

15

Оптическая и химическая стабильность жидкого сцинтиллятора детектора iDREAM на Калининской атомной электростанции

© А.В. Абрамов¹, М.Б. Громов^{2,3}, И.Н. Жутиков¹, А.В. Константинов¹, Д.С. Кузнецов¹, Е.А. Литвинович^{1,4}, Г.А. Лукьянченко⁵, И.Н. Мачулин^{1,4}, А.Е. Мурченко¹, А.М. Немерюк¹, Р.Р. Нугманов¹, А.Ю. Оралбаев^{1,4}, Д.В. Попов^{1,4}, А.А. Растимешин^{1,4}, С.В. Сухотин¹, А.С. Чепурнов², Д.А. Чмыхало^{1,4}, А.В. Этенко^{1,4}

¹ Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“, Москва, Россия

² Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

³ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Московская обл., Россия

⁴ Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“, Москва, Россия

⁵ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

E-mail: Litvinovich_EA@nrcki.ru

Поступило в Редакцию 16 мая 2023 г.

В окончательной редакции 30 мая 2023 г.

Принято к публикации 31 мая 2023 г.

Проведены исследования оптической и химической стабильности Gd-содержащего жидкого сцинтиллятора, синтезированного для применения в прототипе промышленного детектора реакторных антинейтрино iDREAM. Показано, что в условиях поддержания температуры на уровне менее $\sim 20^\circ\text{C}$ и исключения контакта с воздухом сцинтилляционный раствор объемом 1.1 м^3 сохраняет стабильность на протяжении двух лет наблюдений.

Ключевые слова: нейтринный детектор, жидкий сцинтиллятор, реакторные антинейтрино.

DOI: 10.21883/PJTF.2023.15.55861.19627

Долговременная стабильность свойств допированных гадолинием жидких органических сцинтилляторов (Gd-ЖОС) необходима для обеспечения длительного набора статистики нейтринных взаимодействий. Гадолиний обладает высоким сечением захвата тепловых нейтронов и вводится в сцинтиллятор для повышения эффективности нейтринных детекторов к регистрации нейтрона, который образуется при взаимодействии антинейтрино с протоном по реакции обратного бета-распада: $\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$. Начиная с первых исследований в нейтринной лаборатории на Ровенской АЭС в 1980-х годах в целом ряде нейтринных экспериментов не удавалось приготовить Gd-ЖОС большого объема (1 м^3 и более), которые сохраняли бы долговременную оптическую и химическую стабильность [1–3].

К настоящему времени в мировой практике получены данные по стабильности Gd-ЖОС для сцинтилляционных композиций на основе уайт-спирита [4], фенилксиллэтана [5] и линейного алкилбензола (ЛАБ) [6,7]. Во всех случаях концентрация гадолиния не превышала 1 г/л . Ранее в рамках разработки и подготовки к испытаниям нейтринного детектора iDREAM (industrial Detector of Reactor Antineutrinos for Monitoring) нами проводились исследования образцов сцинтилляционных композиций на основе ЛАБ [8], были синтезированы образцы Gd-ЖОС объемом до 30 л и изучалась их стабильность [9]. В 2021 г. приготовленный нами Gd-ЖОС объемом 1.1 м^3 был залит в детектор iDREAM, который

был установлен в поток антинейтрино на Калининской АЭС (КАЭС). Далее представлены результаты наблюдений за оптической и химической стабильностью этого Gd-ЖОС.

Детектор iDREAM спроектирован для мониторинга ядерного реактора по нейтринному излучению из активной зоны. Детектор размещен в подреакторном помещении на отметке 0.0 энергоблока № 3 КАЭС, на расстоянии 20 м от активной зоны реактора ВВЭР-1000 (тепловая мощность $P_{th} = 3000\text{ MW}$). Мишенью для нейтрино служит 1.1 м^3 Gd-ЖОС на основе ЛАБ с добавкой металлического гадолиния в составе 3,5,5-триметилгексаноата гадолиния. Концентрация гадолиния составляет 1 г/л . Для исключения контакта Gd-ЖОС с воздухом под герметичной крышкой детектора поддерживается избыточное давление азота в диапазоне $0.5\text{--}1.5\text{ кПа}$. Первоначально в детектор был залит сцинтиллятор без гадолиния, затем в него был добавлен концентрированный раствор 3,5,5-триметилгексаноата гадолиния в ЛАБ (Gd-комплекс). Подробное описание детектора и методики приготовления Gd-ЖОС представлено в работе [10].

