

НИЗКОФОНОВЫЙ ДЕТЕКТОР НА ОСНОВЕ СИНТИНА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЙ В ОБЛАСТИ НЕЙТРИННОЙ ФИЗИКИ

Пшуков А.М., Кокоева А.А.*, Якуба Ю.Ф., Блиева О.З.

Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова

*al-aneta@mail.ru

В работе проведены измерения образцов жидкого сцинтиллятора синтина на содержание изотопа ^{14}C . Показана, что трудность в измерении потока pp -нейтрино и его спектра с помощью детектора на основе жидкого органического сцинтиллятора во многом зависит от содержания изотопа ^{14}C . Изучены оптические свойства жидкого органического сцинтиллятора, проведен хроматографический анализ.

Ключевые слова: жидкий органический сцинтиллятор, синтин, изотоп ^{14}C , низкофоновые измерения, синтез Фишера-Тропша, хроматографический анализ.

LOW-BACKGROUND DETECTOR BASED ON SINTIN FOR RESEARCH IN THE FIELD OF NEUTRINO PHYSICS

Pshukov A.M., Kokoeva A.A., Yakuba Yu.F., Blieva O.Z.

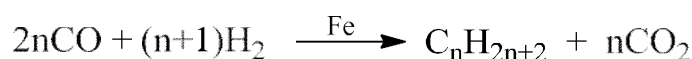
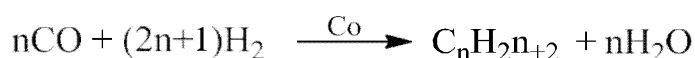
Kabardino-Balkarian State University

In the work, measurements of samples of the liquid scintillator sintin for the content of the isotope ^{14}C were carried out. The difficulty in measuring the pp neutrino flux and its spectrum using a detector based on a liquid organic scintillator is shown to depend largely on the content of the ^{14}C isotope. The optical properties of a liquid organic scintillator have been studied, and chromatographic analysis has been performed.

Keywords: liquid organic scintillator, syntin, isotope ^{14}C , low-background measurements, Fischer-Tropsch synthesis, chromatographic analysis.

Одной из наиболее актуальных задач астрофизики является исследование нейтрино. В связи с этим активно обсуждается ряд проектов по созданию больших сцинтилляционных жидких детекторов для регистрации крайне редких событий, в частности, нейтринных потоков от различных природных источников [1–5]. При этом особое внимание уделяется как внешнему, так и внутреннему фону установок. Внутренний фон детектора главным образом определяется содержанием примесей радиоактивных элементов в жидком органическом сцинтилляторе. Так, трудность в измерении потока pp -нейтрино и его спектра с помощью детектора на основе жидкого органического сцинтиллятора во многом связана с радиоактивностью изотопа ^{14}C , присутствующего в молекулах углеводородов нефтяного происхождения. При этом собственная концентрация ^{14}C в жидкости становится основным источником фона при очень низких энергиях в жидкостных сцинтилляционных детекторах высокой чистоты. Конечная энергия β -распада ^{14}C довольно мала, $Q=156$ кэВ, и скорость счета часто можно снизить, установив соответствующую пороговую энергию. Однако слишком высокая концентрация ^{14}C в жидкости может привести к подавлению сигнала от pp -нейтрино. Надо отметить, что для сцинтиллятора детектора Bogexino содержание изотопа ^{14}C составляет $(1,94\pm 0,09)\times 10^{-18}$ ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) [6, 7], а для сцинтиллятора детектора KamLAND – $(3,98\pm 0,94)\times 10^{-18}$ ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) [8]. Целью работы является исследование жидкого органического сцинтиллятора на основе синтина, с пониженным содержанием ^{14}C .

Известно, что синтин может быть получен из каменного угля на основе синтез-газа по методу Фишера–Тропша, который был открыт в 1920 г. Ф. Фишером и Г. Тропшем. При использовании кобальта в качестве катализатора реакция идет с образованием воды, если же использовать железо, то с образованием диоксида углерода:



В промышленности синтезом Фишера–Тропша получают линейные длинноцепные алканы, которые далее подвергают реакциям гидрокрекинга и гидроизомеризации и целью получения изо-алканов – высокооктановых компонентов моторных топлив. Прямой синтез изо-парафинов возможен при использовании бифункциональных катализаторов.

