

15

## Изучение стабильности образцов гадолинизированного жидкого органического сцинтиллятора

© М.Б. Громов<sup>1</sup>, Д.С. Кузнецов<sup>2</sup>, А.Е. Мурченко<sup>2</sup>,  
Г.Я. Новикова<sup>3</sup>, Б.А. Обиняков<sup>2</sup>, А.Ю. Оралбаев<sup>2,¶</sup>,  
К.В. Плакитина<sup>2</sup>, М.Д. Скорохватов<sup>2,4</sup>, С.В. Сухотин<sup>2</sup>,  
А.С. Чепурнов<sup>1</sup>, А.В. Этенко<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“, Москва, Россия

<sup>3</sup> Институт ядерных исследований РАН, Москва, Россия

<sup>4</sup> Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“, Москва, Россия

¶ E-mail: amr.aldiyargmail.com

Поступило в Редакцию 2 ноября 2017 г.

На основе линейного алкилбензола разработана методика приготовления образцов жидкого органического сцинтиллятора (ЖОС), допированного гадолинием (Gd-ЖОС), для использования в качестве вещества мишени детекторов реакторных антинейтрино. Представлены результаты долговременных измерений световых выходов Gd-ЖОС, контактирующего с акрилом и нержавеющей сталью, свидетельствующие о совместимости Gd-ЖОС с этими материалами. Измерения проводились с двумя идентичными образцами Gd-ЖОС одновременно в двух экспериментальных детекторах, различающихся только материалом стенок чувствительного объема: акрил в одном и нержавеющая сталь в другом. Результаты измерений в течение года показали практически одинаковое и небольшое падение световых выходов в обоих детекторах. Оба материала могут использоваться в конструкциях детектора, контактирующих с Gd-ЖОС. Подобные параллельные измерения проводились впервые.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.06.45768.17107

Эффективность применения жидких органических сцинтилляторов с добавками гадолиния (Gd-ЖОС) для изучения фундаментальных

свойств нейтрино была убедительно продемонстрирована в таких экспериментах, как Double Chooz [1], Daya Bay [2], RENO [3] и др. Анти-нейтрино, испускаемые из активной зоны реактора, регистрируются в мишени этих детекторов посредством реакции обратного бета-распада

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n, \quad E_{thr} = 1.8 \text{ MeV},$$

где  $E_{thr}$  — пороговая энергия реакции. Для увеличения эффективности регистрации нейтронов ЖОС допируют Gd-элементом с большим сечением захвата тепловых нейтронов ( $\sigma \sim 250\,000 \text{ b}$ ).

В международной экспериментальной практике при работе с Gd-ЖОС в основном используются определенные материалы, такие как акрил или тефлон. В работе [4] было показано, что нержавеющая сталь марок AISI 316 и 304 может использоваться для хранения ЖОС на основе линейного алкилбензола (ЛАБ) без добавки Gd. Данные по измерению свойств Gd-ЖОС на основе ЛАБ при взаимодействии с нержавеющей сталью в литературе не встречались. В связи с этим было проведено исследование стабильности Gd-ЖОС в двух идентичных экспериментальных детекторах со стенками чувствительного объема из акрила и из нержавеющей стали.

Использование ЛАБ в качестве основы ЖОС обусловлено следующими причинами. ЛАБ обладает необходимыми физическими свойствами и отвечает требованиям безопасности: низкая токсичность, высокая температура вспышки ( $147 \text{ }^\circ\text{C}$ ), высокая прозрачность, и его стоимость невелика по сравнению со стоимостью других растворителей (додекан, толуол, ксилол, ундекан и др.). В настоящей работе использовался ЛАБ производства завода ЛАБ/ЛАБС „ПО ООО „Киришнефтеоргсинтез“ (Кириши, Ленинградская область).

В качестве первичной сцинтилляционной добавки был выбран РРО — 2,5 дифенилоксазол ( $\text{C}_{15}\text{H}_{11}\text{ON}$ ), а в качестве вещества, смещающего спектр в область большей чувствительности спектра фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) ( $\sim 410 \text{ nm}$ ), — РОРОР — 1,4-ди (5-фенил-2-оксазол) бензол ( $\text{C}_{24}\text{H}_{16}\text{O}_2\text{N}_2$ ) [5]. Концентрации первичной и вторичной добавок были выбраны на уровне 3 и 0.03 г/л соответственно. Отработка методики приготовления ЖОС проводилась на тестовых образцах объемом 30 л. Интегральное содержание флюоров в каждом из образцов составляло 90 г РРО и 0.9 г РОРОР.