Условия проведения измерений в подреакторном помещении промышленного реактора предполагают эксплуатацию нейтринного детектора при температуре выше 30°C . Известно, что для Gd-ЖОС на основе ЛАБ это может приводить к деградации их оптических свойств [11]. В процессе измерений на КА-

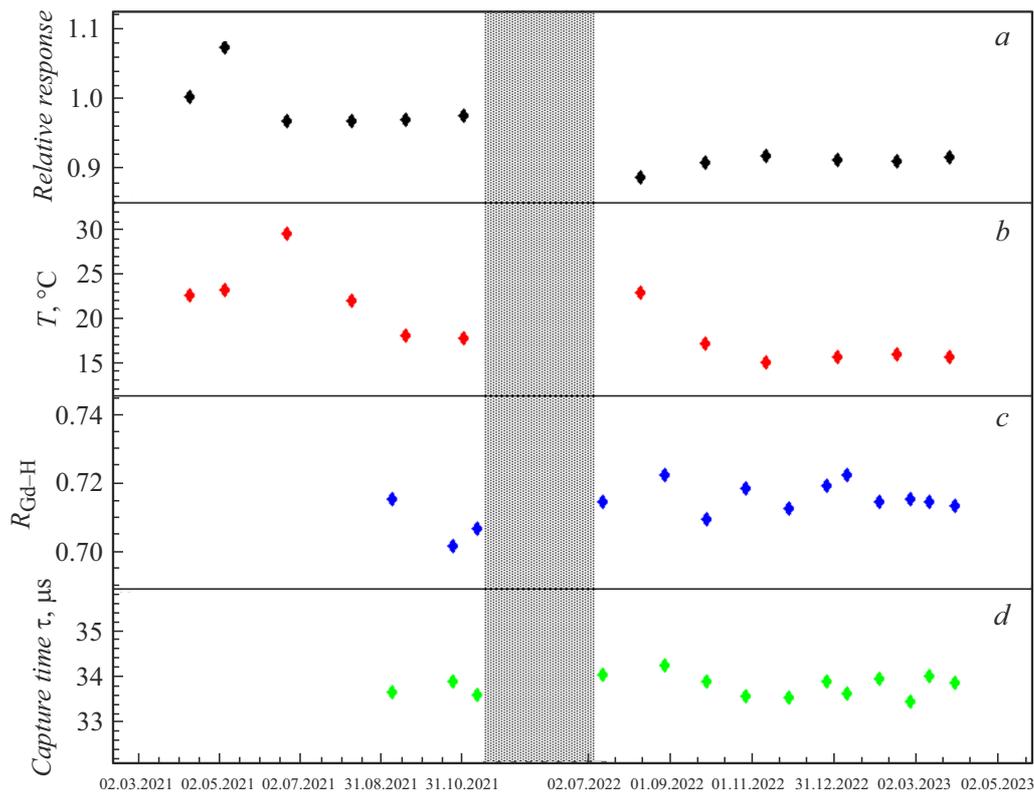


Рис. 1. Относительный отклик (*a*), температура Gd-ЖОС (*b*), $R_{\text{Gd-H}}$ (*c*) и время захвата нейтрона τ в Gd-ЖОС детектора iDREAM (*d*). Во время остановки детектора (штриховка) измерения не проводились.

ЭС температура Gd-ЖОС поддерживается в пределах $\sim 12\text{--}20^\circ\text{C}$ путем кондиционирования воздуха внутри защиты детектора. Поскольку защита окружает детектор со всех сторон, его охлаждение происходит внутри закрытого объема. Благодаря этому минимизируется влияние сезонно меняющейся температуры окружающего воздуха как на Gd-ЖОС, так и на фотозлектронные умножители (ФЭУ), квантовая эффективность которых зависит от температуры. Каждый ФЭУ контролируется по напряжению и потребляемому току с точностью 0.2% [10]. Стабильность выходных сигналов сумматоров-дискриминаторов, формирующих суммарные сигналы всех ФЭУ, контролируется при помощи генераторного калибровочного импульса.