В промышленности синтезом Фишера–Тропша получают линейные длинноцепные алканы, которые далее подвергают реакциям гидрокрекинга и гидроизомеризации и целью получения изо-алканов – высокооктановых компонентов моторных топлив. Прямой синтез изо-парафинов возможен при использовании бифункциональных катализаторов.

Необходимым условием при получении синтина из каменного угля с содержанием углерода ^{14}C до 10^{-18} , является поиск месторождений каменного угля с пониженным содержанием углерода.

Экспериментальная часть

Для исследования концентрации ^{14}C в жидких сцинтилляторах на уровне ниже 10^{-15} , что в настоящее время является нижним пределом, достигаемым методом ускорительной масс-спектрометрии (АМС) [9, 10].

В рамках разработки проекта по созданию большого сцинтилляционного детектора на БНО создана установка по измерению содержания радиоуглерода ^{14}C в образцах жидкого сцинтиллятора. На нем проведены первые измерения со сцинтилляторами. Предполагается исследовать образцы сцинтилляторов с основой из растворителей, полученных из различной нефти, чтобы определить влияние месторождения на содержание ^{14}C . Также будут исследованы растворители, полученные из каменного угля. В связи с последним был предложен сцинтиллятор на основе синтина.

Синтин – разработанное в СССР синтетическое высокоэнергетическое углеводородное ракетное топливо. Бесцветная, крайне текучая жидкость с лёгким приятным запахом. Синтин получают из окиси углерода и водорода, образующихся при переработке твердого топлива. В отличие от большинства других вариантов высокоэффективного углеводородного топлива, синтин является химически устойчивым и может храниться неограниченно долго. Синтин представляет собой углеводород с формулой 1-метил-1,2-дициклопропилциклопропан $\text{C}_{10}\text{H}_{16}$, плотностью 0,773 г/л и температурой вспышки 120 °С, температурой самовоспламенения 210 °С.

Для измерения фона был использован образец сцинтиллятора на основе синтина объемом 1340 мл. Состав смеси: шифтера РОРОР (фенилоксазол бензол) – 0,03 г/л, и сцинтиллирующей добавки РРО (2,5-дифенилоксазол) – 1 г/л.

Основные характеристики синтина, приведенные в паспорте, представлены в табл. 1.

Таблица 1

Паспортные данные продукта «Синтин»

№	Наименование показателей	Норма
1	Плотность при 200 °С, кг/м ³ , не более	0,740–0,760
2	Фракционный состав: 10 % перегоняется при температуре, 0 °С, не ниже; 90 % перегоняется при температуре, 0 °С, не выше;	115 270
3	Зольность, в %, не более	0,005
4	Испытание на медной пластине	Выдерживает испытания
5	Кислотность, мг КОН на 100 см ³ продукта, не более	5,0
6	Наличие механических примесей и воды (H ₂ O)	Отсутствие

Исследование хроматографического анализа проводилось на газовом хроматографе «Кристаллюкс-4000 м», капиллярной колонки Petroscol DH производитель Supelco, длина 100 метров, диаметр 0.25 мм стартовая температура 70 °С, конечная 170 °С, Объем, 1 мкл. Хроматограф оснащен модулем ПИД/ПИД, который предназначен для анализа методом газовой хроматографии большинства органических соединений, в том числе углеводородных топлив и газов, спиртосодержащих соединений и так далее. Модуль содержит два независимых канала разделения, каждый из которых состоит из испарителя, хроматографической колонки и пламенно-ионизационного детектора (ПИД). Принцип действия ПИД основан на ионизации анализируемых соединений, происходящей при их сгорании в водородном пламени, за счет окисления углерода.

