру 1-фенилалканов и 15–20 % — 2-фенилалканов (рис. 1).

Таблица 1. Состав ЛАБ

Компоненты ЛАБ	Эмпирическая формула	Примерное содержание, массовая доля, %
Децилбензолы	$C_{16}H_{26}$	13
Ундецилбензолы	$C_{17}H_{28}$	27
Додецилбензолы	$C_{18}H_{30}$	35
Тридецилбензолы	$C_{19}H_{32}$	25

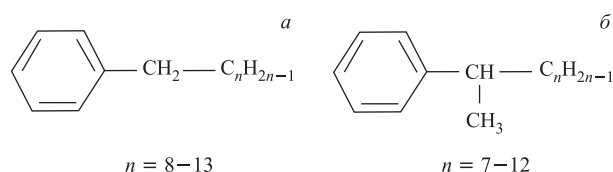


Рис. 1. Структурные формулы компонентов линейного алкилбензола: а) компоненты гомологического ряда 1-фенилалканов; б) компоненты гомологического ряда 2-фенилалканов

Таблица 2. Физико-химические характеристики ЛАБ

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

Ароматический характер ЛАБ позволяет ожидать наличия у него высокой конверсионной эффективности, обеспечивающей высокий световыход ЖС. Очень важно, что физико-химические свойства линейного алкилбензола (высокие температуры кипения и вспышки, высокое содержание водорода) полностью соответствуют требованиям, предъявляемым к детекторам с большой массой рабочего вещества, используемым в подземных лабораториях (табл. 2).

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для работы был использован линейный алкилбензол производства ООО «ПО Кириши-нефтеоргсинтез». Его очистку проводили на стеклянных хроматографических колонках, заполненных окисью алюминия, прокаленной при температуре 700 °С.

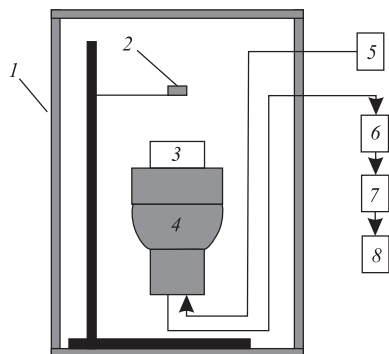


Рис. 2. Схема установки для измерения световых выходов и энергетического разрешения ЖС: 1 — светозащитный короб; 2 — радиоактивный источник; 3 — кювета с исследуемым ЖС; 4 — ФЭУ; 5 — источник высокого напряжения; 6 — предусилитель; 7 — усилитель; 8 — преобразователь сигнала

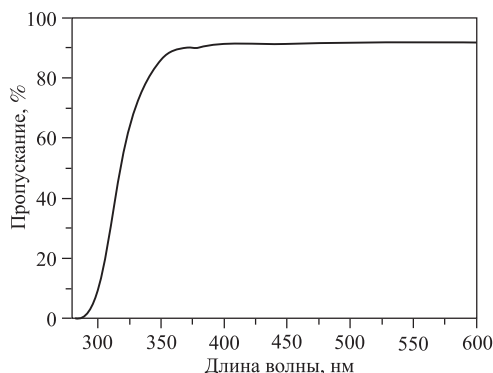


Рис. 3. Спектр пропускания фиолетового стекла

Спектры поглощения образцов ЛАБ и ЖС измеряли на спектрофотометре СФ-46 в кварцевых кюветах (10 см относительно 1 см).

Спектры излучения измерены на спектрофлуориметре СФЛ-1211А при длине волны возбуждения 275 нм.

Световых выход и энергетическое разрешение ЖС были измерены на установке, схема которой представлена на рис. 2.

ЖС помещали в тефлоновые цилиндрические кюветы размером 50 × 50 мм с выходными окнами из фиолетового стекла, прозрачного в ближней ультрафиолетовой и видимой областях спектра (рис. 3).

Кюветы устанавливались непосредственно на входное окно 5'' ФЭУ R 6594 производства НАМАМАТСУ. Оптический контакт достигался использованием смазки ВС-630. Для исследований оптимизации состава ЖС в качестве радиоактивного источника использовали ^{137}Cs , для измерения энергетического разрешения — ^{207}Bi .

2. ОЧИСТКА ЛИНЕЙНОГО АЛКИЛБЕНЗОЛА

Спектры поглощения неочищенного ЛАБ характеризуются наличием трех достаточно интенсивных полос поглощения в области 350–400 нм и трех полос люминесценции в области 380–450 нм (рис. 4). Эти полосы не характерны для моноалкилпроизводных бензола и, по нашему мнению, имеют «примесное» происхождение.

