
Il progetto **ESQUIRE**: Quantum Dot per rivelatori a scintillazione

M. Beretta^{1,3}, A. Amirkhani^{4,5}, C. Brofferio^{1,3}, S. Brovelli^{2,3}, F. Cova^{2,3}, S. Capelli^{1,3}, M. Fasoli^{2,3}, C. Fiorini^{4,5}, L. Gironi^{1,3}, A. Vedda^{2,3}, I. Villa^{2,3}

Università di Milano-Bicocca, Dipartimento di Fisica G. Occhialini¹ e Dipartimento di Scienza dei Materiali²;

INFN, Sezione di Milano-Bicocca³ e di Milano⁴;

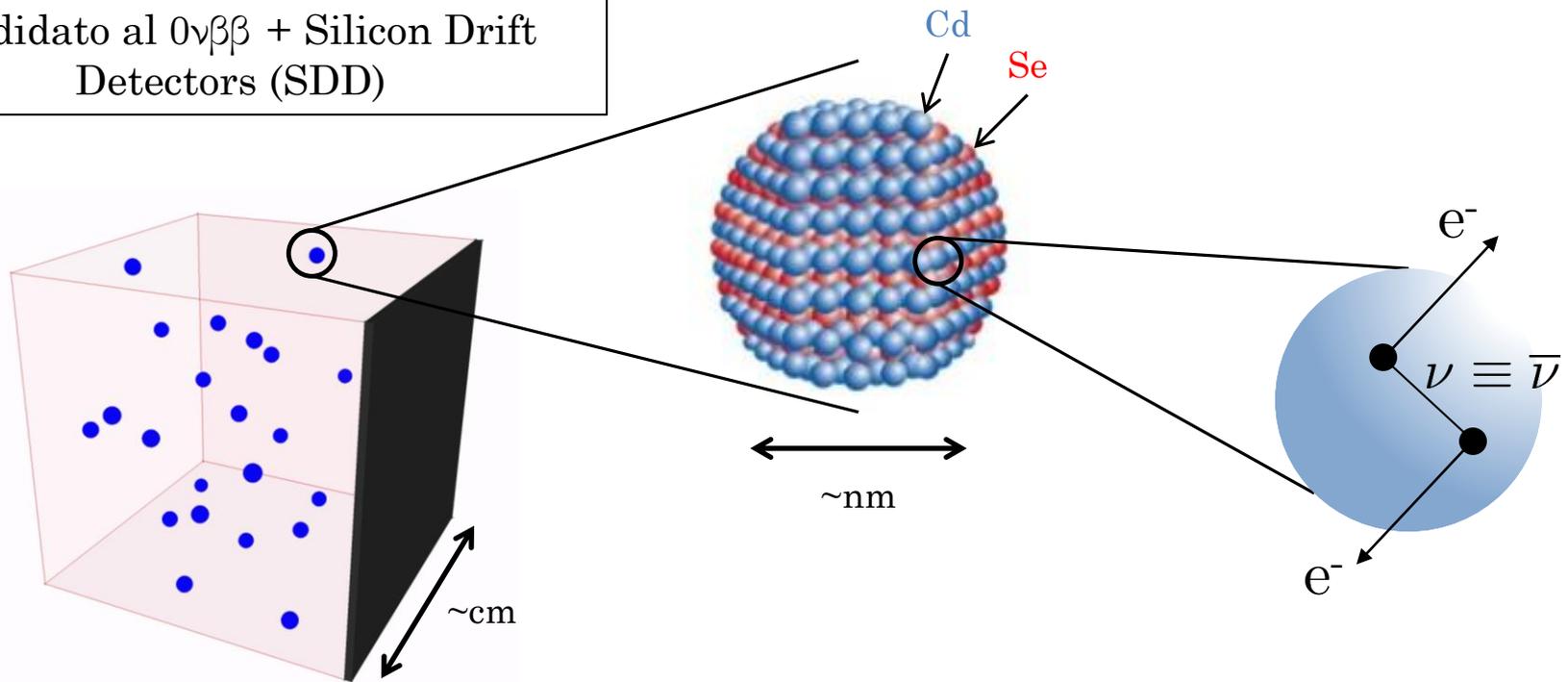
Politecnico di Milano, Dipartimento di Elettronica, Informazione e Bioingegneria⁵

ESQUIRE

La scopo di ESQUIRE è applicare un **nuovo approccio** allo studio degli eventi rari come il **Decadimento Doppio Beta senza emissione di neutrini ($0\nu\beta\beta$)**.

Rivelatore:

Matrice contenente nanocristalli con candidato al $0\nu\beta\beta$ + Silicon Drift Detectors (SDD)



Obiettivo principale:

Sviluppare uno scintillatore con Quantum Dots con **buona risoluzione energetica e facilmente scalabile in massa**.



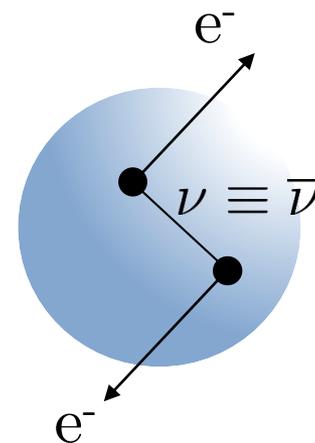
Essendo un approccio completamente nuovo, gli studi condotti in ESQUIRE potrebbero aprire la strada per futuri **sviluppi di nuovi dispositivi nel campo dei rilevatori di radiazioni**.

Decadimento Doppio Beta senza neutrini ($0\nu\beta\beta$)

$0\nu\beta\beta$: $(A,Z) \rightarrow (A,Z+2) + 2e^-$ $m_\nu \neq 0$

- Proibito nel Modello Standard ($\Delta L=2$)
- Possibile per ~ 35 nuclei ma solo pochi veramente interessanti
- Processo estremamente raro ($T_{1/2}^{0\nu} > 10^{24}-10^{25}$ y)

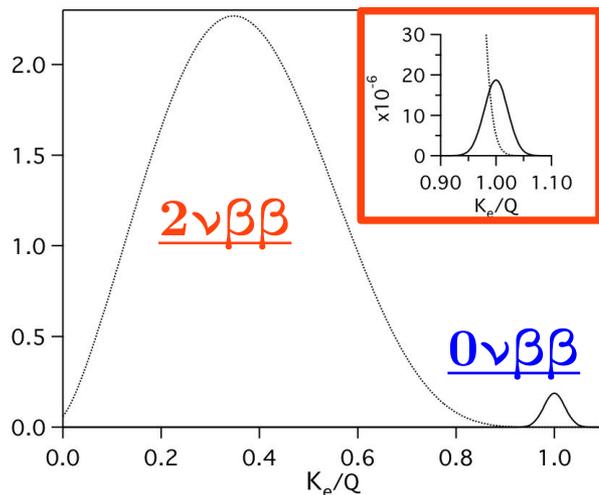
$$\nu \equiv \bar{\nu}$$



$2\nu\beta\beta$: $(A,Z) \rightarrow (A,Z+2) + 2e^- + 2\nu$

- Previsto e misurato

Misura dell'energia dei due elettroni



Massa effettiva del neutrino:

$$\langle m_\nu \rangle = \frac{m_e}{\sqrt{F_N \cdot T_{1/2}^{0\nu}}}$$

F_N = fattore di merito nucleare
(elemento di matrice nucleare + spazio fasi)

Ricerca sperimentale del $0\nu\beta\beta$

Sensibilità sperimentale

Massimo tempo di dimezzamento osservabile ad un determinato C.L.

$$S_{0\nu} \propto \sqrt{\frac{M \cdot T}{B \cdot \Delta}}$$

Parametri sperimentali critici:

- **Massa isotopo (M)** \longrightarrow
- **Risoluzione energetica (Δ)**
- **Background (B)** \searrow

Scalabilità della massa a basso costo e **abbondanze isotopiche elevate** sono obbligatorie per gli esperimenti di prossima generazione

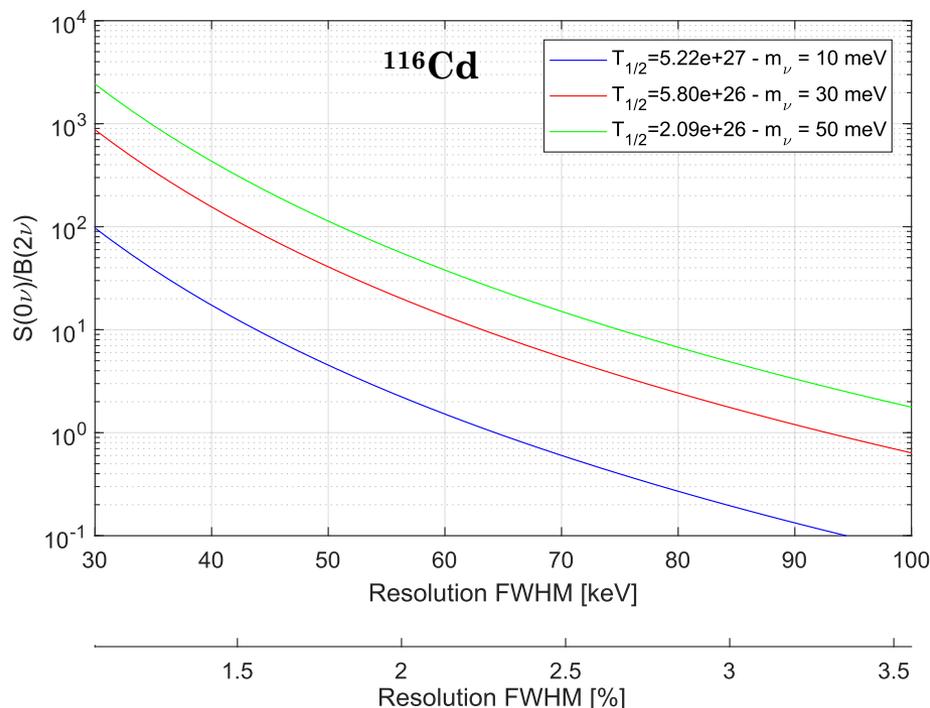
Risoluzione energetica del % al Q_{valore} necessaria per non essere dominati dal fondo dovuto al $2\nu\beta\beta$

