

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P13-2000-195

В.Б.Бруданин, О.И.Кочетов, И.Б.Немченко,
А.А.Смольников*

БОРОСОДЕРЖАЩИЙ ПЛАСТМАССОВЫЙ
СЦИНТИЛЛЯТОР НА ОСНОВЕ ПОЛИСТИРОЛА

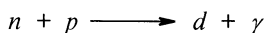
Направлено в журнал «Известия РАН, серия физическая»

*Институт ядерных исследований РАН, Москва

2000

1. Введение

Состав пластмассовых и жидких сцинтилляторов, характеризующийся высоким содержанием углерода и водорода, позволяет использовать эти материалы в качестве нейтронных детекторов. При этом регистрация нейтронов с энергией от 100 кэВ до 10 МэВ происходит в результате их упругого рассеяния на ядрах водорода с образованием протонов отдачи. В том случае, если энергия нейтрона превышает 10 МэВ, возникает новый канал реакции — взаимодействие нейтрона с ядрами углерода, сечение которого сравнимо с сечением для прорассеяния. Регистрация нейтронов с энергией ниже 100 кэВ состоит в их замедлении до 0,5 кэВ с последующим взаимодействием с протонами:



Увеличение эффективности регистрации тепловых нейтронов с энергией менее 0,5 кэВ возможно путем введения в сцинтилляционную композицию изотопов, ядра которых имеют высокое сечение захвата этих частиц (табл. 1).

Таблица 1. Характеристики захвата тепловых нейтронов ядрами некоторых изотопов

Изотоп	Содержание в естественной смеси	Реакция	Сечение захвата, барн	Регистрируемые частицы
^{235}U	0,007	деление	$5,8 \cdot 10^2$	продукты деления: $\cong 200$ МэВ
^6Li	0,075	(n, α)	$9,4 \cdot 10^2$	α : 2,05 МэВ $+ {}^3\text{H}$: 2,73 МэВ
^{10}B	0,196	(n, α)	$3,8 \cdot 10^3$	α : 1,47 МэВ $+ {}^7\text{Li}$: 0,84 МэВ $+ \gamma$: 0,48 МэВ
^3He	10^{-4}	(n, p)	$5,3 \cdot 10^3$	p : 0,574 МэВ $+ {}^3\text{H}$: 0,191 МэВ
^{113}Cd	0,12	(n, γ)	$2,0 \cdot 10^4$	γ -каскад: до 8 МэВ
^{155}Gd	0,15	(n, γ)	$6,1 \cdot 10^4$	γ -каскад: до 8 МэВ
^{157}Gd	0,16	(n, γ)	$2,6 \cdot 10^5$	γ -каскад: до 8 МэВ

Пластмассовые и жидкие сцинтилляторы, содержащие ядра изотопов-захватчиков тепловых нейтронов, могут быть эффективно использованы при решении широкого спектра физических задач нейтронной физики:

- прецизионное определение числа нейтронов деления для различных изотопов;
- создание координатного детектора быстрых нейтронов;
- измерение потоков и энергетического распределения быстрых нейтронов в подземных лабораториях и т. д.

таборат (LiBO_2), тетраборат ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) и тетрафтороборат (LiBF_4) этого элемента. Однако из-за неспособности этих соединений растворяться как в исходном мономере, так и в полистироле полученные сцинтилляторы были гетерогенными и имели низкую прозрачность к собственному излучению.

Дальнейший поиск боросодержащих сцинтилляторов развивался в направлении использования таких соединений этого элемента, которые были бы образованы не ионными, а ковалентными связями, что должно способствовать увеличению их растворимости в слабополярных органических системах.