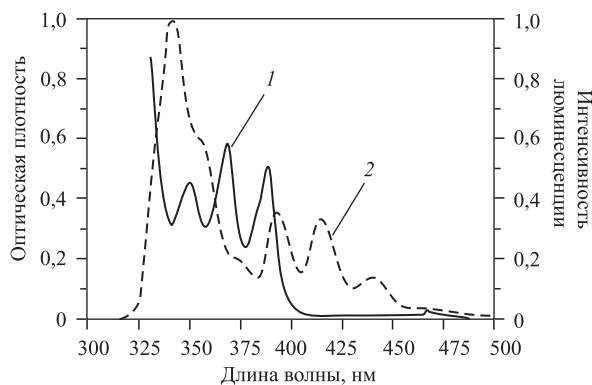


Рис. 4. Спектры поглощения и люминесценции неочищенного ЛАБ: 1 — поглощение; 2 — люминесценция

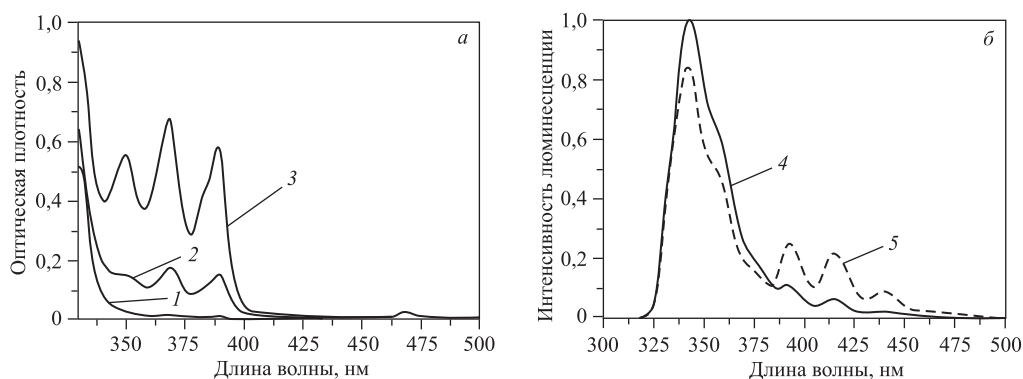


Рис. 5. Спектры поглощения (а) и люминесценции ЛАБ (б), очищенного в различных условиях: 1, 4 — прокаленная окись алюминия, колонка — $H : D = 10 : 1$; 2 — прокаленная окись алюминия, колонка — $H : D = 5 : 1$; 3, 5 — непрокаленная окись алюминия, колонка — $H : D = 10 : 1$

Очистку линейного алкилбензола проводили в стеклянных хроматографических колонках, заполненных окисью алюминия, с различными соотношениями высота (H): диаметр (D). Наилучшая прозрачность получена на свежeproкаленной окиси алюминия в колонке с соотношением $H : D = 10 : 1$ (рис. 5).

В результате очистки ЛАБ одновременно с уменьшением поглощения света наблюдается снижение интенсивности люминесценции в «примесной» области и увеличение ее в области основного максимума (342 нм, рис. 5).

3. ОПТИМИЗАЦИЯ СОСТАВА ЖС

Оптимизация состава нового ЖС проводилась на основе измерения световых выходов как функции концентрации первичной и вторичной сцинтилляционных добавок. При определении оптимальных концентраций сцинтилляционных добавок световой выход нормировали

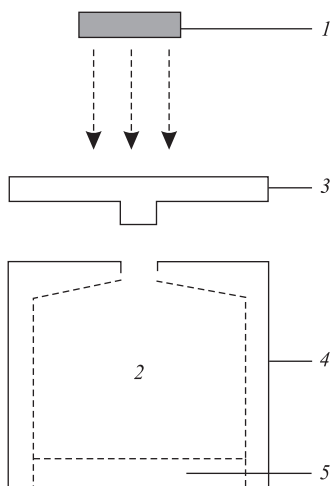


Рис. 6. Схема измерения световыхода жидких сцинтилляторов на основе ЛАБ: 1 — радиоактивный источник (^{137}Cs); 2 — образец сцинтиллятора; 3 — крышка кюветы; 4 — кювета; 5 — фиолетовое стекло

на единицу. Для измерений использовали кювету с крышкой, изготовленные из тефлона (рис. 6). Радиоактивный источник — ^{137}Cs .

