

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО
ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 539.1.074.9+539.165.8+546.24

ТЕЛЛУРСОДЕРЖАЩИЕ ПЛАСТМАССОВЫЕ СЦИНТИЛЛЯТОРЫ

© 2023 г. И. А. Суслов^{a,b,*}, И. Б. Немченко^{a,b}, А. А. Клименко^{a,b},

А. Д. Быстрыков^{a,b}, И. И. Камнев^a

^aОбъединенный институт ядерных исследований

Россия, 141980, Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, д.6

^bГосударственный университет «Дубна»

Россия, 14198, Дубна, Московская обл., ул. Университетская, д.19

**e-mail: ivsuslov@jinr.ru*

Поступила в редакцию 20.03.2023 г.

После доработки 20.03.2023 г.

Принята к публикации 20.06.2023 г.

Представлены первые результаты разработки на основе полистирола, полиметилметакрилата и их сополимеров не известных ранее теллурсодержащих пластмассовых сцинтилляторов для детекторов по поиску и исследованию безнейтринного двойного бета-распада. В качестве теллурсодержащих добавок использованы комплексное соединение оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты и ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура. Описаны условия получения образцов, охарактеризован их световыход и прозрачность.

1. ВВЕДЕНИЕ

Обнаружение безнейтринного двойного бета-распада ($0\nu\beta\beta$) станет надежным доказательством майорановской природы массы нейтрино, а также позволит построить ее абсолютную шкалу и иерархию [1]. Более того, открытие $0\nu\beta\beta$ поможет в объяснении барионной асимметрии Вселенной [2].

Попытки наблюдения этого редкого процесса связаны с использованием в качестве источников распада ряда изотопов: ^{76}Ge [3], ^{82}Se [4], ^{100}Mo [5, 6], ^{130}Te [7, 8], ^{136}Xe [9, 10] и других. Одним из наиболее вероятных кандидатов на обнаружение $0\nu\beta\beta$ является ^{130}Te [11], что связано с некоторыми его особенностями: высоким содержанием в естественной смеси

изотопов (34%) и достаточно большим периодом полураспада двухнейтринной моды (7.9×10^{20} лет) (для Ge, Xe более 10^{21} лет). Один из перспективных методов поиска $0\nu\beta\beta$ – сцинтилляционный. Возможность использования органических сцинтилляторов в качестве основы для детекторов по поиску безнейтринного двойного β -распада, заключается в допировании сцинтиллятора соединениями $\beta\beta$ -изотопов. Важнейшей проблемой разработки органических сцинтилляторов для эффективного поиска $0\nu\beta\beta$ является подбор соответствующих элементосодержащих добавок, позволяющих вводить большое количество ядер $\beta\beta$ -изотопа с наименьшей деградацией оптических и сцинтилляционных свойств и обеспечивающих безопасность персонала, оборудования и окружающей среды.

В коллаборации *SNO+* [12, 13] в крупномасштабном эксперименте по поиску двойного безнейтринного β -распада разработан и предложен к использованию теллурсодержащий жидкий сцинтиллятор (Те-ЖС) на основе линейного алкилбензола с массовой долей теллура 0.5–10%. Наилучший световыход для образцов с массовым содержанием теллура 1% составляет приблизительно 65% относительно жидкого сцинтиллятора (ЖС) того же состава, не содержащего теллур (стандартный образец). В качестве теллурсодержащей добавки используется продукт взаимодействия теллуровой кислоты с 1,2-бутандиолом, который представляет собой жидкую смесь мономерных и димерных соединений. Для увеличения световыхода сцинтиллятора и повышения устойчивости теллурсодержащей добавки к гидролизу используется N,N-диметилдодециламин.

Практически аналогичный подход предложен авторами [14]. Они разработали Те-ЖС на основе линейного алкилбензола с массовым содержанием теллура 0.4 – 0.6%. Световыход сцинтиллятора с массовым содержанием теллура 0.5% в форме продукта взаимодействия теллуровой кислоты, 1,2-бутандиола и N,N-диметилдодециламина составляет 67% относительно стандартного образца.

К недостаткам описанных сцинтилляторов относится необходимость использования аминов, что приводит к удорожанию и уменьшению доступности материала, невысокий световыход [12, 13] и невысокая концентрация теллура [14].