Исследование оптических свойств синтина и сцинтилляторов на его основе проводилось на спектрофотометре ПЭ-3000УФ, со спектральным диапазоном от вакуумного ультрафиолетового (УФ) излучения 190 нм, до инфракрасного (ИК) излучения 1100 нм, спектральной полосой пропускания 1,8 нм, разрешением 0,1 нм.

Обсуждение результатов

1. *Хроматографический анализ синтина.* Поскольку прилагаемый к продукту «Синтин» паспорт не содержит сведений о его составе как количественном, так и качественном, а для дальнейшей исследовательской работы необходимы эти сведения, то решение подобной задачи возможно путем хроматографического анализа, позволяющего идентифицировать составные компоненты и определить их количественное содержание. Результат анализа приведен на рис. 1.

Судя по хроматограмме, синтин это четырехкомпонентный раствор, время удерживания первого наиболее летучего компонента ~96 с, второго компонента ~119 с, третьего компонента ~153 с, четвертого компонента ~202 с.

Возможно, синтин является продуктом синтеза, и идентификация пиков, которая осуществима лишь при наличии эталонных образцов органических соединений, позволит продублировать этот раствор в лабораторных условиях. В случае подтверждения возможности использования сцинтиллятора на основе предлагаемого синтина будет продолжена работа по идентификации компонентов и получению продукта в собственных лабораторных условиях.

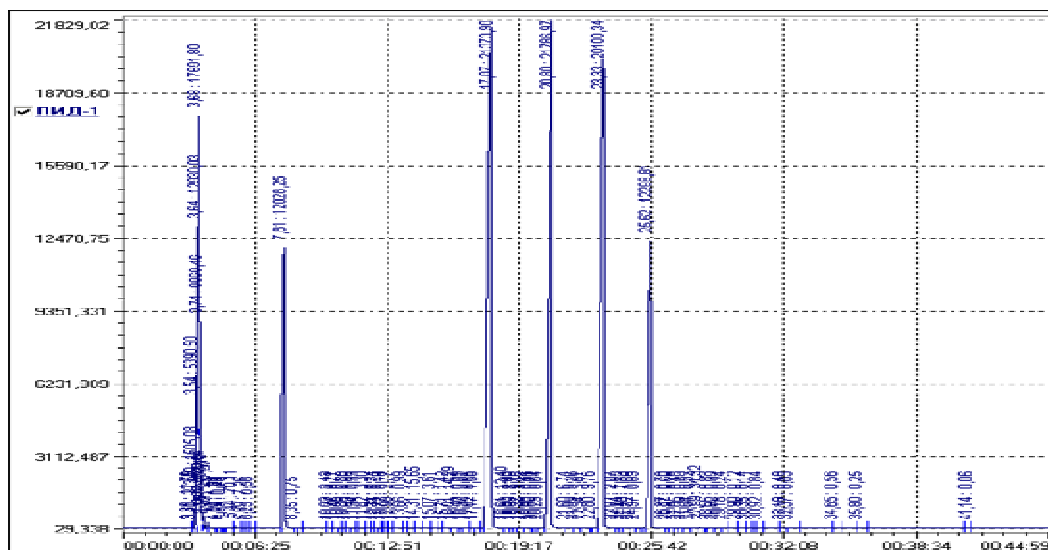


Рис. 1. Хроматограмма синтина

2. *Оптические и люминесцентные свойства синтина.* Определение максимума поглощения собственн синтина проводилось в диапазоне 190–340 нм в кварцевой кювете 1 см и составило около 262 нм (ширина на полувысоте 241–272 нм). Результат измерения приведен на рис. 2.