Rapporto segnale/fondo $2\nu\beta\beta$

$$\frac{S^{0\nu}}{B^{2\nu}} \propto \frac{Q_{\text{valore}}^5}{\Delta^6} = \frac{1}{Q_{\text{valore}} \cdot R^6}$$

$$R = \frac{\Delta}{Q_{\text{valore}}}$$

Risoluzione energetica percentuale



Quantum Dots (QD)

Nanocristalli di materiale semiconduttore con diametri di 2-10 nm.

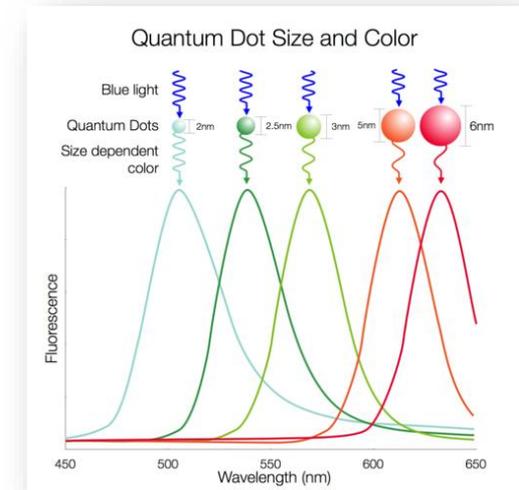


Gli elettroni sono confinati in un piccolo spazio inferiore al raggio di Bohr dell'eccitone.



Quantizzazione dei livelli di energia.

- **Colore regolabile** attraverso le dimensioni
 - Spettro di emissione molto stretto
- **Elevata efficienza quantica**
 - Efficiente conversione carica → fotoni
- Tempi di scintillazione **molto veloci** (<ns)
- Possono essere inseriti in diverse matrici (solidi, liquidi)

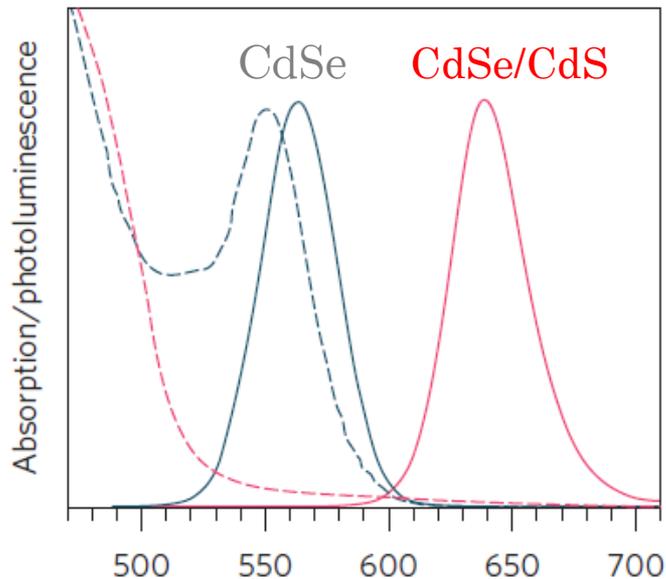
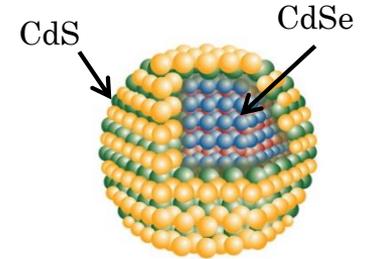


- Grande interesse anche per elettronica di consumo
 - Buona disponibilità di prodotto
- Hanno un **semplice processo di produzione**:
 - Costi minori rispetto a cristalli scintillanti di grande dimensione

QD più interessanti

Core/shell Quantum Dots, ad esempio CdSe/CdS e CuInSe₂

- Elevato **Stokes shift** (basso autoassorbimento)
- Ridotta probabilità di ricombinazioni Auger non radiative
- Stabilità dell'emissione luminosa
- Indicazioni preliminari di elevata resa in luce per interazione di X e γ



Stokes shift

- Disaccoppiamento tra assorbimento e emissione

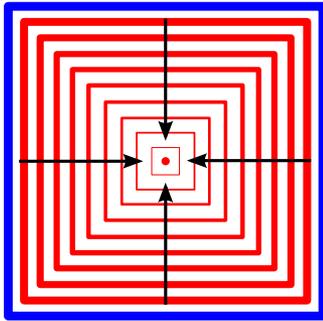


Emissione luminosa intensa anche con grandi concentrazioni: necessaria per grandi masse

¹¹⁶Cd e ⁸²Se sono due tra gli isotopi candidati al $0\nu\beta\beta$ più interessanti, per Q_{valore} e abbondanza isotopica

Silicon Drift Detectors (SDD)

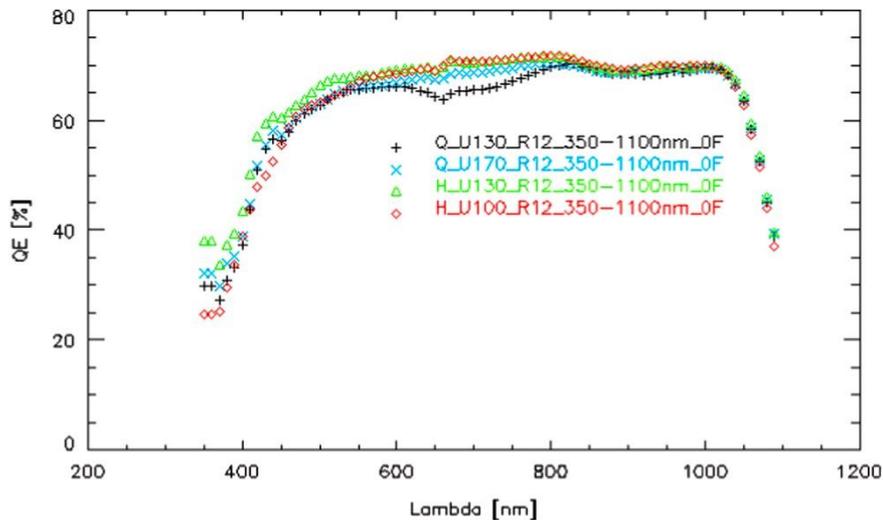
Necessario avere un rivelatore di luce ad alte prestazioni: rumore, efficienza



- Deriva degli elettroni per mezzo di **anelli a tensione negativa decrescente**
 - Singolo anodo centrale di raccolta
- No allargamento intrinseco dovuto alla moltiplicazione**

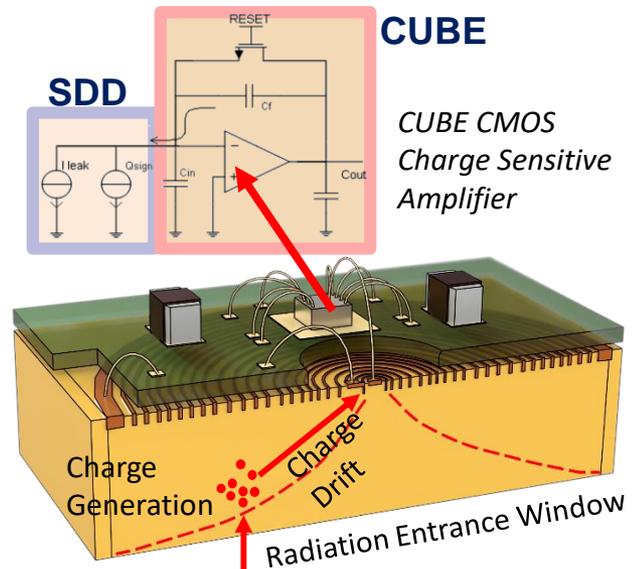
~80% di efficienza quantica in una vasta regione di λ