При деградации оптических свойств сцинтиллятора ожидается потеря его прозрачности и/или световыхода, что должно приводить к уменьшению светособирания и, следовательно, падению отклика детектора. Мониторинг оптических свойств Gd-ЖОС проводился на основе наблюдений за изменением светособирания детектора. Наблюдалось относительное изменение положения пика полного поглощения γ -квантов источника ^{60}Co ($E_\gamma = 1.17 + 1.33 \text{ MeV}$) в центре детектора. Положение пика определялось путем его аппроксимации нормальным распределением. За единицу принималось положение пика, измеренное в первый день после добавления Gd-комплекса в сцинтиллятор и его перемешивания,

которое осуществлялось продувкой азотом. Отметим, что из-за высокого пенообразования азот подавался под малым давлением ($\sim 10 \text{ kPa}$), вследствие чего перемешивание было неэффективным.

Относительное изменение отклика детектора представлено на рис. 1, *a* (значения усреднены за 1.5 месяца). В первые 1–2 месяца отмечался 8% рост светособирания, который может быть связан с постепенным повышением прозрачности Gd-ЖОС по мере его перемешивания в ходе диффузионной конвекции. Последовавшее за этим падение отклика до уровня ~ 0.97 может быть связано с ростом температуры Gd-ЖОС, охлаждение которого в это время не проводилось. Температура Gd-ЖОС поднималась до 33°C (усредненные за 1.5 месяца показатели температуры представлены на рис. 1, *b*). Сразу после этого было реализовано принудительное кондиционирование воздуха внутри защиты детектора.

С декабря 2021 г. по июль 2022 г. детектор был выключен. В этот период избыточное давление азота под крышкой не поддерживалось и охлаждение Gd-ЖОС не проводилось. При возобновлении набора данных было отмечено 10% падение отклика до уровня ~ 0.88 (рис. 1, *a*). Gd-ЖОС был продут азотом, избыточная атмосфера азота под крышкой и охлаждение были восстановлены. В дальнейшем (на протяжении 2022 г.) наблюдался небольшой ($\sim 3\%$) рост отклика, который можно объяснить медленным повышением прозрачно-

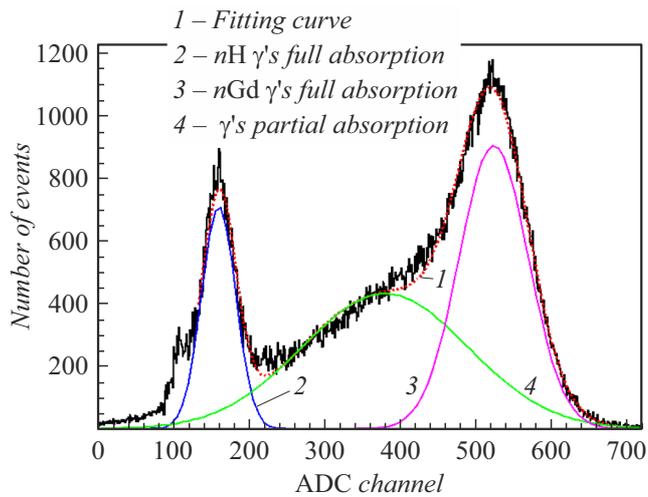


Рис. 2. Зарядовый спектр захватов нейтронов от источника ^{252}Cf в центре детектора iDREAM и кривая наилучшей подгонки (линия 1). 2 и 3 — спектры полного поглощения γ -квантов от захвата нейтронов водородом и гадолинием соответственно, 4 — спектр неполного поглощения γ -квантов.

сти, происходящим вследствие оседания частичек пыли, и всплыванием микропузырьков растворенных газов, образовавшихся в ходе продувки. Такой же эффект наблюдался в ближнем детекторе Double Chooz [5].

Химическая стабильность Gd-ЖОС характеризуется изменением растворимости и/или однородности распределения Gd-комплекса в составе Gd-ЖОС. В качестве меры химической стабильности Gd-ЖОС обычно рассматривается отношение числа захватов нейтронов на гадолинии и водороде, которое определяется как

$$\frac{N_{\text{Gd}}}{N_{\text{H}}} = \frac{\sigma_{\text{Gd}} \rho_{\text{Gd}}}{\sigma_{\text{H}} \rho_{\text{H}}},$$

где σ_{Gd} и σ_{H} — сечения захвата тепловых нейтронов на гадолинии и водороде соответственно, а ρ_{Gd} и ρ_{H} — плотности гадолиния и водорода в Gd-ЖОС.