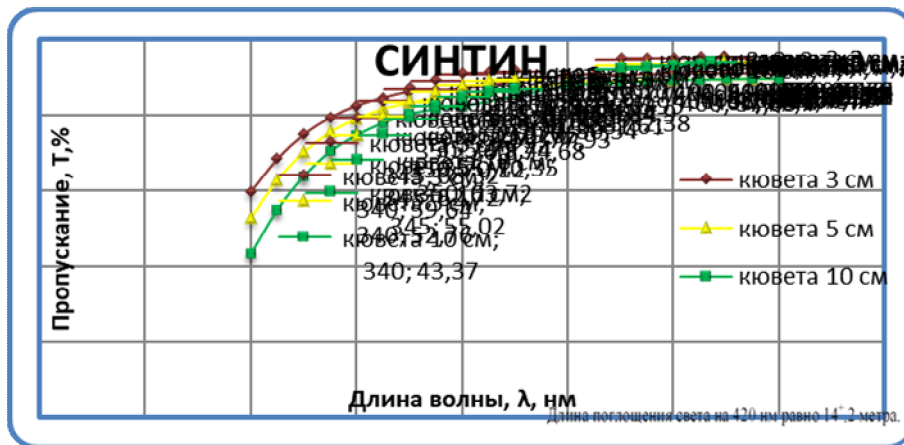


Рис. 2. Спектр поглощения синтина в диапазоне длин волн 190–340 нм

Для получения информации об оптической стабильности исследуемого синтиллятора, авторами был приготовлен синтиллятор с обозначенным выше содержанием основных компонентов и снят спектр поглощения в диапазоне 190–1100 нм. Через 2 года был снова получен спектр поглощения приготовленного ранее синтиллятора. Результаты представлены на рис. 3.

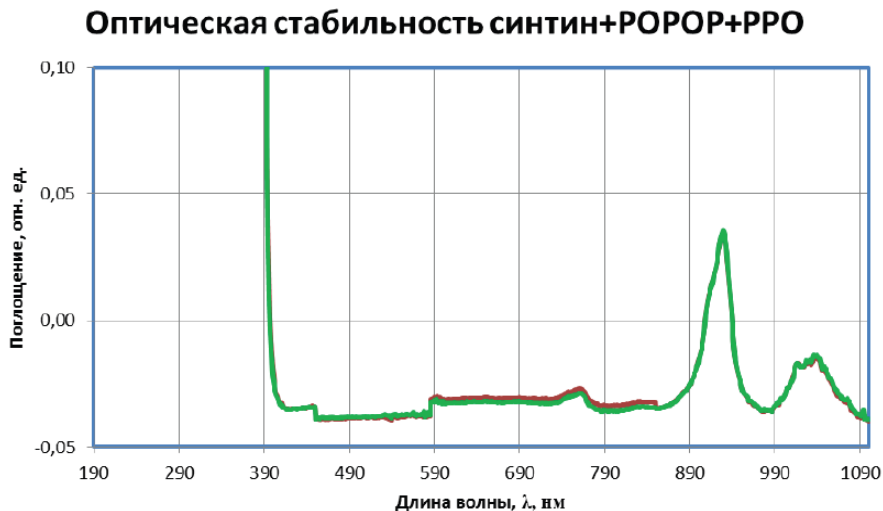


Рис. 3. Спектры поглощения раствора синтин+РРО+РОРОР, снятые с разницей в 2 года

Спектры поглощения, снятые с разницей в два года для одного и того же раствора синтиллятора, имеют практически идентичный рисунок, что дает возможность предположить наличие оптической стабильности синтиллятора за выбранный отрезок времени.

3. Низкофоновые измерения. Создание синтиллятора с пониженным содержанием изотопа ^{14}C , является актуальным. В этой связи, наряду с оптическими и люминесцентными свойствами будущего синтиллятора, содержание изотопа ^{14}C является определяющим критерием. Измерение содержания ^{14}C в образце синтин+РРО+РОРОР объемом 1340 мл проводилось с помощью детектора малого объема в низкофоновой камере в БНО ИЯИ РАН. Центральная часть детекторной установки на котором проводились измерения состоит из двух низкорadioактивных ФЭУ (3" ET 9302B), двух акриловых световодов и кварцевого (или акрилового) сосуда. Сосуд и световоды обернуты светоотражающей пленкой VM2000.

Защита от γ - и нейтронного фона дополняется толстыми слоями (10–15 см) меди и свинца вокруг центральной части. Слой парафина (около 10 см, как внешний слой) также можно использовать для термализации нейтронов из породы.