Ранее нами [15, 16] были предложены новые теллурсодержащие жидкие сцинтилляторы на основе линейного алкилбензола и его смесей с диизопропилнафталином. В [15] описаны Те-ЖС, содержащие дикарбоксилаты дифенилтеллура: ди-2-этилгексаноат, диизовалерат и дипивалоат. Световыход сцинтиллятора (массовая доля металла 1%) в форме ди-2-этилгексаноата дифенилтеллура – 57% относительно стандартного образца. В

последующей работе [16] в качестве теллурсодержащей добавки использовано комплексное соединение оксида дифенилтеллура с ди-(2-этилгексил)фосфорной кислотой. Это привело к получению Те-ЖС с уникально высоким световыходом: 88% (массовая доля теллура 1%) относительно стандартного образца.

Альтернативой детекторам на основе ЖС могут служить детекторы на основе пластмассовых сцинтилляторов (ПС). Однако опыт получения ПС, содержащих $\beta\beta$ -изотопы весьма ограничен.

В нашей работе [17] описан кадмийсодержащий пластмассовый сцинтиллятор на основе полиметилметакрилата (ПММА), содержащего некоторое количество гексаметилтриамида фосфорной кислоты (ГМФТА). Максимальное массовое содержание кадмия составляет 2%. В качестве кадмийсодержащей добавки использован хлорид кадмия. Также на основе ПММА мы разработали неодимсодержащий ПС [18] с максимальной массовой долей металла 3%. В качестве элементосодержащих добавок использовались комплексные соединения нитрата или хлорида неодима с ГМФТА.

Основной недостаток обоих материалов – низкий световыход из-за неактивной в сцинтилляционном отношении природы полиметилметакрилата.

Среди описанных в литературе пластмассовых сцинтилляторов, содержащих $\beta\beta$ -изотопы, известно большое количество примеров оловосодержащих материалов (Sn-ПС). Этих примеров так много, что не имеет особого смысла перечислять их все. Рассмотрим лишь некоторые из последних [19, 20].

В работе [19] описан Sn-ПС на основе полистирола (ПСт) с добавкой тетрафенилолова. Показана возможность получения образцов с массовым содержанием металла до 17% со световыходом 32% относительно антрацена. В статье [20] также описаны Sn-ПС на основе полистирола. Используются различные оловосодержащие добавки – тетраметилолово, тетрабутилолово, тетраэтилолово, тетраэтилфенилолово, метакрилат трибутилолово и др. Наилучшие результаты достигнуты с метакрилатом трибутилолова, световыход составил 83%–37% (относительно EJ-200) при массовом содержании металла 3–15% соответственно.

Теллурсодержащие пластмассовые сцинтилляторы до сих пор не получены.

Целью настоящей работы стало исследование возможности получения теллурсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для получения сцинтилляторов использовались:

- мономеры – стирол и метилметакрилат, осушенные и очищенные перегонкой (стирол – под вакуумом, метилметакрилат – при атмосферном давлении),
- вторичный растворитель – нафталин;
- сцинтилляционная добавка – 2,5-дифенилоксазол (РРО),
- сместитель спектра – 1,4-бис(5-фенилоксазол-2-ил)бензол (РОРОР),
- теллурсодержащие добавки – ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура и комплексное соединение оксида дифенилтеллура с ди-2-этилгексилфосфорной кислотой,
- инициатор полимеризации – азобисизобутиронитрил (АИБН).

Получение ди-2-этилгексаноата дифенилтеллура описано в работе [15]. Комплексное соединение оксида дифенилтеллура с ди-2-этилгексилфосфорной кислотой получено взаимодействием реагентов в соотношении 1:1 в гексане с последующей перекристаллизацией из этого же растворителя. Состав теллурсодержащих добавок подтвержден элементным анализом.

Образцы сцинтилляторов изготавливались путем растворения компонентов в свежеприготовленных мономерах (стирол, метилметакрилат) или их смесях с последующей полимеризацией в стеклянных ампулах. Особенности использованных режимов полимеризации представлены в табл. 1.