Способ приготовления концентрата Gd-комплекса во многом влияет на стабильность будущего Gd-ЖОС. Основная проблема состоит в том,

что соединения гадолиния плохо растворяются в ЛАБ. В работе [6] исследовались три различные методики приготовления гадолиниевого концентрата. В данной работе концентрат Gd получался по третьей методике, после чего его добавляли в исследуемые 30-литровые объемы в количестве, необходимом для обеспечения содержания гадолиния в ЖОС на уровне 1 g/l. Таким образом, тестируемый Gd-ЖОС в обоих детекторах имел состав ЛАБ + 3 g/l PPO + 0.03 g/l POPOP + 1 g/l Gd.

Для проведения измерений были разработаны и изготовлены два экспериментальных детектора Д1 и Д2 (рис. 1). Корпуса детекторов сделаны из нержавеющей стали (AISI 304) в форме цилиндров диаметром 300 mm и высотой 750 mm. Чувствительный объем каждого детектора — мишень — составлял 30 l. В геометрическом центре мишени предусмотрен канал для образцового гамма источника. Над мишенью расположен буферный объем детектора ( $\sim 20$  l), который заполняется чистым ЛАБ. На крышках детекторов установлены ФЭУ Hamamatsu R5912, просматривающие мишень через буфер. Фотокатоды ФЭУ погружены в ЛАБ, который служит для увеличения светосбора и защиты мишени от излучения  $^{40}\text{K}$ , содержащегося в стеклах ФЭУ.

В детектор Д1 вставлены два акриловых стакана. Один стакан плотно соприкасается с металлическими стенками и занимает всю высоту детектора. Нижняя половина этого стакана заполняется ЖОС и является мишенью. Второй стакан, установленный внутри первого над мишенью, является буфером. Зазор между стенками акриловых стаканов составляет  $\sim 3$ –4 mm. Таким образом, в детекторе Д1 ЖОС не контактирует с нержавеющей сталью.

Детектор Д2 с помощью выпуклой мембраны из акрила, уплотненной в корпусе детектора, разделен по вертикали на две части. Пространство под мембраной — мишень, а пространство над мембраной — буфер. ЖОС мишени в детекторе Д2 контактирует со стенками из нержавеющей стали.

Уровень ЖОС в мишенях обоих детекторов подбирался таким образом, чтобы создавался полный оптический контакт и с акриловым стаканом в детекторе Д1, и с мембраной в детекторе Д2. Коэффициенты преломления ЛАБ и акрила сравнимы ( $n = 1.48$  и  $1.50$ ), что минимизирует потери излученных ЖОС фотонов на границах двух объемов. В обоих детекторах предусмотрены системы для заполнения/откачки ЖОС и ЛАБ и для барботирования ЖОС азотом с целью удаления кислорода (на рис. 1 не показаны). Для увеличения светосбора стенки