- Migliorabile con strati anti-riflessione



- Anodo centrale con bassa capacità (~fF), indipendente dall'area

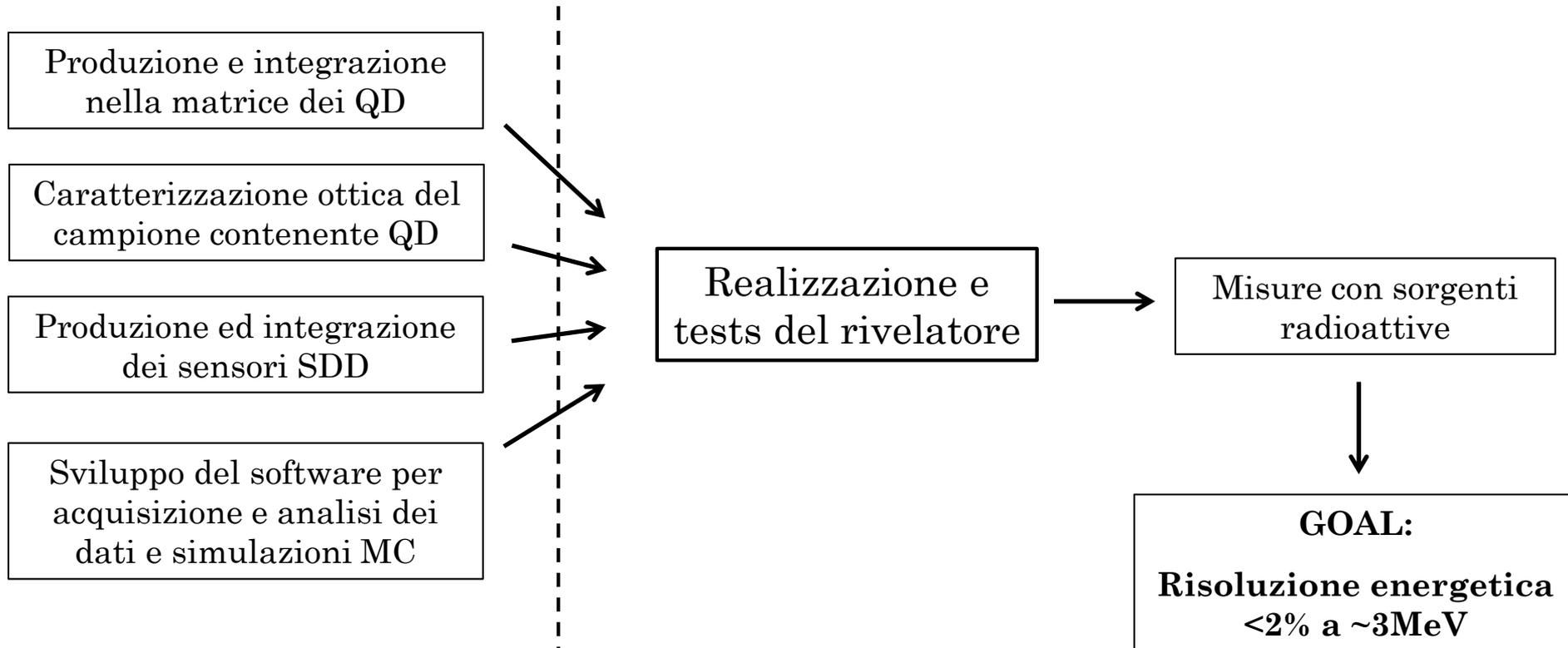
Lettura dedicata per ottimizzare il rumore elettronico



Sviluppo temporale del progetto

OBIETTIVO

Misura della resa in luce e della conseguente **risoluzione energetica** ottenibile accoppiando un campione con dimensioni del cm e contenente **QD** a sensori con elevata efficienza quantica (**SDD**).



Kick off: 2018

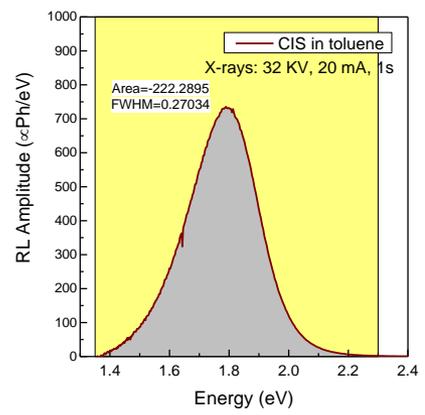
Produzione, integrazione e ottimizzazione del campione



Acquisto di vari QD contenenti nuclei candidati al $0\nu\beta\beta$ (^{82}Se , ^{116}Cd , ^{130}Te)

CdSe/CdS - CdTe/CdS - **CuInS₂/ZnS**

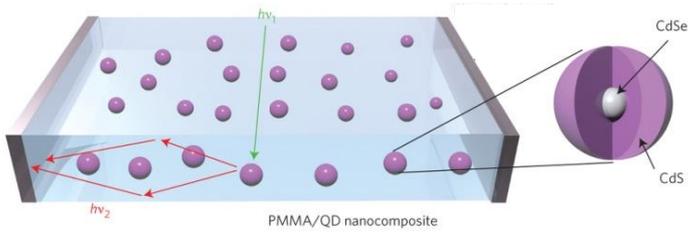
←
se necessario



Caratterizzazione ottica (10-320 K):

- Spettro di assorbimento
- Radio-luminescenza
- Foto-luminescenza (in stato stazionario e risolta in tempo)

CIS già disponibili

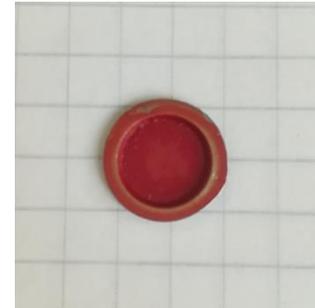


Integrazione dei QD in matrici con differente:

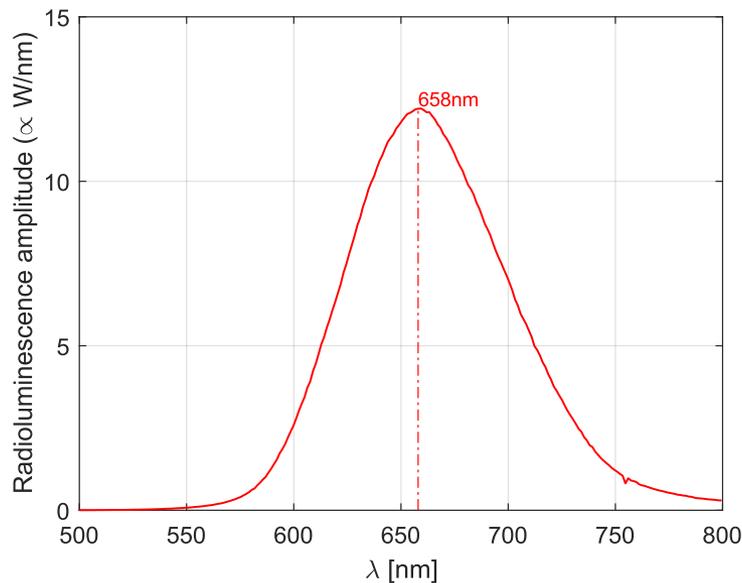
- composizione per un migliore accoppiamento a SDD (toluene, PMMA,)
- concentrazione di QD (5-40%)
- dimensioni

Misure di Radio Luminescenza (RL)

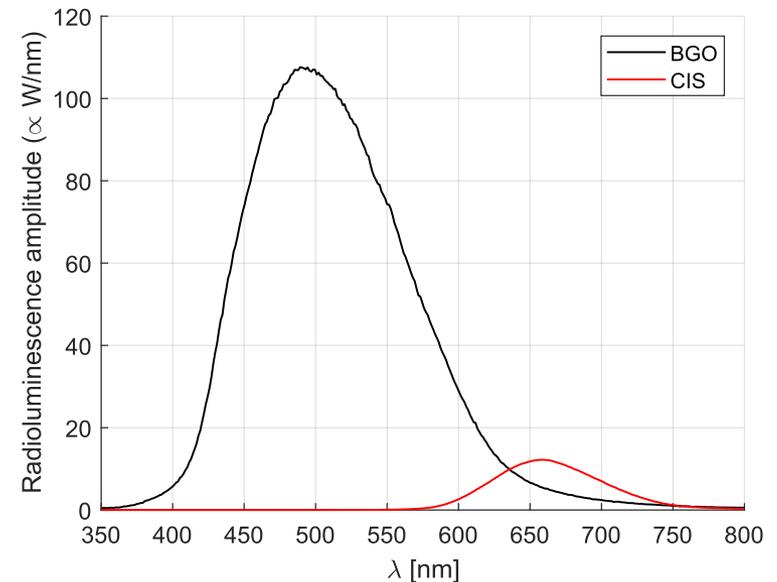
- Misura di luminescenza indotta da raggi X
 - $E_X < 32$ keV
- Campioni depositati su una superficie
- Confronto con 90mg di polvere di BGO
 - Per avere un punto di riferimento



90 mg di QDs di CIS depositati



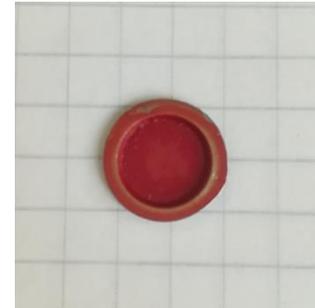
- Emissione a 658nm, QD rossi
- Nella regione di efficienza quantica costante per i sensori SDD