Табл. 1

Из полученных заготовок изготавливались образцы цилиндрической формы с высотой 10 мм, диаметром 25 мм. Основания цилиндров полированные, образующие – шлифованные. Спектры пропускания образцов в видимой области определялись при помощи спектрофотометра UNICO UV 2804. Световыход измерялся относительно стандартного образца той же геометрии на основе полистирола, полученного высокотемпературной полимеризацией в вакуумированной стеклянной ампуле в отсутствие инициатора и содержащего 1.5% паратерфенила (PPP) и 0.015% РОРОР. Исследуемый образец соединялся с фотоэлектронным умножителем R6091 (HAMAMATSU) при помощи оптической смазки (BC-630 optical grease, Saint-Gobain crystals). В качестве радиоактивного источника использовался ^{207}Bi . Применялась методика разностных измерений. Первое измерение проводилось при непосредственном облучении образца (получался $\gamma+\beta$ -спектр). Во втором измерении между источником и образцом помещалась тефлоновая пластина толщиной 3 мм

(получался γ -спектр). Геометрия и время обоих измерений одинаковы. Для определения световыхода анализировался β -спектр, полученный вычитанием γ -спектра из $\gamma+\beta$ -спектра.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Основным условием успеха в получении теллурсодержащих пластмассовых сцинтилляторов являлся подбор теллурсодержащих добавок, соответствующих следующим требованиям:

- достаточная растворимость в стироле, метилметакрилате, их полимерах и сополимерах;
- химическая устойчивость в условиях радикальной полимеризации выбранного мономера (смеси мономеров).

Первому условию, как было установлено в предварительных экспериментах, соответствуют вещества, использованные нами для получения жидких теллурсодержащих сцинтилляторов: ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура и комплексное соединение оксида дифенилтеллура с ди-(2-этилгексил)фосфорной кислотой [15,16].

Таким образом, второе требование определило основное направление исследований – подбор полимерной основы и оптимального для нее температурного режима полимеризации. За время исследования было проведено более двух десятков полимеризаций, которые отличались друг от друга составом полимеризуемых композиций и температурным режимом. На рис. 1 представлена фотография некоторых из полученных образцов, демонстрирующая временной прогресс результатов исследования. Первые образцы получались непрозрачными или окрашенными, а образцы, полученные во второй половине периода проведения работ, внешне ничем не отличаются от обычных пластмассовых сцинтилляторов.

Рис. 1

В табл. 2 собраны характеристики некоторых образцов Те-ПС с концентрацией теллура 1%.

Табл.2

Образцы, содержащие в качестве теллурсодержащей добавки ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура на основе полистирола (образцы № 1, 2), демонстрируют неплохой световыход (около 45% относительно стандартного образца), однако имеют пониженную прозрачность и слегка желтоваты на вид независимо от режима полимеризации. Использование в качестве основы полиметилметакрилата с добавкой нафталина (образец № 3) позволяет достичь лучшей прозрачности и избавиться от желтизны, но значительно снижает световыход.

Более прозрачные сцинтилляторы с лучшим световыходом получены при использовании в качестве теллурсодержащей добавки комплексного соединения оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты (образцы № 4 – 7). Образец № 4 на основе ПММА имеет схожие характеристики с аналогичным образцом № 3. Использование сополимеров полиметилметакрилата и полистирола (№ 5, 6) позволяет достичь некоторого улучшения характеристик. При этом увеличение содержания стирола в смеси и мономеров (образец № 6 по сравнению с образцом № 5)) ожидаемо приводит к увеличению световыхода. Однако использованный температурный режим, очевидно, не обеспечил полного превращения мономера в полимер, следствием чего стало образование легкого «серебрения» на поверхности образца № 6.

Наиболее качественным является образец № 7. Он бесцветен, у него наилучший световыход – $59\pm 2\%$ относительно стандартного образца и отсутствует «серебрение» поверхности.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены образцы теллурсодержащих пластмассовых сцинтилляторов. Для этого предложено использование ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура и комплексного соединения оксида дифенилтеллура с ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты в качестве теллурсодержащих добавок. Показано, что применение в качестве теллурсодержащей добавки комплексного соединения оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты в сочетании с оптимизированными условиям полимеризации приводит к получению Те-ПС лучшего качества.