Наиболее распространенным в качестве первичной добавки для жидких сцинтилляторов является 2,5-дифенилоксазол (РРО) (рис. 7). Это вещество хорошо растворяется во многих органических растворителях, доступно и имеет относительно невысокую стоимость.

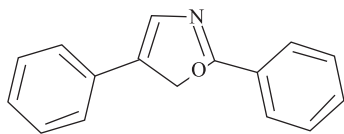


Рис. 7. Структурная формула 2,5-дифенилоксазола

Варьированием концентрации РРО в двухкомпонентных системах на основе ЛАБ установлено, что оптимальное ее значение достигается уже при массовой доле 0,5 % (рис. 8).

В качестве кандидатов на использование вторичными сцинтилляционными добавками были выбраны три соединения: 1,4-бис(5-фенил-2-оксазолил)бензол, хорошо известный как РОРОР, его гомолог 1,4-бис(4-метил-5-фенил-2-оксазолил)бензол (диметил-РОРОР) и 1,4-бис(2-метилстирил)бензол (bis-MSB) (рис. 9).

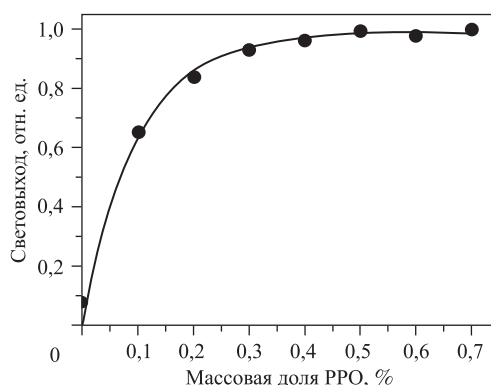


Рис. 8. Зависимость световыхода раствора РРО в ЛАБ от массовой доли РРО

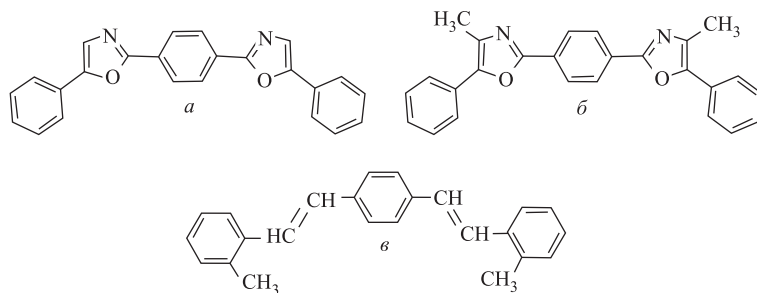


Рис. 9. Структурные формулы РОРОР (а), диметил-РОРОР (б) и bis-MSB (в)