Провели 6 сеансов измерения содержания изотопа ^{14}C с калибровками между сеансами. Результаты измерения индивидуальных сеансов представлены в табл. 2. Видно, что среднее значение величины

отношения $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ лежит в интервале от $4,9 \times 10^{-18}$ до $1,6 \times 10^{-17}$. Это сравнимо с приведенными выше результатами детектора Vorexino.

Таблица 2

Измерения содержания изотопа ^{14}C с калибровками

№	Дата	Время измерения, часы	Содержание ^{14}C
1	24–27 июля	66,03 часа	$4,97 \times 10^{-18}$
2	27–29 июля	41,83 часа	$3,23 \times 10^{-17}$
3	29–30 июля	21,83 часа	$8,58 \times 10^{-17}$
4	30–31 июля	15,24 часа	$1,74 \times 10^{-17}$
5	2–4 августа	43,48 часа	$4,04 \times 10^{-17}$
6	4–12 августа	183,58 часа	$1,64 \times 10^{-17}$

На рис. 4 представлены спектры суммарного измерения фона детектора за время измерения 371,99 часов. После вычитания бета-спектра ^{14}C получается гамма-фон, приведенный на рис. 5.

Окончательный результат по измерению величины $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ по всем данным приведен в табл. 3.

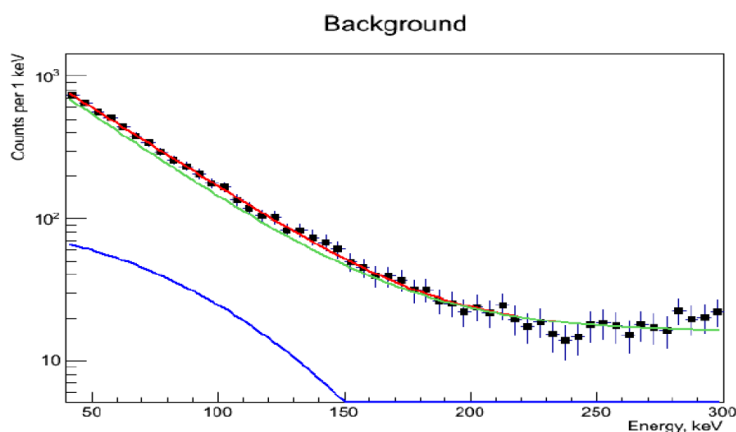


Рис. 4. Спектр фона в логарифмической шкале с вычленным бета-спектром ^{14}C

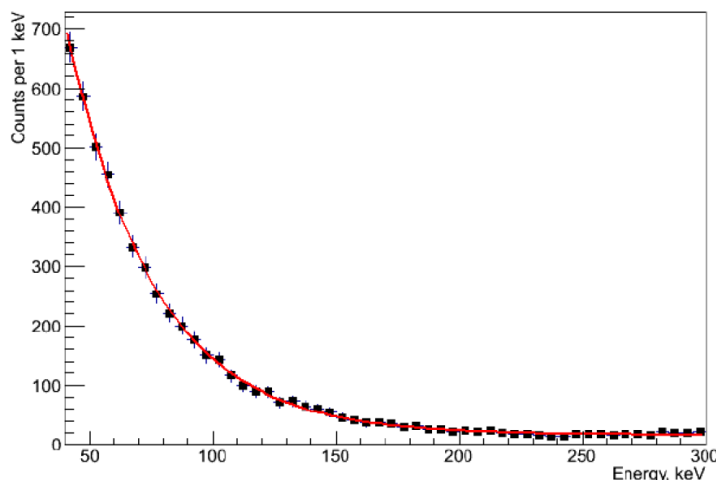


Рис. 5. Спектр гамма-фона после вычитания бета-спектра ^{14}C

Результаты измерений ^{14}C в сцинтилляторах

Вещество	Время измерения, часы	Объем, мл	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \times 10^{-17}$
Синтин	370,87	1340	2,5±2,1
ЛАБ	135,53	1360	4,7±3,3
Ксилол (уголь)	319,0	1370	24,5±4,2
Ксилол (нефть)	208,07	1360	13,2±3,5

Данное исследование образца является ориентировочным и не окончательным, поскольку время проведения эксперимента ничтожно мало для того, чтобы делать заключительные выводы по данному образцу, однако, вполне достаточно, чтобы судить о возможности и целесообразности, как увеличения времени эксперимента, так и устранения сопутствующих систематических ошибок.