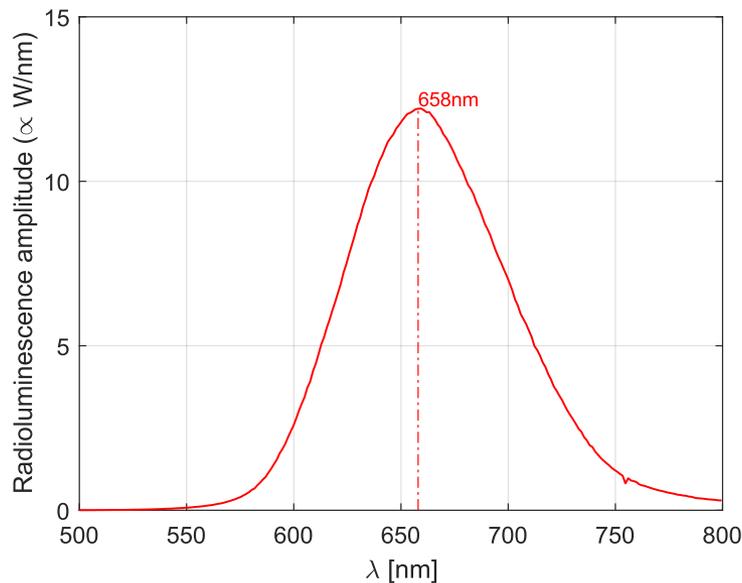
- BGO è circa 8 volte più intenso del QD, nelle stesse condizioni sperimentali

Misure di Radio Luminescenza (RL)

- Misura di luminescenza indotta da raggi X
 - $E_X < 32 \text{ keV}$
- Campioni depositati su una superficie
- Confronto con 90mg di polvere di BGO
 - Per avere un punto di riferimento



90 mg di QDs di CIS depositati



Per passare a volumi di materiale

- Emissione a 658nm, QD rossi
- Nella regione di efficienza quantica costante per i sensori SDD

- Progettazione di un portacampione dedicato
- Test di diversi solventi/concentrazioni
- Applicabile per misure di scintillazione

Riassumendo

Sviluppare uno scintillatore con **buona risoluzione energetica e facilmente scalabile in massa.**

Matrice contenente nanocristalli scintillanti (QD) con candidato al $0\nu\beta\beta$ e rivelatori di luce ad alte prestazioni (SDD)

Acquisto/Produzione di diversi QD

Prova di altre matrici

- Ricerca del campione migliore
 - Alta emissione e alta concentrazione

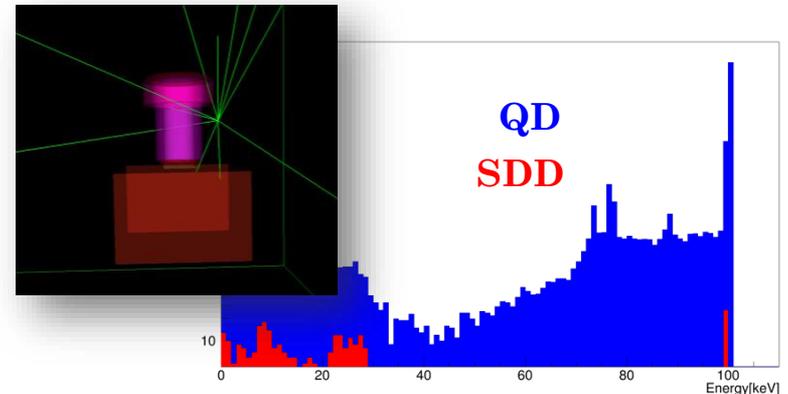
Misure di scintillazione

- Con PMT e SDD
- Valutazione della resa in luce di QD in confronto con il BGO



Simulazioni MC del campione

- Valutazione dell'efficienza di rivelazione
- Comprensione delle misure



BACKUP

Prossimi passi



Misure di scintillazione con portacampione

- Con PMT e SDD
- Valutazione della resa in luce di QD in confronto con il BGO

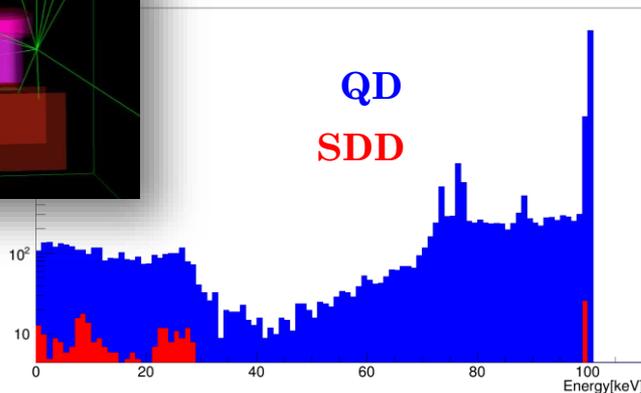
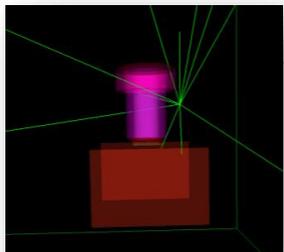


Acquisto/Produzione di altri QD

- Ricerca del campione migliore
 - Alta emissione e alta concentrazione

Prova di altre matrici

- Solide e liquide, per caratterizzarne gli effetti
- Prova a diverse concentrazioni di QD



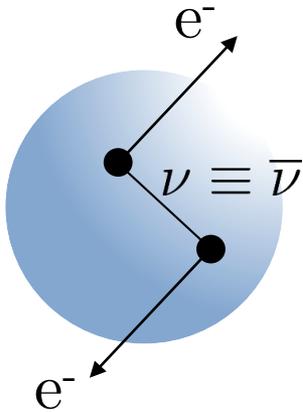
Simulazioni MC del campione

- Valutazione dell'efficienza di rivelazione
- Comprensione delle misure
- Valutazione a priori delle condizioni sperimentali

Decadimento Doppio Beta senza neutrini ($0\nu\beta\beta$)

$(A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- \longrightarrow$ • Proibito nel Modello Standard ($\Delta L=2$)

- Può avvenire solo se il neutrino è una particella di Majorana
- Il neutrino deve avere massa non nulla
- Possibile per ~ 35 nuclei ma solo pochi veramente interessanti
- Processo estremamente raro ($T_{1/2}^{0\nu} > 10^{24} - 10^{25}$ y)

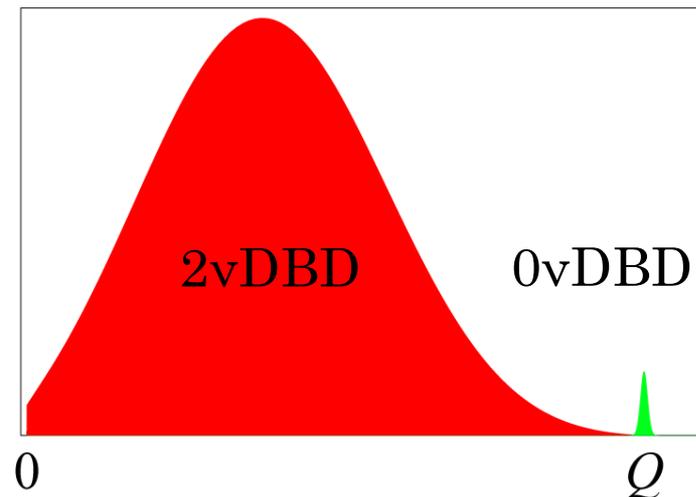


$0\nu\beta\beta$ Candidate	Q [keV]	i.a. [%]
^{130}Te	2528	34
^{116}Cd	2814	7.5
^{82}Se	2996	8.7
^{100}Mo	3034	9.6

Massa effettiva del
neutrino:

$$\langle m_\nu \rangle = \frac{m_e}{\sqrt{F_N \cdot T_{1/2}^{0\nu}}}$$

F_N = fattore di merito nucleare
(elemento di matrice nucleare + spazio fasi)

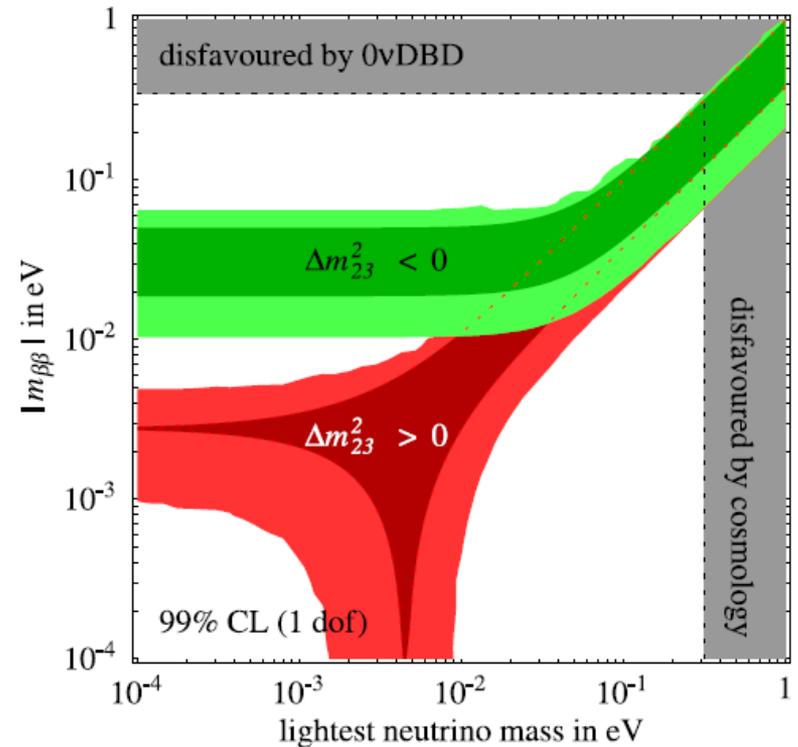
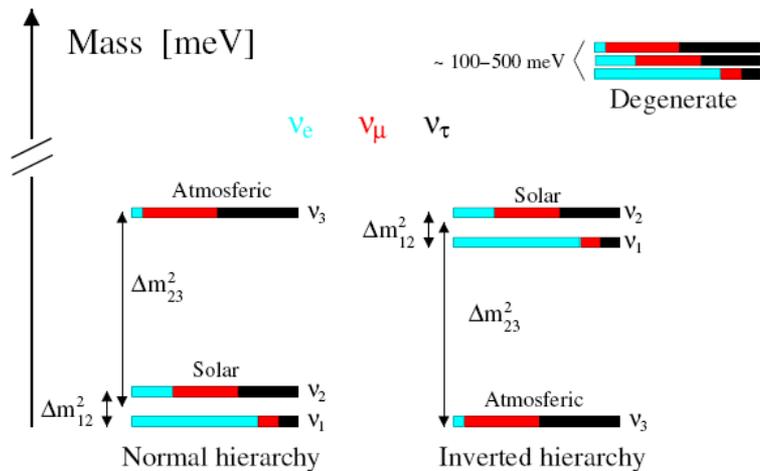


