

15

## Синтез и испытания 1 м<sup>3</sup> жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола

© Д.С. Кузнецов<sup>1</sup>, Е.А. Литвинович<sup>1,2,¶</sup>, А.Е. Мурченко<sup>1</sup>, Б.А. Обиняков<sup>1</sup>, А.Ю. Оралбаев<sup>1</sup>, С.В. Сухотин<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“, Москва, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“, Москва, Россия

¶ E-mail: Litvinovich\_EA@nrcki.ru

Поступило в Редакцию 19 июля 2018 г.

Представлены результаты измерений стабильности жидкого органического сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола в объеме 1 м<sup>3</sup>. Измерения проводились при помощи детектора реакторных антинейтрино iDREAM в НИЦ „Курчатовский институт“. Систематической деградации световых выходов сцинтиллятора за время наблюдений 225 суток не обнаружено. Это первые в России долгосрочные измерения стабильности большого объема жидкого органического сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.01.47159.17467

Детекторы на основе жидких органических сцинтилляторов (ЖОС) широко применяются в экспериментальной физике частиц. ЖОС являются единственным материалом, позволяющим создавать многотонные сцинтилляционные детекторы оптимальной геометрии. ЖОС синтезируются на основе водородсодержащих органических растворителей со сцинтиллирующими добавками — флюорами. В последнее время в качестве базового растворителя все большее распространение получает линейный алкилбензол (ЛАБ). К его преимуществам относятся низкая токсичность, высокая прозрачность, высокая температура вспышки и относительно низкая стоимость. Сегодня в мире работает несколько детекторов с ЖОС на основе ЛАБ, при помощи которых уже получены уникальные физические результаты [1,2]. К запуску готовятся экспериментальные установки с массой ЖОС на основе ЛАБ в десятки килотонн [3].

Одно из активно развивающихся направлений применения ЖОС на основе ЛАБ — прикладные задачи атомной отрасли, связанные с неинвазивным дистанционным контролем работы атомных реакторов путем детектирования потока реакторных антинейтрино. Детекторы с объемом жидкосцинтилляционной мишени ~ 1 м<sup>3</sup> могли бы устанавливаться на удалении от источника антинейтрино (ядерный реактор, хранилище отработанного ядерного топлива и т.п.) и обеспечивать необходимую скорость счета антинейтрино по реакции обратного бета-распада на протоне. Развитие технологии детектирования антинейтрино с целью обеспечения выполнения гарантий нераспространения привлекает внимание ведущих зарубежных ядерных центров. Разработчики ряда установок, в которых используется гадолинизированный ЖОС на основе ЛАБ с массой 10 и более тонн, создают собственное производство ЖОС [4–6]. В России специализированное производство ЖОС отсутствует. Жидкие сцинтилляторы в небольших количествах синтезируются лишь в отдельных научных центрах для собственных исследований [7,8].

Исследования стабильности световых выходов ЖОС на основе ЛАБ в небольших объемах до 30 л с металлоорганическим комплексом гадолиния были опубликованы нами ранее [9]. Настоящая работа посвящена синтезу и тестированию ЖОС на основе ЛАБ объемом 1 м<sup>3</sup> без добавки гадолиния. Проверка стабильности синтезированного ЖОС выполнена в детекторе iDREAM (Industrial Detector for Reactor Antineutrino Monitoring) [10], который представляет собой опытный образец детектора реакторных антинейтрино для дистанционного контроля работы АЭС. Схематическое изображение детектора приведено на рис. 1. Корпус детектора выполнен в виде двух концентрических баков из нержавеющей стали, накрытых общей герметичной крышкой. Внутренний бак разделен по вертикали выпуклой мембраной из акрила на две части. Нижняя часть объемом 1 м<sup>3</sup> заполняется гадолинизированным ЖОС и служит мишенью детектора. Мишень просматривают 16 фотоэлектронных умножителей (ФЭУ)

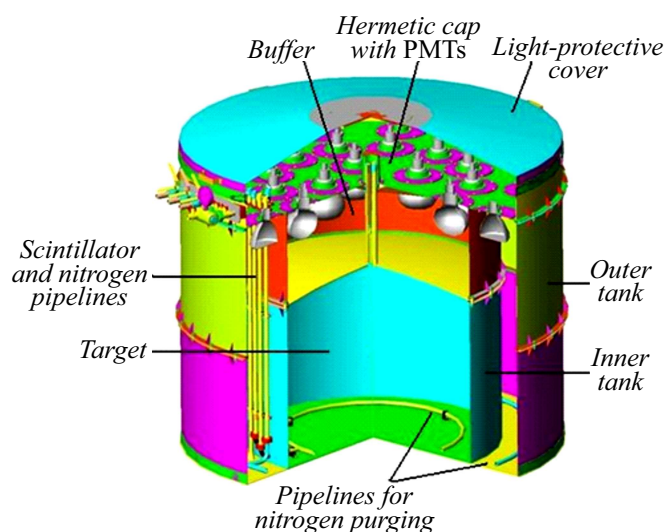


Рис. 1. Устройство детектора iDREAM.