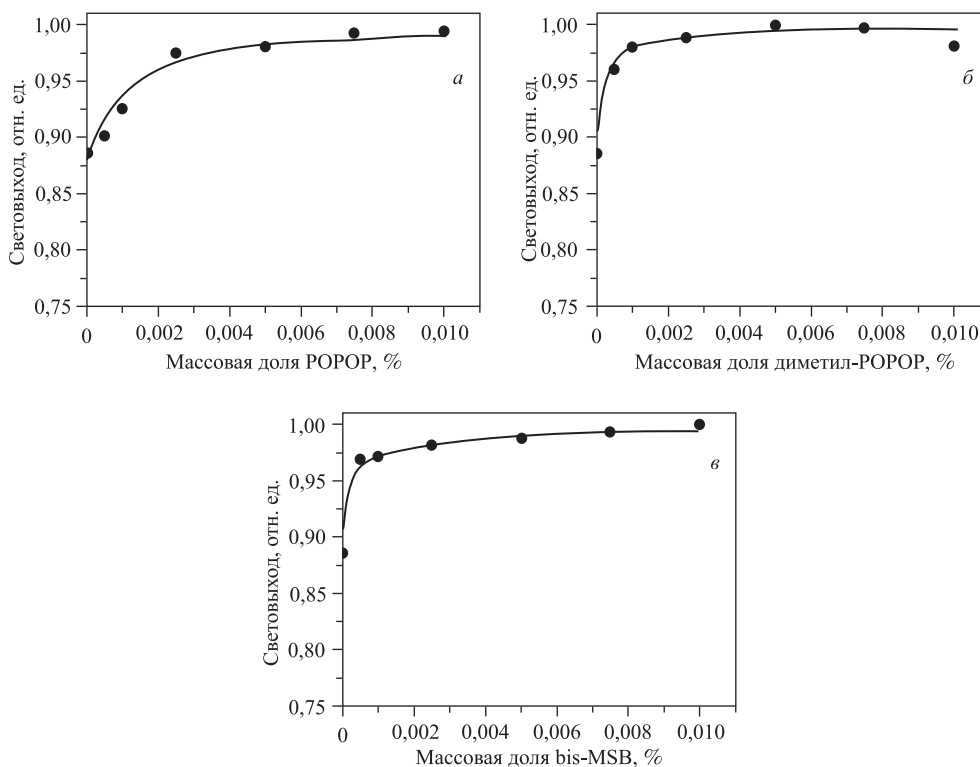


Рис. 10. Зависимость световыхода сцинтиллятора на основе ЛАБ, содержащего 0,5 % PPO, от массовой доли РОРОР, диметил-РОРОР и bis-MSB

Для определения оптимальных концентраций этих веществ в ЖС исследованы трехкомпонентные растворы на основе ЛАБ, содержащие постоянную концентрацию PPO (0,5 %) и переменную концентрацию РОРОР или диметил-РОРОР, или bis-MSB. Установлено, что для трех исследованных люминофоров максимальное значение световыхода достигается уже при массовой доле 0,0025 % (рис. 10).

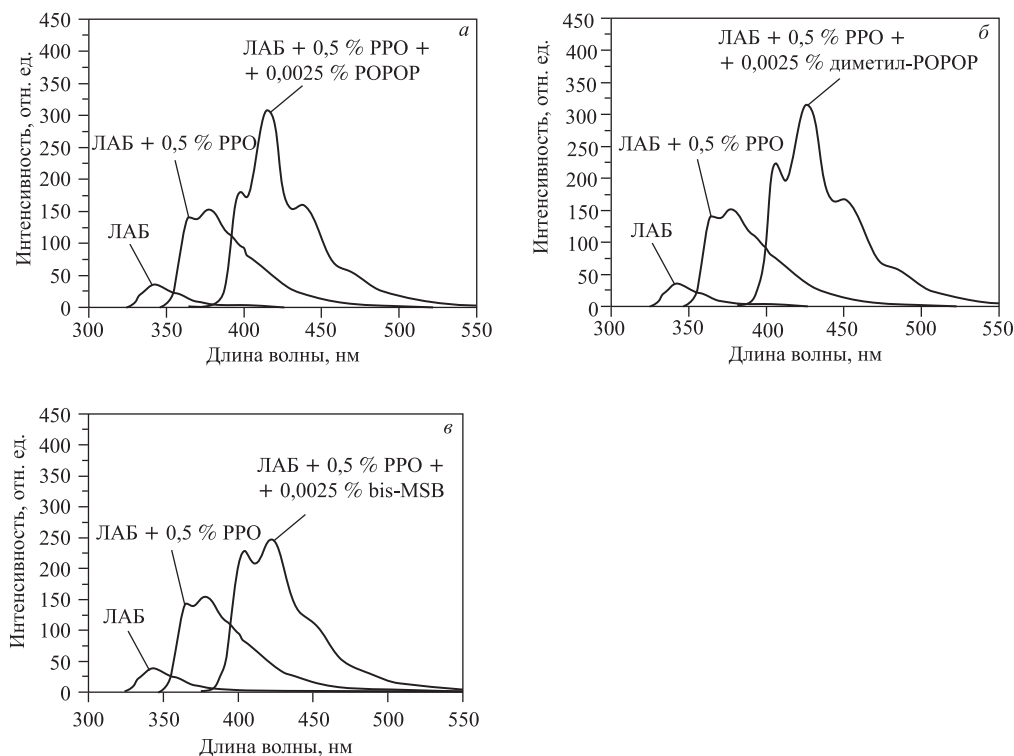


Рис. 11. Спектры люминесценции сцинтилляционных композиций на основе ЛАБ

Дополнительное подтверждение правильности подбора состава сцинтилляционных композиций на основе ЛАБ получено при исследовании спектров их люминесценции (рис. 11). В спектрах излучения ЖС отсутствуют полосы излучения растворителя (ЛАБ) и первичной добавки (РРО), что является надежным свидетельством эффективного и полного переноса энергии.