Мониторинг химической стабильности проводился при помощи источника быстрых нейтронов ^{252}Cf в центре детектора начиная с сентября 2021 г. События захвата нейтронов в Gd-ЖОС отбирались по методике задержанных совпадений: сначала детектор регистрирует мгновенные γ -кванты от спонтанных делений ^{252}Cf (мгновенное событие), а затем γ -кванты от захвата замедлившихся до тепловых энергий нейтронов ядрами ^{157}Gd ($\sigma = 2.5 \cdot 10^5$ b, $E_{\gamma} = 7.9$ MeV) и ^{155}Gd ($\sigma = 5.6 \cdot 10^4$ b, $E_{\gamma} = 8.5$ MeV) или водорода ($\sigma = 0.332$ b, $E_{\gamma} = 2.23$ MeV). Время захвата нейтрона τ определяется временем его замедления и диффузии в Gd-ЖОС и соответствует времени между мгновенным и задержанным событиями. Зарядовый спектр событий захвата нейтронов от источника ^{252}Cf представлен на рис. 2. Пик в области ~ 160 каналов аналого-цифрового преобразователя (ADC) соответствует захвату нейтро-

нов водородом, а пик в области ~ 520 каналов ADC — гадолинием.

В небольших детекторах типа iDREAM определить полные числа захватов нейтронов N_{Gd} и N_{H} довольно проблематично. Причина этого состоит в том, что быстрые нейтроны от ^{252}Cf разлетаются по детектору, и их захваты происходят в том числе и в удаленных от центра областях Gd-ЖОС. Для таких событий регистрируется неполное поглощение энергии испущенных γ -квантов за счет краевого эффекта, причем суммарное энерговыделение может быть ниже порога детектора. Для характеристики химической стабильности была взята величина $R_{\text{Gd-H}} = N'_{\text{Gd}} / (N'_{\text{H}} + N'_{\text{Gd}})$, в которой N'_{Gd} и N'_{H} были определены как интегралы в пиках полного поглощения γ -квантов в результате захватов нейтронов гадолинием и водородом соответственно (кривые 3 и 2 на рис. 2). Таким образом, $R_{\text{Gd-H}}$ имеет смысл доли захватов нейтронов гадолинием относительно полного числа захватов гадолинием и водородом без учета краевого эффекта. Измеренные значения $R_{\text{Gd-H}}$ приведены на рис. 1, с. Величина $R_{\text{Gd-H}}$ является стабильной в пределах $\pm 2.4\% (\pm 3\sigma)$.

На рис. 1, d представлены результаты измерения времени захвата нейтрона τ , которое также может изменяться из-за деградации химических свойств Gd-ЖОС. Как следует из рисунка, время захвата нейтрона τ является стабильным в пределах $\pm 2\% (\pm 3\sigma)$.

Таким образом, проведены исследования оптической и химической стабильности Gd-ЖОС детектора iDREAM. Время наблюдений составило два года. В условиях поддержания температуры Gd-ЖОС на уровне ниже 20°C отклик детектора оставался стабильным. При отсутствии охлаждения и избыточной атмосферы азота под крышкой детектора в период его остановки было отмечено падение светособирания на уровне $\sim 10\%$, светособирание частично восстановилось после продувки и перехода к штатному охлаждению. Признаков падения химической стабильности Gd-ЖОС не обнаружено.