Hamamatsu R5912, которые установлены на крышке баков. Верхняя часть внутреннего бака объемом 0.5 м<sup>3</sup> заполняется чистым ЛАБ и является буфером, который служит для выравнивания светосбора и защиты мишени от <sup>40</sup>K, содержащегося в стеклах ФЭУ. Кольцевая часть детектора между стенками внутреннего и наружного баков объемом 1.5 м<sup>3</sup> заполняется ЖОС без гадолиния и просматривается 12 ФЭУ Hamamatsu R5912. Кольцевой объем служит активной защитой мишени детектора, а также повышает эффективность детектора за счет регистрации продуктов реакции обратного бета-распада, вылетающих за пределы мишени.

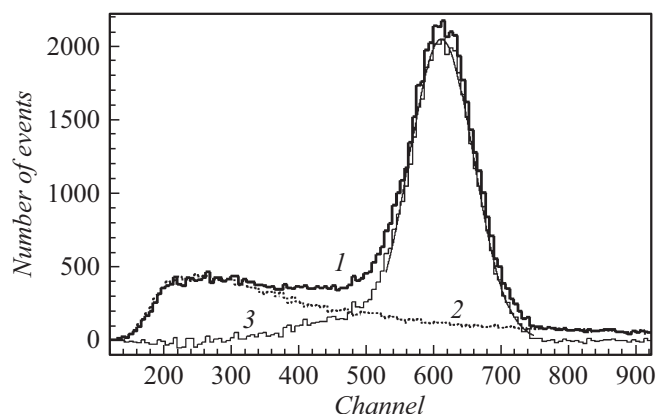
Заполнение/откачка ЖОС и барботирование ЖОС азотом осуществляется через коллектор с помощью системы трубок и кольцевых сепараторов на дне внутреннего бака и кольцевого зазора. Свободное пространство детектора над уровнями рабочих жидкостей заполняется азотом под избыточным давлением 1 кПа. Мониторинг уровней жидкостей, избыточного давления и температуры внутри детектора осуществляется системой медленного контроля (СМК) с соответствующим комплектом датчиков. С помощью СМК осуществляется также управление модулями программной установки и регулирования высоковольтных напряжений ФЭУ и уровней дискриминации.

В качестве растворителей при получении органических сцинтилляторов может применяться широкий круг веществ: додекан, псевдокумол, фенилксиллэтан и др. Многие растворители являются токсичными, легковоспламеняющимися жидкостями, что существенно ограничивает возможность их применения. В качестве основного растворителя ЖОС мы использовали ЛАБ производства ООО ПО „Киришинефтеоргсинтез“ (Кириши, Ленинградская область). ЛАБ по своим физическим свойствам наиболее соответствует требованиям безопасности, предъявляемым на АЭС к детекторам на основе ЖОС.

Сам ЛАБ не является сцинтиллятором, так как его спектры поглощения и испускания сильно перекрываются и находятся в ультрафиолетовой области. Для получения ЖОС с высоким световыходом в ЛАБ добавляются сцинтиллирующие добавки (флюоры) — химические соединения, у которых спектры поглощения и испускания заметно сдвинуты относительно друг друга в сторону больших длин волн. При этом решаются две важные экспериментальные задачи.

1. Спектр испускания такого ЖОС лежит в области видимого света, в которой резко возрастает его прозрачность. Это позволяет создавать экспериментальные установки больших объемов. Кроме того, существенно увеличивается световыход, который определяет одну из важнейших характеристик детектора — энергетическое разрешение.

2. Путем подбора флюоров по их оптическим свойствам появляется возможность оптимально совместить финальный спектр излучения ЖОС со спектром чувствительности применяемых в детекторах фотоприемников.



**Рис. 2.** Энергетические спектры, измеренные детектором iDREAM с источником <sup>137</sup>Cs в центре мишени и без него. 1 — суммарный спектр детектора с источником <sup>137</sup>Cs, 2 — спектр, измеренный без источника (фон), 3 — „чистый“ спектр источника, полученный вычитанием фона из суммарного спектра.

По результатам проведенных нами ранее исследований характеристик малых образцов ЖОС с различным содержанием сцинтиллирующих добавок [9] в качестве флюоров были выбраны PPO — 2,5 дефинилоксазол (C<sub>15</sub>H<sub>11</sub>ON)—и bis-MSB—1,4-бис (2-метилстирил)бензол (C<sub>24</sub>H<sub>22</sub>) в концентрациях 3 и 0.02 г/л соответственно. Процедура синтеза ЖОС проводилась в три этапа. На первом этапе готовился master solution — концентрированный раствор флюоров в ЛАБ. Для этого в 60-литровый объем ЛАБ добавлялось 3 кг PPO и 20 г bis-MSB и в течение 24 h при комнатной температуре производилось перемешивание раствора на мешалке с электроприводом. В результате был получен прозрачный концентрированный раствор, который на втором этапе перекачивался непосредственно в объем мишени детектора iDREAM, содержащий 9401 чистого ЛАБ. На третьем этапе проводилось активное перемешивание жидкости в объеме мишени путем барботирования спектрометрически чистым азотом под избыточным давлением (10–12 кПа) в течение 3 h. При этом обеспечивалось равномерное размешивание master solution в ЛАБ и удаление из получаемого ЖОС кислорода.