$$[T_{1/2}^{0\nu}]^{-1} = C \cdot \frac{\langle m_{\beta\beta} \rangle^2}{m_e^2}$$

Effective neutrino mass
Nuclear matrix element
Space phase factor

$$C = |M^{0\nu}|^2 \cdot G^{0\nu} \quad [y^{-1}]$$

Nuclear Factor of merit



$$N_{Ev} = M \frac{\chi \cdot N_{Av}}{M_{mol}} \eta \frac{T}{\tau^{0\nu}}$$

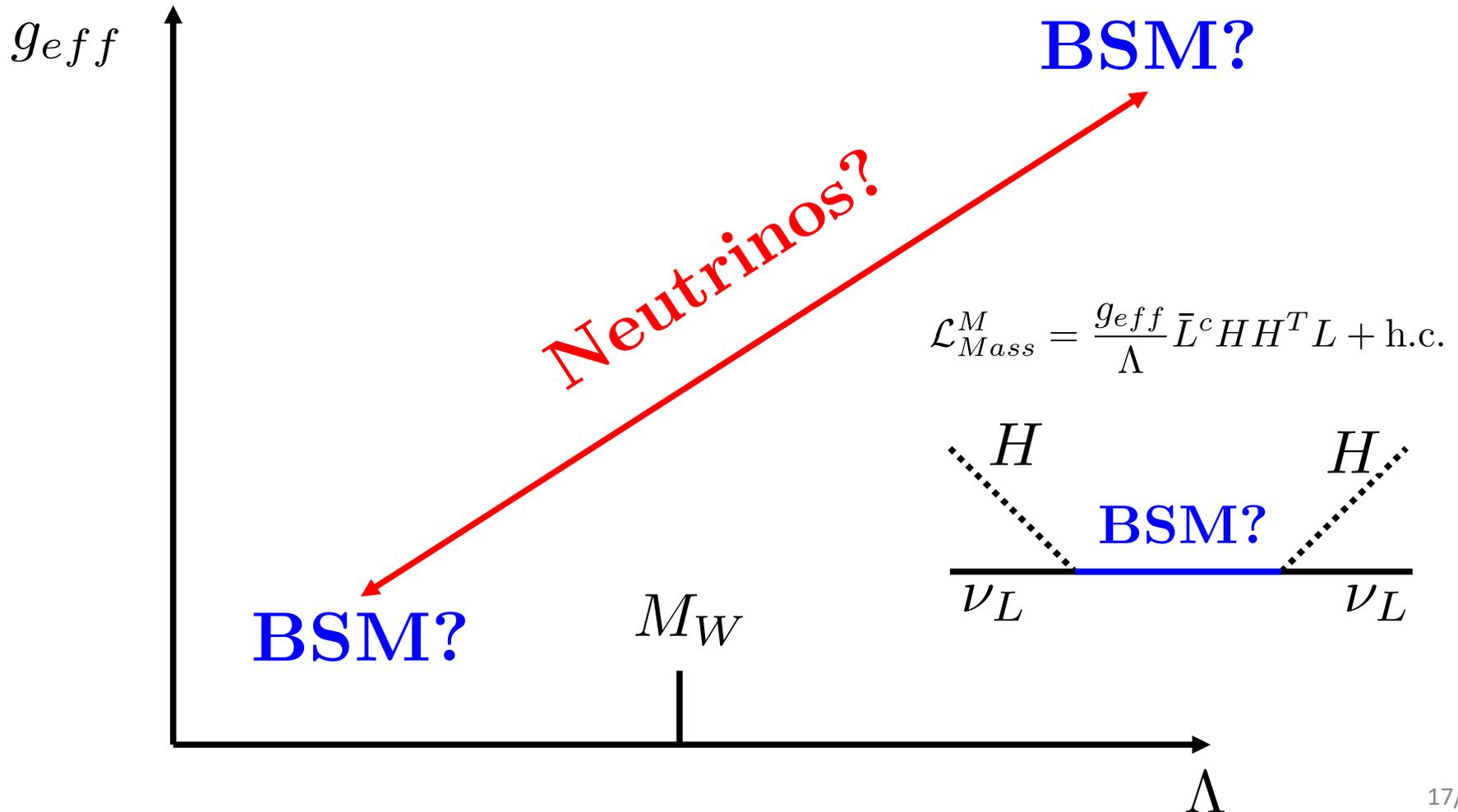
χ = coefficiente stechiometrico
 η = abbondanza isotopica

Eventi attesi a massa fissata

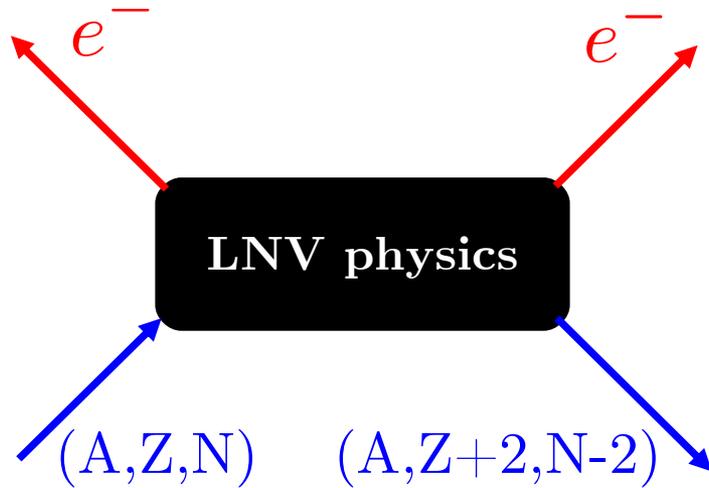
Importanza della ricerca del $0\nu\beta\beta$

Different possible generator masses and couplings to neutrinos

- All BSM features \rightarrow **new phenomenologies**



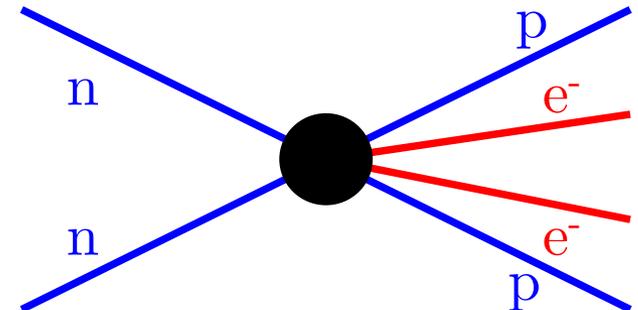
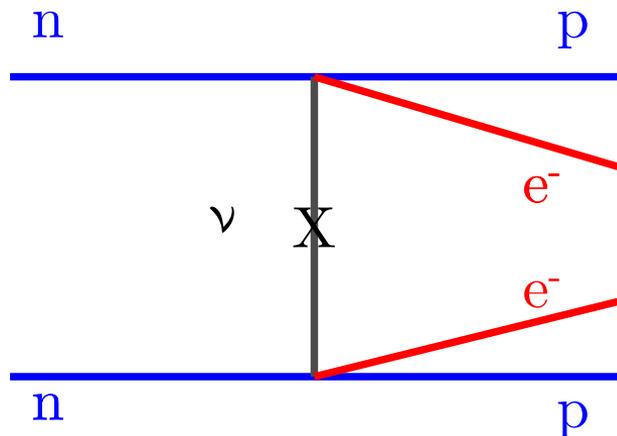
Importanza della ricerca del



Black Box

- Unpacked differently by different mass models
- Indipendent by the model chosen

- Each model leads to **different predictions** with respect to the physics of $0\nu\beta\beta$
- Two different main scenarios:



Quantum Dots

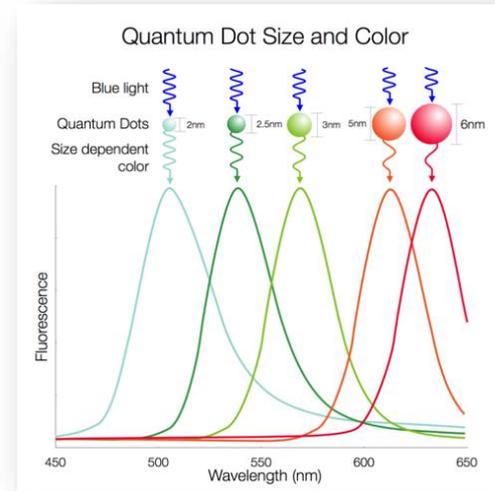
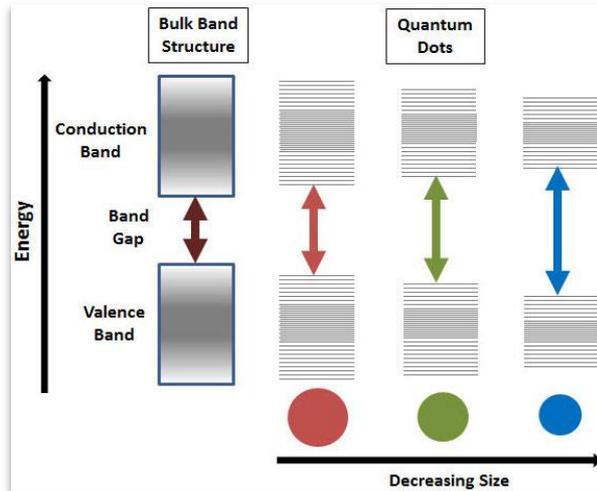
Nanocristalli di materiale semiconduttore con diametri di 2-10 nm.



Gli elettroni sono confinati in un piccolo spazio inferiore al raggio di Bohr dell'eccitone



Quantizzazione dei livelli di energia



Alcune caratteristiche dei QD:

- Gap energetico regolabile attraverso le dimensioni dei dot
- Spettro di emissione molto stretto
- Elevata efficienza quantica
- Tempi di scintillazione molto veloci (<ns)
- Possono essere inseriti in diverse matrici (solidi, liquidi)

Quantum Dots – Applicazioni & scalabilità in massa

Le caratteristiche dei QD e i recenti progressi nel controllo della loro dimensione, forma, struttura core/shell hanno permesso il loro utilizzo in una vasta gamma di applicazioni:

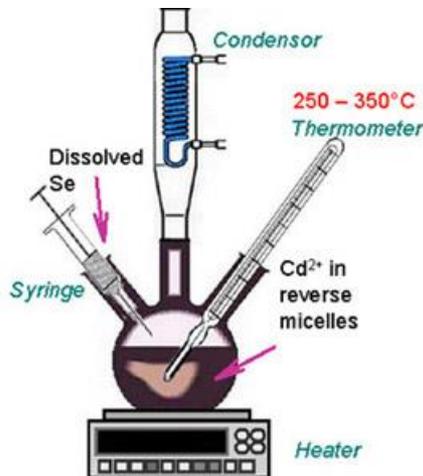
- Computing
- Dispositivi fotovoltaici
- Biologia
- Fotocatalizzatori
- Elettronica di consumo (TV, ...)
- ...



Aumento dei fornitori e della produzione di questi materiali con conseguente riduzione dei costi

Nel 2012 la produzione era di 1 kg/yr, nel 2015 di 1 kg/h...

Altra caratteristica fondamentale risulta essere il relativamente **semplice processo di produzione**:



Molto più semplici da produrre rispetto ai cristalli scintillanti di grandi dimensioni



Possono essere prodotti nei nostri laboratori senza strumentazione particolare

Quantum Dots – scintillatori per rivelatori

Ultrafast emission from colloidal nanocrystals under pulsed X-ray excitation

R.M. Turtos, P. Lecoq et al., JINST 2016

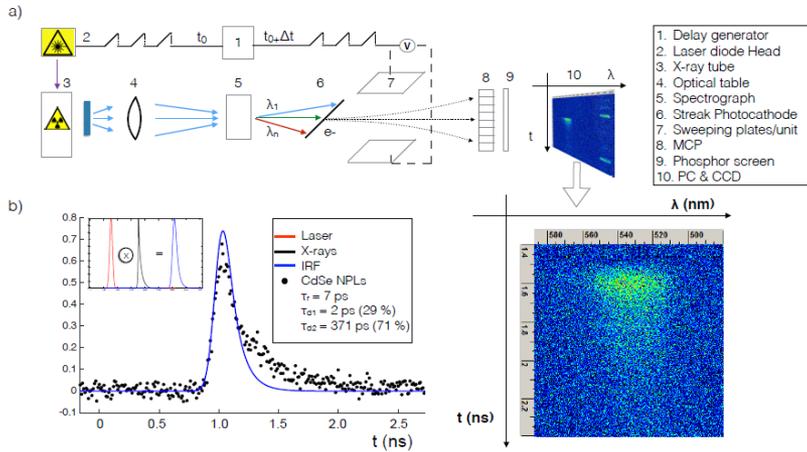
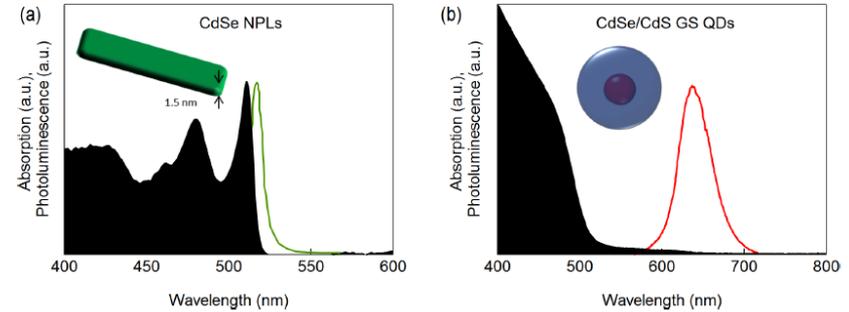
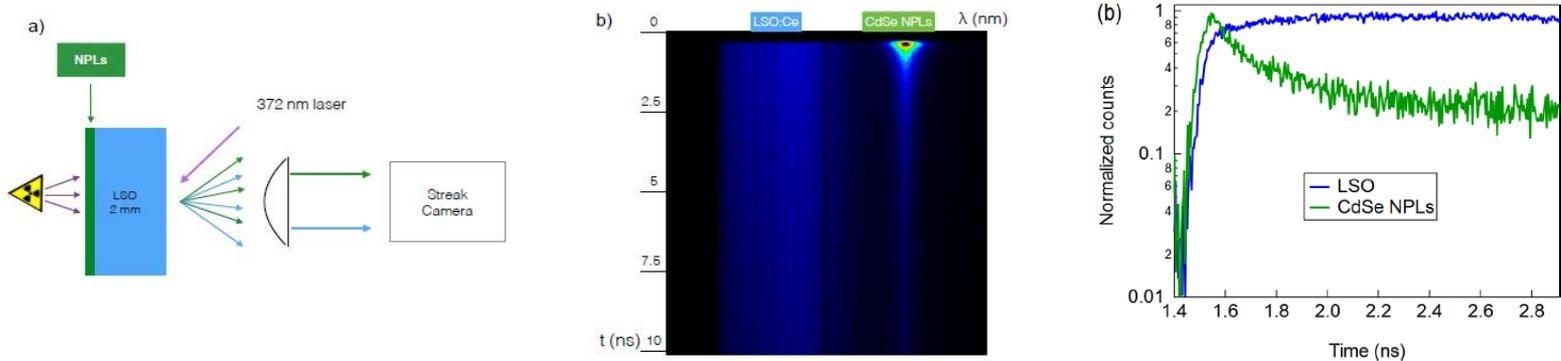


Figure 4. Schematic view of the primary components of the experimental setup. (a) Streak camera image of a CdSe nanoplatelets sample deposited on glass measured under X-rays excitation with a sweeping time of 2 ns. (b) Determination of the system IRF for 100 μm photocathode aperture and 5ns sweeping range, shown along with the decay of the CdSe NPL emission.



“Using the average value of 10 μm , we calculate light yields of **2,500** and **22,000** photons/MeV for CdSe NPLs and CdSe/CdS GS QDs, respectively.”

Un rivelatore in grado di rivelare il **20%** di questi fotoni avrebbe una **risoluzione energetica** dovuta alla sola **fluttuazione statistica** **<2% FWHM** a 3 MeV.