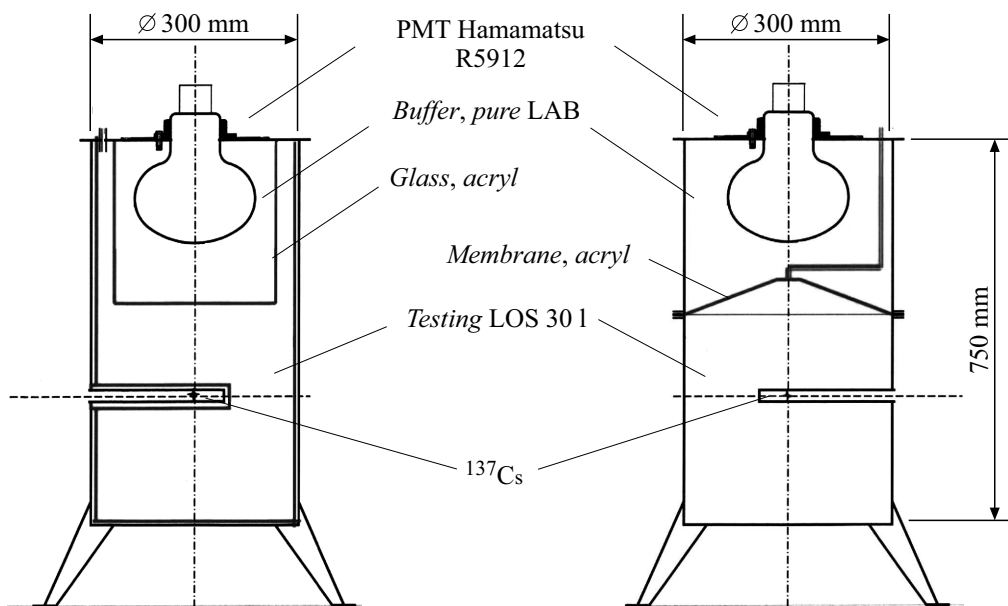
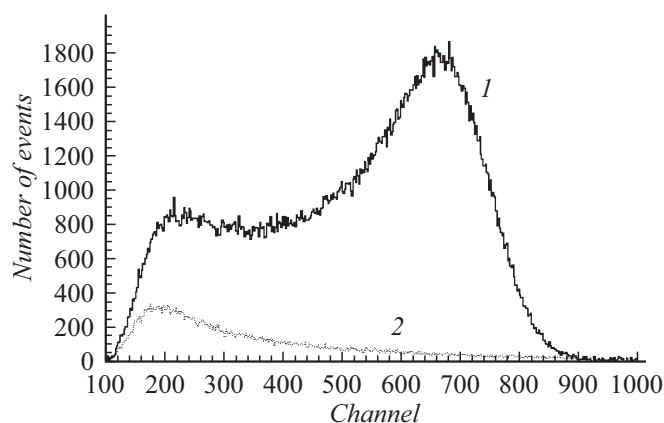


Рис. 1. Детекторы Д1 (слева) и Д2 (справа).

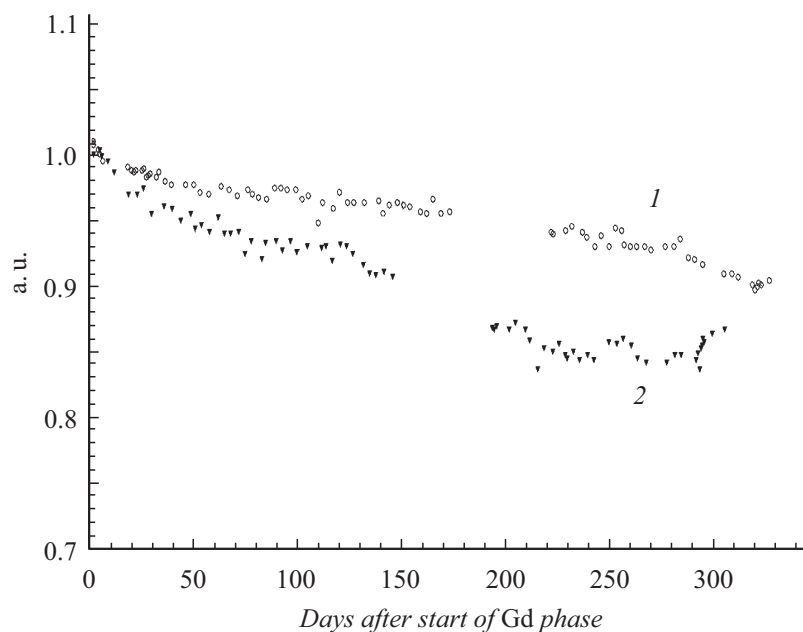


**Рис. 2.** Спектр ЖОС с источником:  $^{137}\text{Cs}$ + фон (1); спектр фона на одном из детекторов (2).

детекторов покрыты светоотражающим материалом „Lumirror E6SRc“, который не взаимодействует с ЖОС.

На первом этапе тестирования объем мишени в обоих детекторах заполнялся ЖОС без гадолиния. В центр мишени помещался источник гамма-квантов  $^{137}\text{Cs}$  ( $E_\gamma = 662 \text{ keV}$ ). Характерный энергетический спектр источника, измеренный в детекторе Д1, приведен на рис. 2 (кривая 1). Спектр фона (кривая 2) был получен в детекторе без источника.