Наиболее популярным веществом, применяемым для введения бора в жидкие сцинтилляторы, является триметиловый эфир борной кислоты (триметилборат) $\text{B}(\text{OCH}_3)_3$ [3, 6-9]. Его широкое использование объясняется доступностью и хорошей растворимостью в органических средах. Однако в силу невысокого содержания бора (17,5% масс.) в триметилборате при получении жидких сцинтилляторов приходится вводить это соединение в высоких концентрациях, зачастую достигающих 50% по массе, что отрицательно сказывается на сцинтилляционных свойствах материала. Одновременно с этим для триметилбората, как, впрочем, и для других эфиров борной кислоты, характерна низкая устойчивость к влаге, приводящая к гидролизу, один из продуктов которого — нерастворимая в слабополярных органических средах борная кислота:



где R — алкильный радикал.

Образование осадка этого соединения становится причиной ухудшения свойств жидкой сцинтилляционной композиции со временем и невозможности использования эфиров борных кислот для создания пластмассовых сцинтилляторов.

В связи с этим особый интерес привлекают сообщения об использовании для введения в пластмассовые сцинтилляторы полиэдрического соединения бора — изопропенил-о-карборана (рис. 1) [10, 11]. Это вещество обладает высокими показателями устойчивости к различным воздействиям, хорошо растворимо в неполярных и слабополярных органических средах, не имеет полос поглощения в видимой области спектра и, благодаря наличию изопропенильного остатка, способно сополимеризоваться с виниловыми мономерами ароматического ряда (стирол, винилтолуол и т. д.).

Нам представлялось интересным синтезировать и исследовать пластмассовый сцинтиллятор с еще одним веществом из этого ряда — незамещенным о-карбораном (рис. 1). Интерес этот вызван следующим:

- о-карборан имеет большее содержание бора (75% по массе) по сравнению с его изопропенильным замещенным (60%), что может стать причиной меньшей депрессии сцинтилляционных характеристик по сравнению со сцинтиллятором, не содержащим бора;

- о-карборан в отличие от изопропенильного производного не способен образовывать ковалентные связи в результате сополимеризации с исходным мономером;
- о-карборан имеет более низкую стоимость.

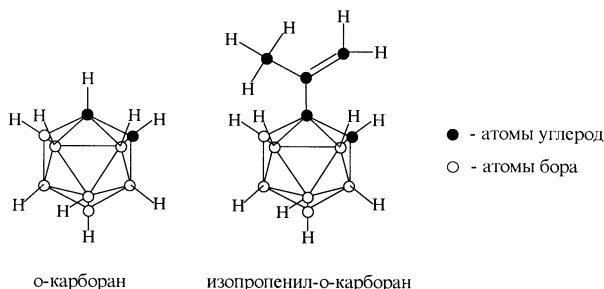


Рисунок 1. Молекулярная структура о-карборана и изопропенил-о-карборана

3. Опытные образцы боросодержащих пластмассовых сцинтилляторов

3.1. Общая характеристика

Опытные образцы сцинтилляторов с массовой долей бора 0,38, 0,75, 2,00 и 5,00% приготовлены по стандартной методике в стеклянных запаянных ампулах методом термической полимеризации в массе. Для получения радиолуминесценции образца, лежащей в области максимальной чувствительности фотоэлектронных умножителей наиболее распространенных типов, в качестве активатора использован п-терфенил (1,5% по массе), а в качестве сместителя спектра — РОРОР¹ (0,015% по массе). Из полученных заготовок были выточены диски диаметром 30 мм и высотой 9 мм, которые и использовались для дальнейшего исследования. В табл. 2 представлены некоторые характеристики сцинтилляторов с различным содержанием бора.

Исследование прозрачности сцинтилляторов в видимой области спектрального диапазона проведено с использованием спектрофотометра СФ-46. Полученные результаты (табл. 2) убедительно свидетельствуют о том, что этот показатель практически не меняется вплоть до содержания бора 1%. На рис. 2 в качестве иллюстрации представлены спектры пропускания образцов с массовой долей бора 0 и 5%.

¹ РОРОР — общепринятое обозначение 1,4-ди-(5-фенил-2-оксазолил)бензола.