Заключение

Полученные результаты показали, что содержание $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ в синтине промышленного производства превышает значения, полученные в сцинтилляторе детектора Borexino. Среднее значение $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ за период измерений в 371,99 часов составило $(2,5 \pm 2,1) \times 10^{-17}$.

Дальнейшие планы включают изучение месторождений каменного угля на содержание ^{14}C , с целью получения из них органического растворителя синтина с использованием технологии синтеза Фишера–Тропша.

Этот синтин будет использоваться в качестве жидкого органического сцинтиллятора для детекторов нейтрино. Для повышения чувствительности установки для измерения содержания радиоурана $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ в образцах жидкого сцинтиллятора на основе синтина требуется новый детектор с уменьшенным фоном и увеличенным объемом. Такой детектор объемом 4 литра уже разработан. Для достижения поставленных целей необходимо провести дополнительные исследования, включая определение содержания изотопа углерода ^{14}C в синтинах различного происхождения, нефтяные и каменноугольные отложения.

Библиография

1. Cowan C.L., Reines F., Harrison F.B., Kruse H.W., McGuire A.D. Detection of the free neutrino: A Confirmation // Science. 1956. N 124. P. 103–104.
2. Wurm Michael, Beacom John F., Bezrukov Leonid et al. The next-generation liquidsцинтиллятор neutrino observatory LENA. White Paper ArXiv: 1104.5620 [astro-ph. IM].
3. Learned John G., Dye Stephen T. and Pakvasa Sandip, Hano-Hano. A deep ocean antineutrino detector for unique neutrino physics geophysics studies. arXiv: 0810.4975 [hep-ex].
4. An F.P., Bai J.Z., Balantekin A.B., Band H.R., Beavis D., Beriguete W., Bishai M., Blyth S., Boddy K., Brown R.L. Observation of electron-antineutrino disappearance at Daya Bay // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 51, N 7. P. 108.
5. Adam T., An F., An G., An Q., Anfimov N., Antonelli V., Baccolo G., Baldoncini M., Baussan E., Bellato M., Bezrukov L., Djuric D.Z. JUNO Conceptual Design Report. // Phys. Rev. Lett. 2015. V. 75, N 6. P. 328.
6. Arpesella C., Back H.O., Balata M., Bellini G.B. Direct Measurement of the Be-7 Solar Neutrino Flux with 192 Days of Borexino Data // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 39, N 12. P. 101.
7. Angelo D.D., Bellini G., Benziger J. et al., Recent Borexino results and prospects for near future. arXiv: 1405.1779 [hep-ex].
8. Abe S., Ebihara T., Enomoto S., Furuno K., Gando Y., Ichimura K., Ikeda H., Inoue K., Kibe Y., Kishimoto Y., Koga M., Kozlov A., Minekawa Y., Mitsui T., Nakajima K., Nakajima K., Nakamura K., Nakamura M., Owada K., Shimizu I., Shimizu Y., Shirai J., Suekane F., Suzuki A., Takemoto Y., Tamae K., Terashima A., Watanabe H. Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 1, N 1. P. 52-61.

9. Пшуков А.М., Умеров Ш.И. Жидкий сцинтиллятор на основе синтина // Препринт ИЯИ РАН 1442/2019. М., 2019. 18 с.

10. Varabanov I., Bezrukov L., Resconi E., Schonert S., The ^{14}C abundance in liquid organic scintillators and oil. Препринт ИЯИ РАН 1316/2012. М., 2019. 9 с.

11. Барабанов И.Р., Новикова Г.Я., Синев В.В., Янович Е.А., Исследование природных потоков нейтрино при помощи сцинтилляционного детектора большого объема на Баксане. Препринт ИЯИ РАН 1228/2009. М., 2009. 12 с.