Световыход такого сцинтиллятора на основе полистирола с массовой долей металла 1% составляет $59\pm 2\%$ относительно стандартного образца пластмассового сцинтиллятора на основе полистирола, не содержащего теллур.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа поддержана грантом на проведение фундаментальных научных исследований и поисковых научных исследований малыми отдельными научными группами Российского научного фонда (проект № 23-22-00214).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bilenky S.M., Petcov S.T.* // *Rev. Mod. Phys.* 1987. V. 59. P. 671.
<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.59.671>
2. *Tanabashi M., Hagiwara K., Hikasa K., Nakamura K., Sumino Y., Takahashi F., Tanaka J., Agashe K., Aielli G., Amsler C, Antonelli M., Asner D., Baer H., Banerjee S., Barnett R. et al.* // *Phys. Rev. D.* 2018. V. 98. P. 251. <https://doi.org/10.1103/PhysRevD.98.030001>
3. *Agostini M. et al. (GERDA Collab.)* // *Phys. Rev. Lett.* 2020. V. 125. P. 252502.
<https://doi.org/10.1126/science.aav8613>
4. *Azzolini O. et al. (CUPID Collab.)* // *Phys. Rev. Lett.* 2019. V. 123. P. 032501.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.032501>
5. *Armengaud E. et al. (CUPID-Mo Collab.)*. // *Eur. Phys. J. C.* 2020. V. 80. P. 44.
<https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-019-7578-6>
6. *Alenkov V. et al. (AMoRE Collab.)* // *Eur. Phys. J. C.* 2019. V. 79. P. 791.
<https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-019-7279-1>
7. *Albanese V. et al. (SNO+ Collab.)* // *JINST.* 2021. V. 16. P. P08059.
<https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/08/p08059>
8. *Adams D.Q. et al. (CUORE Collab.)*. // *Phys. Rev. Lett.* 2020. V. 124. P. 122501.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.122501>
9. *Abe S. et al. (KamLAND-Zen Collab.)* // *Phys. Rev. Lett.* 2023. V. 130. P. 051801.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.130>.
10. *Albert J.B. et al. (EXO-200 Collab.)* // *Phys. Rev. Lett.* 2018. V. 120. P. 072701.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.072701>
11. *Biller S.D.* // *Phys. Rev. D.* 2013. V. 87. P. 071301.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevD.87.071301>
12. *Biller S., Manecki S.* // *J. Phys. Conf. Ser.* 2017. V. 888. P. 12084. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/888/1/012084>
13. *Auty D.J. et al. (SNO+ Collab.)* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2023. V. 1051. P. 168204. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168204>
14. *Ding Y.Y., Liu M.C., Wen L.J., Li Y., Li G., Zhang Z.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2023. V. 1049. P. 168111. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168111>

15. *Suslov I.A., Nemchenok I.B., Shitov Yu.A., Kazartsev S.V., Belov V.V., Bystryakov A.D.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2022. V. 1040. P. 167131. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167131><https://doi.org/10.3103/S1062873812110160>
16. *Суслов И.А., Немченко И.Б., Быстряков А.Д.* // Письма в ЭЧАЯ. 2023. Т. 20. № 5. С. 250.
17. *Nemchenok I.B., Shurenkova A.A., Brudanin V.B., Gundorin N.A., Timkin V.V.* // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2012. V. 76. № 11. P. 1187. <https://doi.org/10.3103/S1062873812110160>
18. *Немченко И.Б.* Разработка и исследование пластмассовых и жидких сцинтилляторов для детекторов экспериментов в области нейтринной физики: Дисс. ... докт. технических наук. Дубна: ОИЯИ, 2018. 220 с.
19. *Britvich G.I., Vasil'chenko V.G., Lapshin V.G., Solov'ev A.S.* // Instrum. Exp. Tech. 2000. V. 43. № 1. P. 36. <https://doi.org/10.1007/BF02758995>

ТАБЛИЦЫ

Таблица 1. Условия получения образцов Те-ПС

| Номер режима | Температурные условия | Наличие инициатора | Прочее |
|--------------|--|--------------------|-------------------------------------|
| 1 | 50 °С – 90 ч, 80 °С – 4 ч, самопроизвольное охлаждение | да | в токе аргона |
| 2 | 60 °С – 80 ч, самопроизвольное охлаждение | да | в токе аргона |
| 3 | 60 °С – 24 ч, 70 °С – 56 ч, 80 °С – 4 ч, самопроизвольное охлаждение | да | в токе аргона |
| 4 | 90 °С – 10 ч, 105 °С – 5 ч, 140 °С – 62 ч, охлаждение со скоростью 1–2 °С/ч – 24 ч | нет | запаянные ампулы, откачан воздух |