Таблица 2. Характеристики боросодержащих пластмассовых сцинтилляторов

Показатели	Массовая доля бора, %				
	0	0,38	0,75	2,00	5,00
Плотность, г/см ³	1,05	1,05	1,05	1,05	1,05
Показатель преломления	1,57	1,57	1,58	1,58	1,54
Прозрачность при 420 нм, %	86,6	86,1	86,8	85,1	83,8
Количество атомов бора в 1 см ³ , ×10 ²²	—	0,02	0,04	0,12	0,28
Количество атомов водорода в 1 см ³ , ×10 ²²	4,85	4,85	4,85	4,86	4,86
Количество атомов углерода в 1 см ³ , ×10 ²²	4,85	4,83	4,82	4,75	4,58

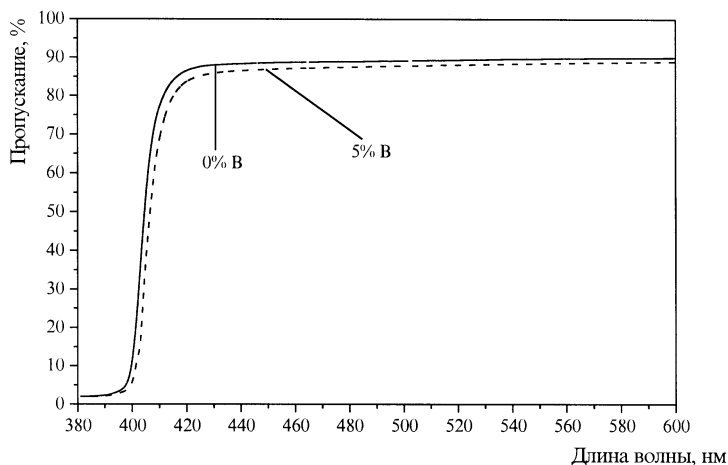


Рисунок 2. Спектры пропускания пластмассовых сцинтилляторов в видимой области

Люминесцентные характеристики боросодержащих сцинтилляторов были измерены при помощи спектрофлуориметра СФЛ 1211А. На рис. 3 изображены спектры излучения не содержащего бор образца и образца с концентрацией бора 5%. С точностью до случайных неучтенных факторов спектры обоих сцинтилляторов идентичны.

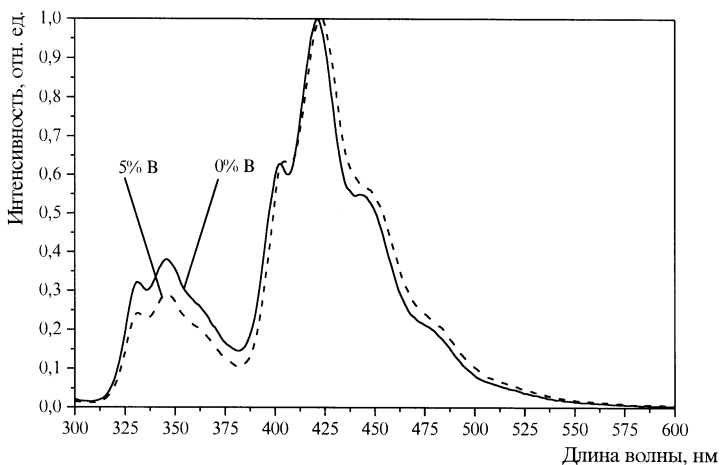


Рисунок 3. Спектры люминесценции пластмассовых сцинтилляторов

Измерение показателей преломления проведено по стандартной методике на длине волны 663 нм. Очевидно, что с учетом погрешности измерений ($\pm 0,01$), показатель преломления остается постоянным вплоть до содержания бора в образце 2%.

3.2. Зависимость световыхода от концентрации бора

Исследование зависимости световыхода для образцов с различной концентрацией бора проводилось с использованием набора стандартных гамма-, бета-, и альфа-источников. В табл. 3 приведены их характеристики. Схема измерений представлена на рис. 4.