Для окончательного выбора состава ЖС была измерена прозрачность (длина ослабления света в e раз) трех сцинтилляционных композиций:

- ЛАБ + 0,5 % РРО + 0,0025 % РОРОР;
- ЛАБ + 0,5 % РРО + 0,0025 % диметил-РОРОР;
- ЛАБ + 0,5 % РРО + 0,0025 % bis-MSB.

Длина ослабления (табл. 3) получена обработкой значений оптической плотности, измеренной при 430 нм, по формуле

$$\Lambda = \frac{x}{A} \lg e = 0,4343 \frac{x}{A},$$

где Λ — длина ослабления света в e раз; x — оптическая длина пути (9 см); A — оптическая плотность при 430 нм.

Таблица 3. Прозрачность ЖС на основе ЛАБ

Состав сцинтиллятора		Длина ослабления света в e раз, м
Первичная добавка, % PPO	Вторичная добавка, %	
0,5	0,0025 РОРОР	9,8
0,5	0,0025 диметил-РОРОР	3,0
0,5	0,0025 bis-MSB	9,8

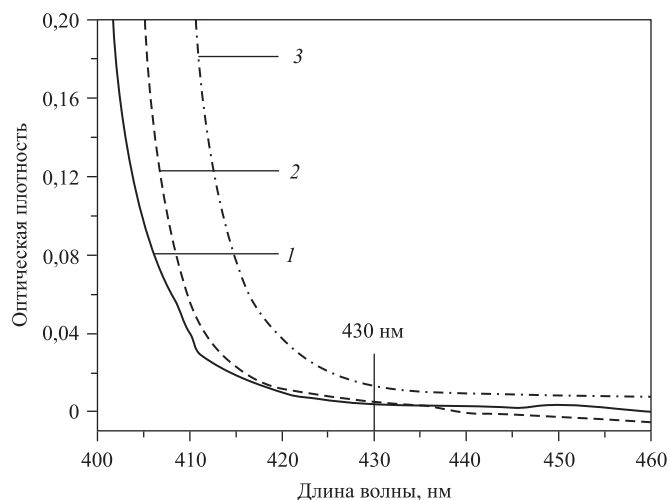


Рис. 12. Спектры поглощения жидких сцинтилляторов на основе ЛАБ: 1 — ЖС, содержащий РОРОР; 2 — ЖС, содержащий bis-MSB; 3 — ЖС, содержащий диметил-РОРОР

Измерения проводились в кварцевой кювете длиной 10 см относительно кварцевой кюветы сравнения длиной 1 см, заполненной сцинтиллятором того же состава (рис. 12).

4. ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЕ РАЗРЕШЕНИЕ ЖС НА ОСНОВЕ ЛИНЕЙНОГО АЛКИЛБЕНЗОЛА

Перспективы использования жидкого сцинтиллятора на основе ЛАБ в крупномасштабных физических экспериментах предполагают знание его спектрометрических характеристик. Энергетическое разрешение измеряли по пику конверсионных электронов ^{207}Bi с энергией 976 кэВ. Спектр конверсионных электронов ^{207}Bi (рис. 13) получали как разность между спектрами, измеренными без использования и с использованием алюминиевого фильтра толщиной 5 мм, установленного между источником излучения и кюветой с ЖС (рис. 14).

Полученные результаты помещены в итоговую табл. 4.

Все три сцинтилляционные композиции демонстрируют практически одинаковые значения световых выходов и энергетического разрешения. Однако сцинтиллятор, содержащий в качестве вторичной добавки диметил-РОРОР, оказался существенно менее прозрачным.