Таблица 2. Характеристики некоторых образцов Те-ПС с концентрацией теллура 1%

| № | Образец, состав, режим полимеризации | Световыход ^а , % | $T_{420\text{нм}} \pm 1.5, \%$ | Примечание |
|--|--|-----------------------------|--------------------------------|---|
| Теллурсодержащая добавка – ди-2-этилгексаноат дифенилтеллура | | | | |
| 1 | ПСт ^б , 2% РРО, 0.015% РОРОР, режим 4 | 44 ± 2 | 78.7 | Прозрачные, бесцветные |
| 2 | ПСт ^б , 2% РРО, 0.015% РОРОР, режим 3 | 46 ± 2 | 74.3 | |
| 3 | ПММА ^в , 1.5% РРО, 0.015% РОРОР, 15% нафталин, режим 1 | 31 ± 2 | 81.0 | Прозрачный, бесцветный |
| Теллурсодержащая добавка – комплексное соединение оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты | | | | |
| 4 | ПММА ^е , 1.5% РРО, 0.015% РОРОР, 15% нафталин, режим 1 | 33 ± 2 | 81.1 | Прозрачный, бесцветный |
| 5 | ПСт ^б +ПММА ^в (1:1), 1.5% РРО, 0.015% РОРОР, режим 2 | 33 ± 2 | 83.3 | Прозрачный, бесцветный |
| 6 | ПСт ^б +ПММА ^е (0.7:0.3), 1.5% РРО, 0.015% РОРОР, режим 2 | 41 ± 2 | 82.5 | Прозрачный, легкое «серебрение» со временем |
| 7 | ПСт ^б , 1.5% РРО, 0.015% РОРОР, режим 3 | 59 ± 2 | 71.5 | Прозрачный, бесцветный |

Примечание: а – относительно стандартного образца ПС на основе полистирола состава: РРР – 1.5%, РОРОР – 0.015%; б – полистирол; в – полиметилметакрилат; г – коэффициент пропускания на длине волны 420 нм.

ПОДПИСИ К РИСУНКАМ

Рис. 1. Фотография некоторых образцов теллурсодержащих пластмассовых сцинтилляторов.

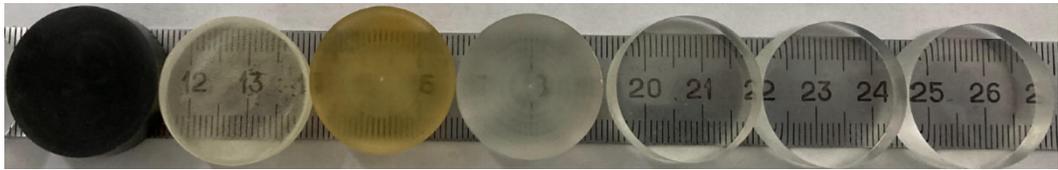


Рис. 1.

Для связи с авторами:

Суслов Иван Андреевич

Е-mail: ivsuslov@jinr.ru

Тел.: 8-915-418-22-25 (моб.)

Немченко Игорь Борисович

Е-mail: nemch@jinr.ru

Тел.: 8-910-419-53-72 (моб.)

Клименко Александр Адольфович

Е-mail: klimenko@nusun.jinr.ru

Тел.: 8-903-514-43-34 (моб.)

Быстряков Артем Дмитриевич

Е-mail: bystryakov-a@bk.ru

Тел.: 8-915-418-70-60 (моб.)

Камнев Илья Ильич

Е-mail: potre@mail.ru

Тел.: 8-926-340-90-28 (моб.)

В помощь переводчику:

Tellurium-loaded plastic scintillators

I. Suslov, I. Nemchenok, A. Klimenko, A. Bystryakov, I. Kamnev

The first results of the development of previously unknown tellurium-loaded plastic scintillators based on polystyrene, poly(methyl methacrylate) and their copolymers for detectors for the search and study of neutrinoless double beta-decay are reported herein. A complex compound of diphenyltellurium oxide and di-(2-ethylhexyl)phosphoric acid and diphenyltellurium di-2-ethylhexanoate were used as tellurium-containing additives. The conditions for obtaining samples have been described, their light output and transparency has been characterized.