Таблица 3. Источники ионизирующих излучений, использовавшиеся для измерения световыхода

Излучение	Источник	Энергия частиц, МэВ
α	^{238}Pu	5,55
α	$^{148}\text{Gd} + ^{244}\text{Cm}$	3,18 + 5,8
β	^{137}Cs	0,625
β	^{207}Bi	0,976
γ	^{137}Cs	0,477 (комптон)

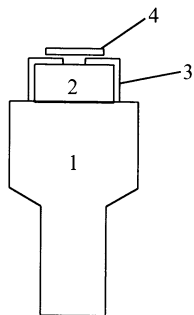


Рисунок 4. Схема измерения световыхода: 1 — ФЭУ, 2 — исследуемый образец, 3 — тефлоновый отражатель, 4 — α -, β - или γ -источник

Результаты измерений показали, что введение добавки бора по разработанной методике приводит к незначительному снижению световыхода сцинтиллятора. Так, световыход (взято значение, усредненное по всем источникам) образца с массовой долей бора 5% составляет 70%, а световыход образца с 0,75% бора — 88% от световыхода аналогичного по геометрии сцинтиллятора, не содержащего бор (рис. 5).

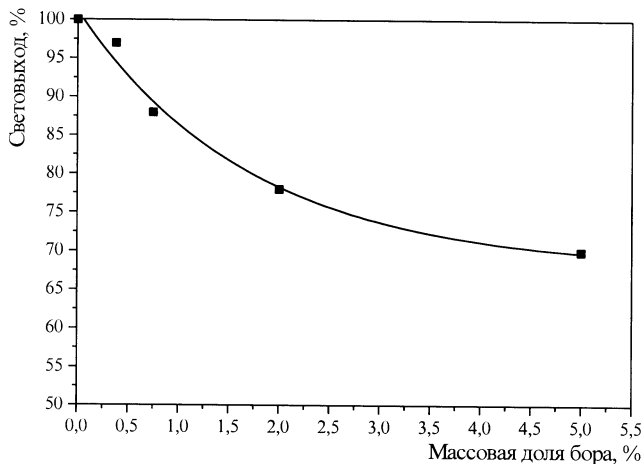


Рисунок 5. Зависимость световыхода пластмассовых сцинтилляторов от концентрации бора

Интересно отметить, что энергетическое разрешение также значительно не ухудшается (10% для образца, содержащего 5% бора, по сравнению с 8% для контрольного образца для конверсионных электронов с энергией 976 кэВ).

Исследование спектрометрических характеристик сцинтилляторов с использованием различных альфа-, бета- и гамма-источников позволило определить отношение конверсионных эффективностей при регистрации α - и β -частиц (α/β -отношение), средняя величина которого для всех образцов составила 0,08 для α -частиц с энергией 5 МэВ.

3.3. Эффективность регистрации тепловых нейтронов

Для опытных образцов боросодержащих пластмассовых сцинтилляторов были измерены абсолютные значения эффективности регистрации тепловых нейтронов.

В первой серии измерений, проведенных на установке с Pu-Be-источником нейтронов (рис. 6), получены спектры α -частиц, рожденных в n, α -реакции на атомах бора, для опытных образцов боросодержащих пластмассовых сцинтилляторов. Эти спектры показаны на рис. 7.

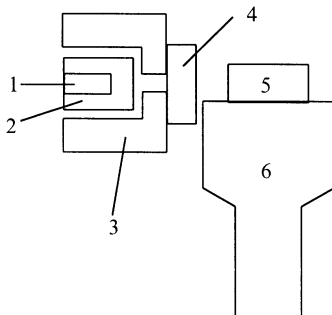


Рисунок 6. Схема измерений с использованием нейтронного источника: 1 — Pu-Be-источник, 2 — полиэтилен, 3 — борированный полиэтилен, 4 — свинец, 5 — исследуемый образец, 6 — ФЭУ

Для определения эффективности регистрации тепловых нейтронов экспериментальными образцами боросодержащих сцинтилляторов были проведены измерения на нейтронном пучке ИБР-30 (60,3 м) ОИЯИ.