Измерения стабильности световыхода ЖОС объемом 1 м<sup>3</sup>, наработанного по описанной выше методике, проводились в детекторе iDREAM, при этом кольцевой объем и буфер детектора были заполнены чистым ЛАБ. Индивидуальная настройка рабочих напряжений каждого из 16 ФЭУ проводилась при помощи  $\gamma$ -источника <sup>137</sup>Cs ( $E_\gamma = 662$  keV), который помещался в центр детектора.

На рис. 2 приведены амплитудные спектры суммарного сигнала детектора со всех ФЭУ. Кривая 1 представляет собой суммарный спектр детектора с источником <sup>137</sup>Cs, кривая 2 — спектр, измеренный без источника (фон). Кривая 3 получена вычитанием фона из суммарного спектра. Аппроксимация „чистого“ спектра источ-

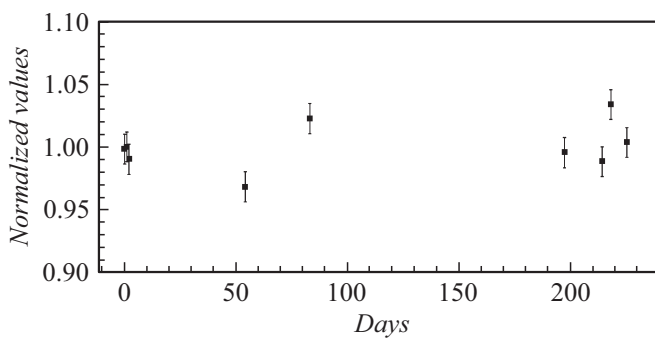


Рис. 3. Световыход ЖОС в течение 225 суток наблюдений.

ника (кривая 3) функцией Гаусса позволяет определить положение пика и стандартное отклонение измеренного энергетического спектра источника  $^{137}\text{Cs}$ , которые оказались равными 612.9 и 47.5 каналов соответственно. Это отвечает энергетическому разрешению детектора при энергии 662 keV  $\sigma/E = 7.8\%$  или 6.4% при энергии 1 MeV (14.9% FWHM).

Наблюдения за стабильностью световыхода ЖОС проводились в течение 225 суток. Критерием стабильности было выбрано положение пика  $\gamma$ -квантов от источника  $^{137}\text{Cs}$ , а также его энергетическое разрешение  $\sigma$  при помещении источника в центр мишени. Полученные результаты представлены на рис. 3. Положение пика в первый день наблюдений принято за единицу. Как следует из рисунка, световыход ЖОС сохранял стабильность в пределах  $\sim 5\%$  в течение всего времени наблюдений. Небольшие колебания световыхода связаны с проводившимися параллельно работами по отладке системы контроля технических характеристик детектора iDREAM.

Таким образом, проведенные измерения показали, что световыход ЖОС на основе ЛАБ объемом  $1\text{ m}^3$  оставался стабильным в пределах  $\sim 5\%$  в течение 225 суток наблюдений. Это первые в России долгосрочные измерения стабильности ЖОС на основе ЛАБ кубового объема. Демонстрация долговременной стабильности является важным этапом на пути к приготовлению ЖОС с добавкой гадолиния для антинейтринного детектора, способного решать задачу неинвазивного дистанционного контроля работы атомного реактора.

Работа выполнена при поддержке НИЦ „Курчатовский институт“.

## Список литературы

- [4] Kim B.R., Han B., Jeon E. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2016. V. 310. N 1. P. 311–316.
- [5] Ajimura S., Cheoun M.K., Choi J.H. et al. // arXiv:1705.08629 physics.ins-det
- [6] Park J.S., Lee J., Yeo I.S. et al. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2013. V. 707. P. 45–53.
- [7] Немченко И.Б., Бабин В.И., Бруданин В.Б., Кочетов О.И., Тимкин В.В. // Письма в ЭЧАЯ. 2011. Т. 8. № 2. С. 218–227.
- [8] Безруков Л.Б., Бакулина Н.И., Иконников Н.С., Моргалюк В.П., Новикова Г.Я., Чепурнов А.С. Исследование прозрачности отечественного ЛАБа как растворителя для сцинтилляторов большого объема. Препринт ИЯИ РАН № 1382/2014. М., 2014. 28 с.
- [9] Громов М.Б., Кузнецов Д.С., Мурченко А.Е., Новикова Г.Я., Обиняков Б.А., Оралбаев А.Ю., Плакитина К.В., Скорохватов М.Д., Сухотин С.В., Чепурнов А.С., Этенко А.В. // Письма в ЖТФ. 2018. Т. 44. В. 6. С. 59–65.
- [10] Громов М.Б., Лукьянченко Г.А., Марков Д.С., Новикова Г.Я., Обиняков Б.А., Оралбаев А.Ю., Скорохватов М.Д., Сухотин С.В., Чепурнов А.С., Этенко А.В. // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3. Физика, астрономия. 2015. № 3. С. 26–31.