Опыт детектора iDREAM показывает, что в условиях постоянной (менее 20°C) температуры и минимизации контакта с воздухом приготовленный нами Gd-ЖОС можно использовать в долгосрочных измерениях в рамках решения фундаментальных и прикладных задач физики реакторных антинейтрино.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке РФФ (проект № 22-12-00219).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] А.И. Афонин, С.Н. Кетов, В.И. Копейкин, Л.А. Микаэлян, М.Д. Скорохватов, С.В. Толоконников, *ЖЭТФ*, **94** (2), 1 (1988). [A.I. Afonin, S.N. Ketov, V.I. Kopeikin, L.A. Mikaelyan, M.D. Skorokhvatov, S.V. Tolokonnikov, *JETP*, **67**, 213 (1988)].
- [2] A.G. Piepke, S.W. Moser, V.M. Novikov, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **432**, 392 (1999). DOI: 10.1016/S0168-9002(99)00530-6
- [3] M. Apollonio, A. Baldini, C. Bemporad, E. Caffau, F. Ceci, Y. Déclais, H. de Kerret, B. Dieterle, A. Etenko, L. Foresti, J. George, G. Giannini, M. Grassi, Y. Kozlov, W. Kropp, D. Kryn, M. Laiman, C.E. Lane, B. Lefièvre, I. Machulin, A. Martemyanov, V. Martemyanov, L. Mikaelyan, D. Nicoló, M. Obolensky, R. Pazzi, G. Pieri, L. Price, S. Riley, R. Reeder, A. Sabelnikov, G. Santin, M. Skorokhvatov, H. Sobel, J. Steele, R. Steinberg, S. Sukhotin, S. Tomshaw, D. Veron, V. Vyrodrov, *Eur. Phys. J. C*, **27**, 331 (2003). DOI: 10.1140/epjc/s2002-01127-9
- [4] I.R. Barabanov, L.B. Bezrukov, C.M. Cattadori, N.A. Danilov, A. di Vacri, Yu.S. Krilov, L. Ioannucci, E.A. Yanovich, M. Aglietta, A. Bonardi, G. Bruno, W. Fulgione, E. Kemp, A.S. Malguin, A. Porta, M. Selvi, *JINST*, **5**, P04001 (2010). DOI: 10.1088/1748-0221/5/04/P04001
- [5] H. de Kerret, Y. Abe, C. Aberle, T. Abrahão, J.M. Ahijado, T. Akiri, J.M. Alarcón, J. Alba, H. Almazan, J.C. dos Anjos et al. (240 more), *Eur. Phys. J. C*, **82**, 804 (2022). DOI: 10.1140/epjc/s10052-022-10726-x
- [6] J.S. Park, J. Lee, I.S. Yeo, W.Q. Choi, J.K. Ahn, J.H. Choi, S. Choi, Y. Choi, H.I. Jang, J.S. Jang, E.J. Jeon, K.K. Joo, B.R. Kim, H.S. Kim, J.Y. Kim, S.B. Kim, S.Y. Kim, W. Kim, Y.D. Kim, J.H. Lee, J.K. Lee, I.T. Lim, K.J. Ma, M.Y. Pac, I.G. Park, K.S. Park, K. Siyeon, S.H. So, S.S. Stepanyan, I. Yu, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **707**, 45 (2013). DOI: 10.1016/j.nima.2012.12.121
- [7] B.-Z. Hu, *J. Phys.: Conf. Ser.*, **888**, 012127 (2017). DOI: 10.1088/1742-6596/888/1/012127
- [8] М.Д. Скорохватов, С.В. Сухотин, Н.Н. Нурахов, А.В. Этенко, *ДАН*, **436** (6), 753 (2011). [M.D. Skorokhvatov, S.V. Sukhotin, N.N. Nurakhov, A.V. Etenko, *Dokl. Phys.*, **56**, 89 (2011). DOI: 10.1134/S1028335811020157].
- [9] М.Б. Громов, Д.С. Кузнецов, А.Е. Мурченко, Г.Я. Новикова, Б.А. Обиняков, А.Ю. Оралбаев, К.В. Плакитина, М.Д. Скорохватов, С.В. Сухотин, А.С. Чепурнов, А.В. Этенко, *Письма в ЖТФ*, **44** (6), 59 (2018). DOI: 10.21883/PJTF.2018.06.45768.17107 [M.B. Gromov, D.S. Kuznetsov, A.E. Murchenko, G.Ya. Novikova, B.A. Obinyakov, A.Yu. Oralbaev, K.V. Plakitina, M.D. Skorokhvatov, S.V. Sukhotin, A.S. Chepurnov, A.V. Etenko, *Tech. Phys. Lett.*, **44**, 251 (2018). DOI: 10.1134/S1063785018030185].
- [10] A. Abramov, A. Chepurnov, A. Etenko, M. Gromov, A. Konstantinov, D. Kuznetsov, E. Litvinovich, G. Lukyanchenko, I. Machulin, A. Murchenko, A. Nemeryuk, R. Nugmanov, B. Obinyakov, A. Oralbaev, A. Rastimeshin, M. Skorokhvatov, S. Sukhotin, *JINST*, **17**, P09001 (2022). DOI: 10.1088/1748-0221/17/09/P09001
- [11] A. Sorensen, S. Hans, A.R. Junghans, B.v. Krosigk, T. Kogler, V. Lozza, A. Wagner, M. Yeh, K. Zuber, *Eur. Phys. J. C*, **78**, 9 (2018). DOI: 10.1140/epjc/s10052-017-5484-3