Эффективность регистрации тепловых нейтронов определена как площадь под пиком в спектре α -частиц, возникающих в n, α -реакции на атомах бора (табл. 4). Для отделения сигнала сопутствующих γ -квантов измерения проведены в совпадении с HPGe-детектором.

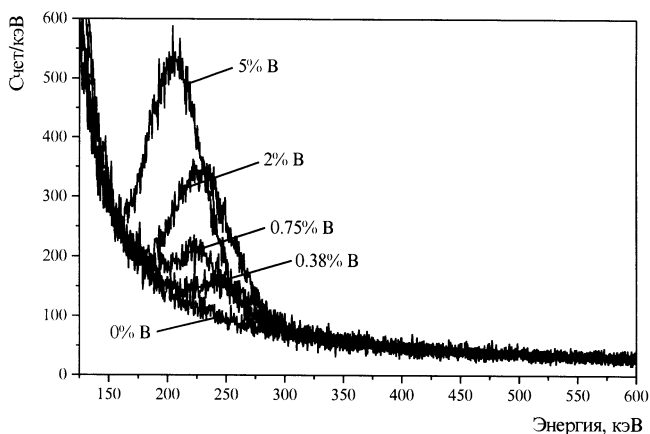


Рисунок 7. Спектры α -частиц, возникающих при захвате боросодержащими ПС тепловых нейтронов от Pu-Be-источника. Энергия α -частиц приведена в электронной шкале

Таблица 4. Эффективность регистрации тепловых нейтронов боросодержащими пластмассовыми сцинтилляторами

Массовая доля бора, %	Эффективность регистрации (%) нейтронов с энергией (эВ)		
	0,3	400	$\leq 0,4$
0,38	$2,7 \pm 0,6$	$0,16 \pm 0,04$	$3 \pm 0,5$
0,75	$6 \pm 0,15$	$0,3 \pm 0,07$	5 ± 1
2,00	$16 \pm 0,4$	$0,7 \pm 0,15$	13 ± 3
5,00	26 ± 6	$1,2 \pm 0,3$	22 ± 5

4. Прототип детектора тепловых нейтронов

В целях изучения возможности использования синтезированных сцинтилляторов в реальных физических экспериментах изготовлен прототип детектора тепловых нейтронов — цилиндрический сцинтиллятор диаметром 70 мм, высотой 57 мм с массовой долей бора 5%, для которого были проведены измерения светового выхода и спектрометрических характеристик. Эти измерения показали хорошее разрешение детектирующей системы (сцинтиллятор + ФЭУ): 12% для конверсионных электронов с энергией 976 кэВ по сравнению с 11% для

контрольного сцинтиллятора таких же размеров при том же относительном световыходе, что и для соответствующего опытного образца.

Особый интерес представляло исследование содержания примесных радионуклидов в материале прототипа детектора тепловых нейтронов. Результаты этих измерений, выполненных в подземной низкофоновой лаборатории Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН, показали, что введение о-карборана не сказывается на увеличении собственного радиоактивного фона детектора по сравнению с контрольным образцом такой же массы, не содержащим бора. Для обоих сцинтилляторов, исследовавшихся как в пассивном (измеряемый на гамма-спектрометре образец), так и в активном (собственно, как работающий детектор) режимах, были получены ограничения на содержание изотопов ^{232}Th , ^{238}U и ^{40}K на уровне $< 10^{-9}$ г/г, что говорит о возможности применения таких сцинтилляторов в низкофоновых подземных экспериментах.

5. Заключение

Проведенное исследование показало возможность использования о-карборана в качестве боросодержащей добавки для получения пластмассовых сцинтилляторов на основе полистирола. Синтезированные материалы демонстрируют хорошие спектрометрические характеристики, проявляя лишь незначительное снижение световыхода при увеличении массовой доли боросодержащего соединения. Высокие значения эффективности регистрации тепловых нейтронов позволяют использовать эти сцинтилляторы в составе всеволновых нейтронных детекторов. Низкий собственный радиоактивный фон синтезированных материалов делает их интересными с точки зрения крупномасштабных низкофоновых экспериментов в различных областях нейтринной физики.