Quantum Dots – scintillatori per rivelatori

L'elevata resa in luce dei QD ha generato interesse per il loro utilizzo come **scintillatori per rivelatori di radiazione a basso costo ed alta risoluzione energetica**. Diversi studi sono stati effettuati negli ultimi anni al fine di studiare la risposta dei QD in seguito all'interazione di:

- elettroni di alta energia (... keV)
- raggi X
- alfa
- raggi gamma

Alcuni di questi studi hanno ottenuto ottimi risultati:

Semiconductor quantum dot scintillation under gamma-ray irradiation
S.E. Letant, T.F.Wang, Nano Letters 2006

- CdSe/CdS Quantum Dots
 - Sorgente di ^{241}Am (γ a 59 keV)
 - T ambiente
- **70600 photons/MeV**

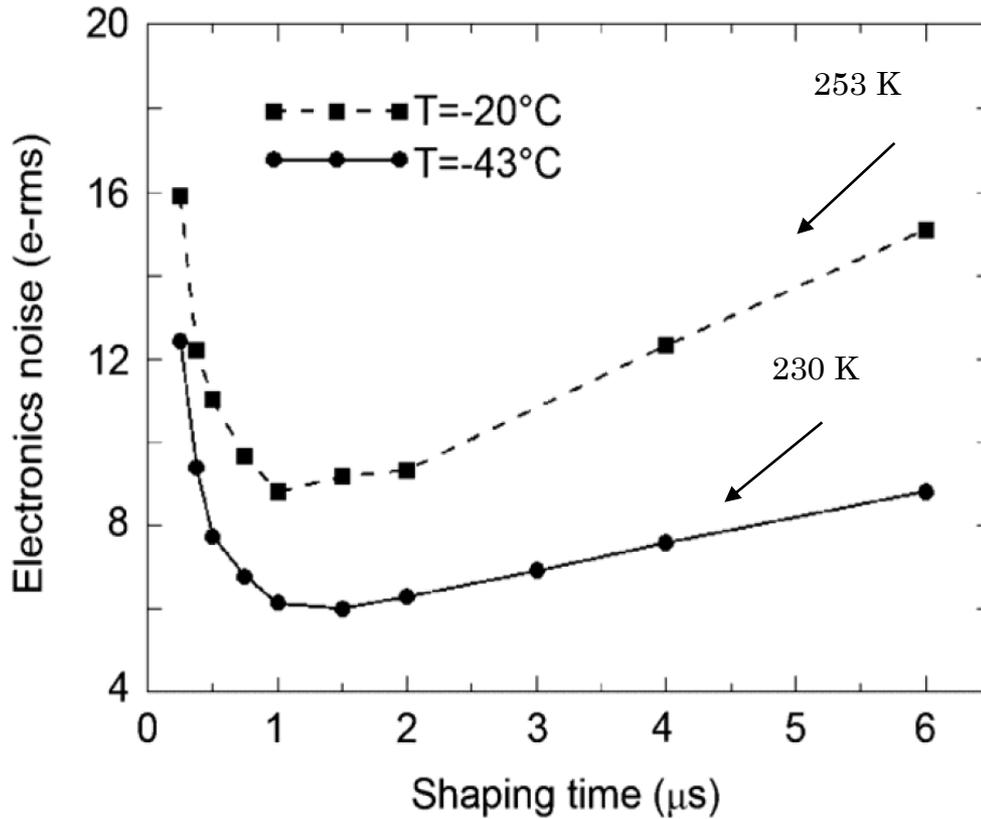
Ultrafast emission from colloidal nanocrystals under pulsed X-ray excitation
R.M. Turtos et al., JINST 2016

- CdSe/CdS Quantum Dots
 - X rays
 - T ambiente
- **22000 photons/MeV**

Un rivelatore in grado di rivelare il 20% di questi fotoni avrebbe una risoluzione energetica dovuta alla sola fluttuazione statistica <2% FWHM a 3 MeV.

$$R = \frac{2.355}{\sqrt{N_{phe}}}$$

Silicon Drift Detectors (SDD) @ PoliMi

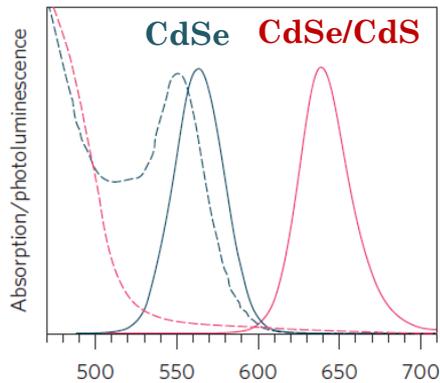


$$R = 2.355 \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_{SDD}} ENC_i^2}{N_{phe}^2}} =$$
$$= 2.355 \sqrt{\frac{15^2 \cdot 9}{(22000 \cdot 3 \cdot 0.2)^2}} < 1\%$$

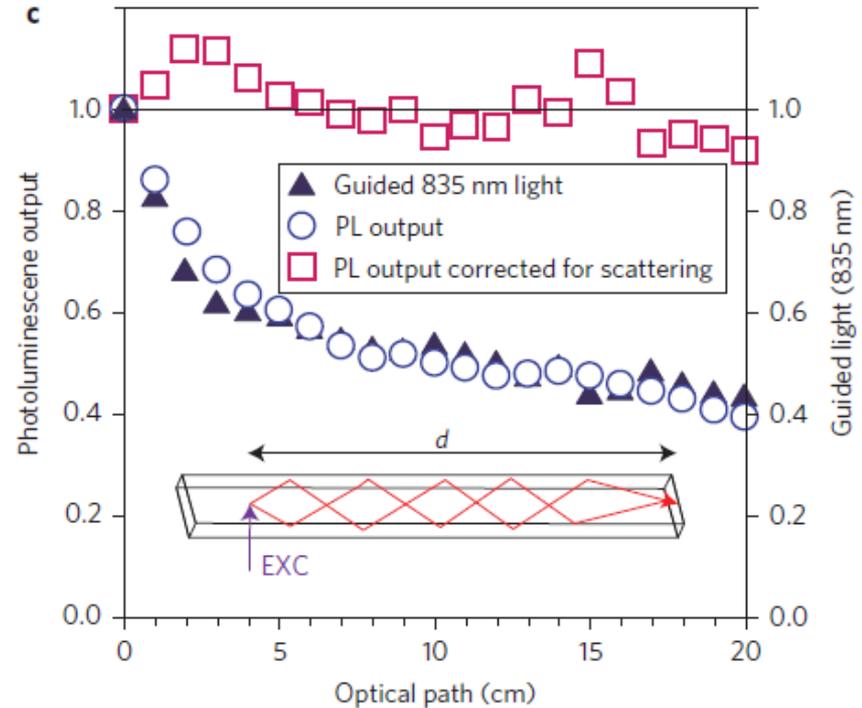
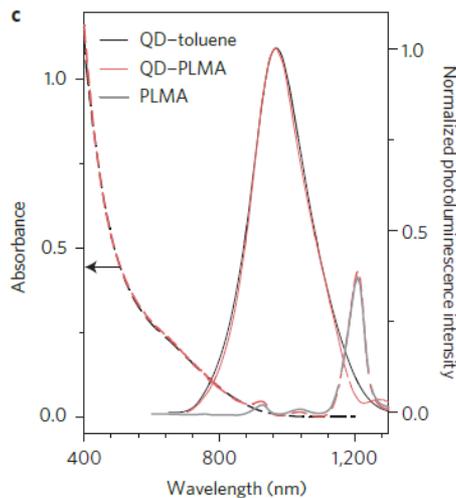
Quantum Dots con elevato Stokes shift

Per realizzare campioni con dimensioni \sim cm è fondamentale non avere autoassorbimento. Particolarmente interessanti risultano essere:

Giant shell QD di CdSe/CdS

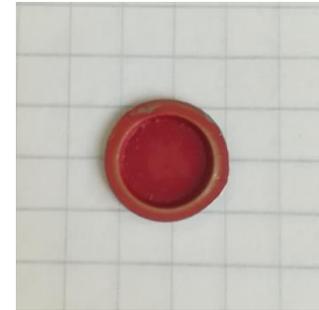


CuInSe₂ (CISe)

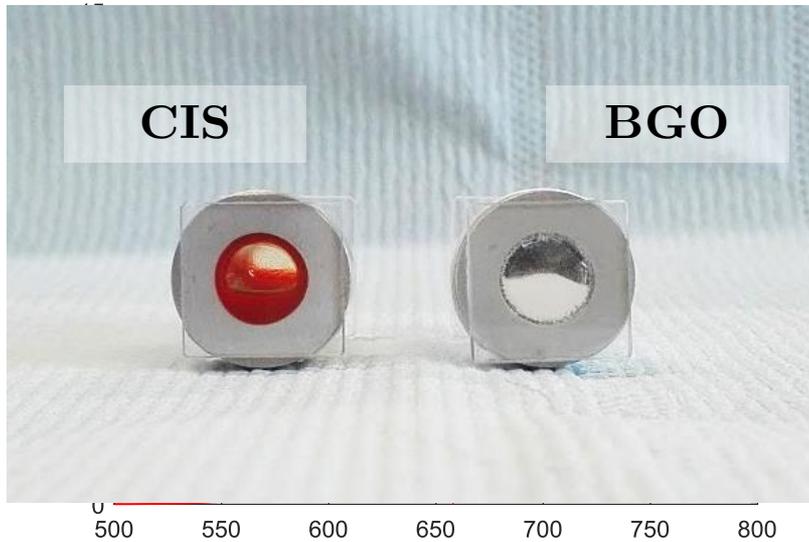


Misure di Radio Luminescenza (RL)

- Misura di luminescenza indotta da raggi X
 - $E_X < 32 \text{ keV}$
- Confronto con 90g di polvere di BGO
 - Per avere un punto di riferimento