Критериями стабильности ЖОС при тестировании являлись стабильность его световыхода, которая определялась по положению пика спектра гамма-излучения  $^{137}\text{Cs}$ , и его энергетическое разрешение. Измерения с источником проводились еженедельно. В течение первых суток тестирования в обоих детекторах наблюдалось ступенчатое возрастание световыхода, которое можно объяснить постепенным выходом кислорода, попавшего в ЖОС на стадиях его приготовления и при заполнении детекторов. Для проверки наличия кислорода в ЖОС и его влияния на световыход было проведено барботирование детекторов азотом. После барботирования в обоих детекторах наблюдалось резкое увеличение световыхода на 15%, что свидетельствовало об интенсивном вытеснении кислорода из ЖОС азотом.



**Рис. 3.** Деградация Gd-ЖОС в детекторе из нержавеющей стали (1) и в детекторе со стенками из акрила (2). По оси ординат — значения световыхода, нормированные на значения в первый день измерений с Gd-ЖОС.

На следующем этапе тестирования в объемы мишеней обоих детекторов был добавлен гадолиниевый концентрат. Первые измерения после добавления Gd показали резкое падение световыхода на  $\sim 10\%$  в обоих детекторах. Это связано с тем, что любые добавки, не являющиеся флюорами, как правило, приводят к поглощению ими части фотонов и, следовательно, к уменьшению световыхода. Последующее тестирование в течение 300 суток в детекторе Д1 и 320 суток в детекторе Д2 показало плавное снижение световыхода в обоих детекторах. В конце тестирования с целью проверки наличия кислорода в Gd-ЖОС было проведено финальное барботирование в обоих детекторах, однако оно не привело к повышению световыхода, что свидетельствовало об отсутствии кислорода в Gd-ЖОС. Изменение световыхода Gd-ЖОС за время тестирования в детекторах Д1 и Д2 показано на рис. 3.

Выполненные измерения стабильности Gd-ЖОС показали, что на момент окончания тестирования световыход Gd-ЖОС в детекторе Д1 со стенками из акрила упал на 15%, а в детекторе Д2 из нержавеющей стали — на 10%. Причины деградации сцинтиллятора не выявлены однозначно. Наблюдаемое падение световыхода ЖОС после добавления гадолиния может быть связано с образованием координационных связей между ионом гадолиния и молекулой PPO, что может привести к потере способности молекулы PPO переизлучать свет. Однако для однозначного ответа требуется дальнейшее изучение этого вопроса.

Результаты измерений хорошо согласуются с данными работы [4]. Ввиду возможности учета уменьшения световыхода с помощью аппаратно-программных средств Gd-ЖОС, приготовленный по приведенной выше методике, может быть использован в детекторах реакторных антинейтрино. Полученные конечные данные тестирования для детектора из нержавеющей стали на ~ 5% выше, чем для детектора из акрила. Таким образом, материалом стенок чувствительного объема детекторов реакторных антинейтрино может быть как акрил, так и нержавеющая сталь марки AISI (304).

Следует отметить, что долговременные измерения стабильности Gd-ЖОС в детекторах, различающихся лишь материалом, контактирующим с Gd-ЖОС, проводились впервые.

Работа выполнена при поддержке НИЦ „Курчатовский институт“, а также РФФИ (грант 16-12-10369).

## Список литературы

- [1] *Abe Y., dos Anjos J.C., Barriere J.C.* et al. // *J. High Energy Phys.* 2014. N 10. P. 86.
- [2] *An F.P., An Q., Bai J.Z.* et al. // *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A.* 2012. V. 685. P. 78–97.
- [3] *Ahn J.K., Chebotaryov S., Choi J.H.* et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 108. N 19. P. 191802.
- [4] *Chen H.-T., Yu B.-X., Shan Q.* et al. // *Chin. Phys. C.* 2015. V. 39. N 6. P. 066002.
- [5] *Скорохватов М.Д., Сухотин С.В., Нурахов Н.Н., Этенко А.В.* // *ДАН.* 2011. Т. 436. № 6. С. 753–755.
- [6] *Новикова Г.Я., Бакулина Н.И., Вологжанина А.В., Локшин Б.В., Моргалюк В.П.* // *ЖНХ.* 2016. Т. 61. № 2. С. 270–276.