6. Литература

1. Gabriel T.A., Lillie R.A., Childs R.L. // Nucl. Instrum. & Methods, 1984, V. A221. P. 474.
2. Apollonio M., Baldini A., Bemborad C., E. e. a. // Phys. Lett., 1999, V. B466. P. 415.
3. Wang S.C., Hsu C.C., Leung R.W.S. e. a. // Nucl. Instrum. & Methods, 1999, V. A432. P. 111.
4. Piepke A.G., Wayne Moser S., Novikov V. M. // Nucl. Instrum. and Methods, 1999, V. A432. P. 392.
5. Барони Е.Е., Викторов Д.В., Розман И.М. и др. // Nucl. Electronics, 1962, V.1. P. 131.
6. Bollinger L.M., Thomas G.E. // Rev. Sci. Instrum., 1957, V. 28. No 7. P. 489.
7. Пикельнер Л.Б., Пшитула М.И., Ким Хи Сан и др. // ПТЭ, 1963, №2. С. 48.
8. Попов А.Б., Язвицкий Ю.С. // ПТЭ, 1963, № 4. С. 70.
9. Greenwood L.R., Cheleew N.R. // Rev. Sci. Instrum., 1979, V. 50. No 4. P. 466.
10. Анисимова Г.И., Данелян Л.С., Жигач А.Ф. и др. // ПТЭ, 1969, №1. С.49.

11. Drake D.M., Feldman W.C., Hurlbut C. // Nucl. Instrum. & Methods., 1986, V. 247. P. 576.

Рукопись поступила в издательский отдел
25 августа 2000 года.

Бруданин В.Б. и др.
Боросодержащий пластмассовый сцинтиллятор
на основе полистирола

P13-2000-195

Методом термической блочной полимеризации получены пластмассовые сцинтилляторы на основе полистирола, содержащие от 0,38 до 5,0% по массе естественной смеси изотопов бора. В качестве боросодержащей добавки использован о-карборан. Проведено всестороннее исследование спектрально-оптических и сцинтилляционных свойств новых материалов. Показано, что введение добавки бора по разработанной методике приводит к незначительному снижению световыхода сцинтиллятора. Так, световыход образца, содержащего 5% бора, составляет 70%, а световыход образца с 0,75% бора — 88% от световыхода аналогичного по геометрии сцинтиллятора, не загруженного бором. Высокие значения эффективности регистрации тепловых нейтронов позволяют использовать эти сцинтилляторы в составе всеволновых нейтронных детекторов, а низкий собственный радиоактивный фон синтезированных материалов делает их интересными с точки зрения крупномасштабных низкофоновых экспериментов в различных областях нейтринной физики.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В.П.Джелепова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2000

Перевод авторов

Brudanin V.B. et al.
B-Loaded Plastic Scintillator on the Base of Polystyrene

P13-2000-195

A method to produce polystyrene-based plastic scintillators with boron concentration from 0.38 to 5.0% of boron have been developed. o-Carborane was used as B-containing additive. The results of investigations of the optical, spectral and scintillation characteristics are presented and discussed. It is shown that 5% B-loaded scintillator has a light output as much as 70% relative to the unloaded one. High efficiency for thermal neutron registration achieved for produced samples makes it possible to use such scintillators in complex neutron high sensitive spectrometers. Measured level of radioactive contamination in this scintillation materials is good enough for using the B-loaded scintillators in the proposed large scale neutrino experiments.

The investigation has been performed at the Dzhelapov Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2000

Редактор Е.Ю.Шаталова. Макет Н.А.Киселевой

Подписано в печать 1.09.2000

Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. листов 1,71

Тираж 315. Заказ 52216. Цена 2 р. 06 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
Дубна Московской области