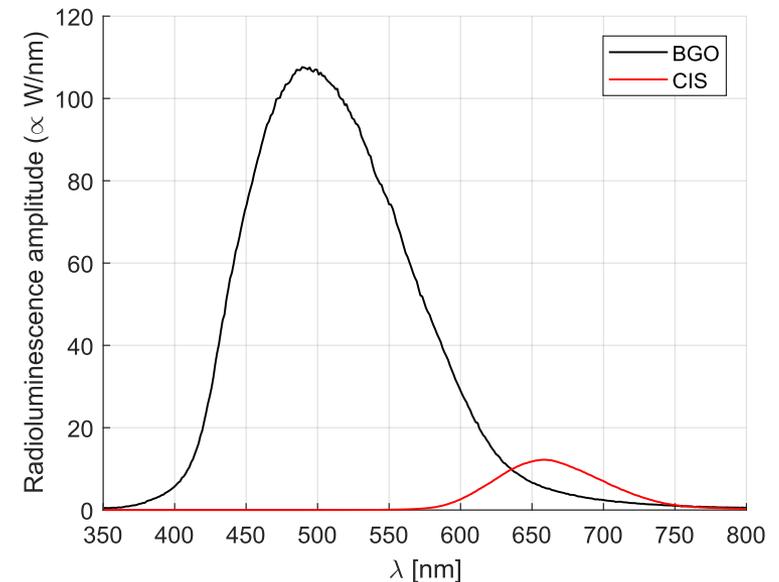


90 g di QDs di $\text{CuInS}_2/\text{ZnS}$ depositati



- Progettazione di un portacampione dedicato
 - Iniziativa a 658 sulla QD messa

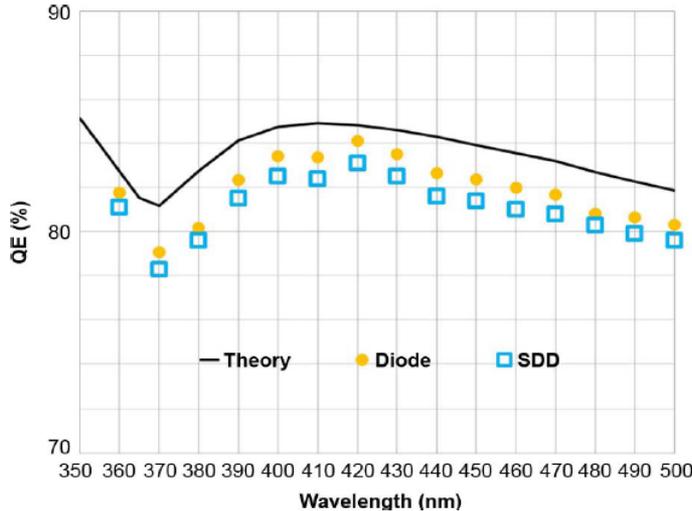
Applicazione per prime misure di scintillazione
costante per i sensori SDD



- BGO è circa 8 volte più intenso del QD, nelle stesse condizioni sperimentali

Silicon Drift Detectors (SDD) @ PoliMi

Produzione (FBK) ed integrazione dei sensori SDD.

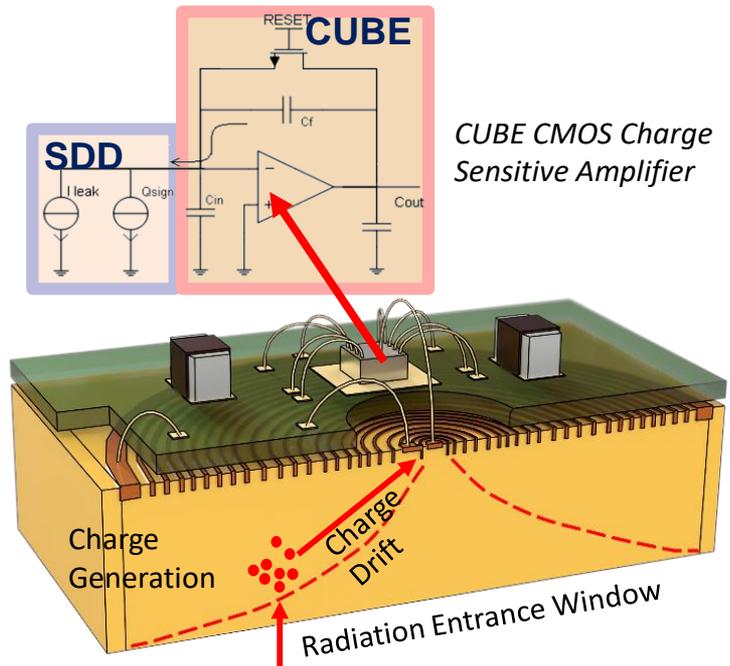


Efficienza quantica dei
fototubi commerciali ~ 35%

Le SDDs hanno efficienza quantica più elevate (~80%), basso rumore elettronico e non hanno allargamento intrinseco dovuto alla moltiplicazione.

Progressi nell'utilizzo di SDD come fotorivelatori per scintillatori:

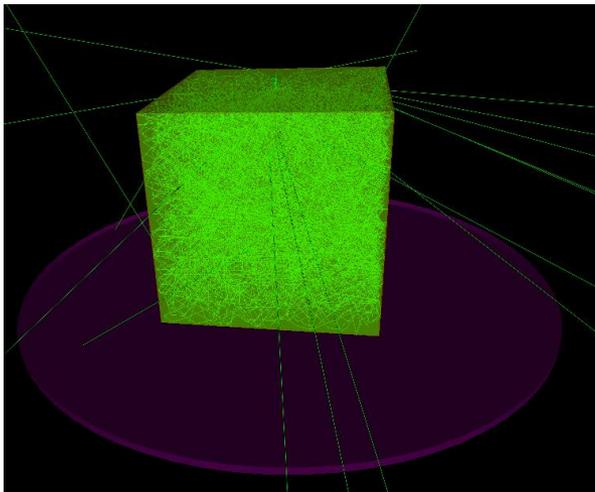
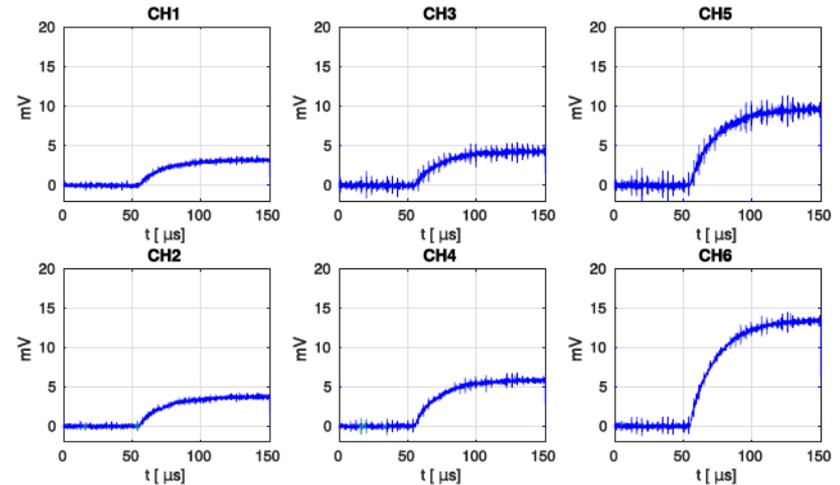
- Identificazione della migliore elaborazione del segnale massimizzando S/N
- Indicazioni per l'utilizzo di processamento digitale o ASICs per esperimenti su larga scala
- Array di SDD *vs* singola cella di grandi dimensioni
- QE massima alle lunghezza d'onda di emissione dei QD selezionati
- Affidabilità nell'accoppiamento ottico degli SDD agli scintillatori in termini di robustezza



Acquisizione & analisi dati

Array SDD \longrightarrow Preamp \longrightarrow ASICs \longrightarrow MCA

- Topologia evento \longleftarrow
- Autoassorbimento
- Light Yield
- Quenching Factor

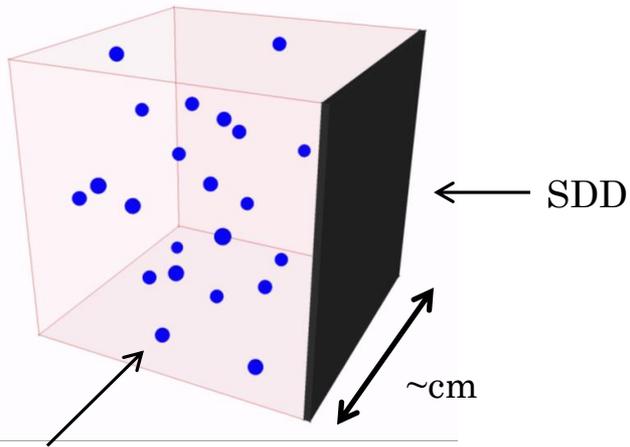


Simulazioni MC

Sviluppo di codici MC basati su Geant4 per caratterizzazione ed ottimizzazione del rivelatore attraverso lo studio della produzione e propagazione della luce di scintillazione.

Realizzazione e tests del rivelatore .

Costruzione del singolo modulo (QD+SDD) e dell'apparato sperimentale.
Ottimizzazione della raccolta di luce



Campione contenente QD

Misure con sorgenti radioattive
(X, γ e α esterne)

Alcuni campioni saranno prodotti con
contaminazioni α e β interne



Data analysis
(risoluzione energetica e pulse shape)