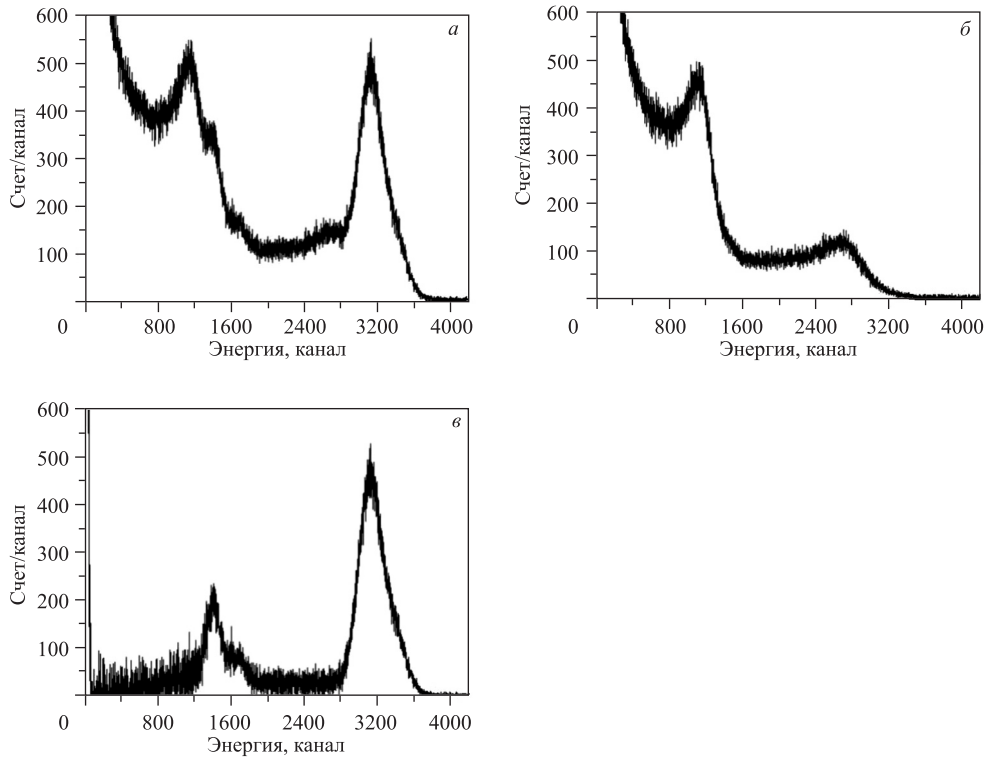


Рис. 13. Примеры спектров, полученных при измерении энергетического разрешения ЖС на основе ЛАБ: а) $e_k + \gamma$ -спектр (без алюминиевого фильтра); б) γ -спектр (с алюминиевым фильтром); в) e_k -спектр (разностный спектр)

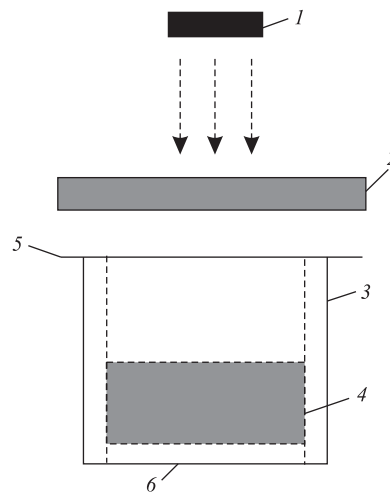


Рис. 14. Схема измерения энергетического разрешения: 1 — источник излучения (^{207}Bi); 2 — алюминиевый фильтр; 3 — тefлоновая кювета; 4 — исследуемый ЖС; 5 — майлар; 6 — фиолетовое стекло

Таблица 4. Сцинтилляционные свойства ЖС на основе ЛАБ

Состав сцинтиллятора		Световыход*	Длина ослабления света в e раз, м	Энергетическое разрешение, %
Первичная добавка, % PPO	Вторичная добавка, %			
0,5	0,0025 РОРОР	1,02	9,8	7,95
0,5	0,0025 диметил-РОРОР	1,00	3,0	7,96
0,5	0,0025 bis-MSB	1,02	9,8	7,92

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

Таким образом, наиболее подходящими для использования являются композиции на основе РОРОР и bis-MSB.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Оптимизирован состав новых жидких сцинтилляторов на основе линейного алкилбензола. Полученные сцинтилляционные материалы обладают комплексом свойств, позволяющих рекомендовать их к использованию в крупномасштабных физических экспериментах по регистрации нейтрино.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, гранты № 06-02-39010-ГФЕН_а и № 10-02-91159-ГФЕН_а.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Brooks F. D.* Development of Organic Scintillators // Nucl. Instr. Meth. 1979. V. 162. P. 477–505.
2. *Birks J. B.* The Theory and Practice of Scintillations Counting. Oxford: Pergamon Press, 1964. 662 p.
3. *Harvey J. A., Hill N. W.* Scintillation Detectors for Neutron Physics Research // Nucl. Instr. Meth. 1979. V. 162. P. 507–529.
4. *Акимов Ю. К.* Детекторы ядерных излучений на основе жидких органических сцинтилляторов // ПТЭ. 1996. № 3. С. 3–39.

Получено 22 июня 2010 г.