

Доклад по реализации совместных научных исследований КБГУ и ИЯИ РАН

Авторы: А.М. Пшуков, З.Ю. Исупова, С.А. Эльчепарова

Программа реализуется для выполнения целей, указанных в Соглашении о консорциуме между ОИЯИ, ИЯИ РАН и КБГУ от 20 июля 2021г. (в рамках Предложение научно-технической Программы исследований физики нейтрино и астрофизики).

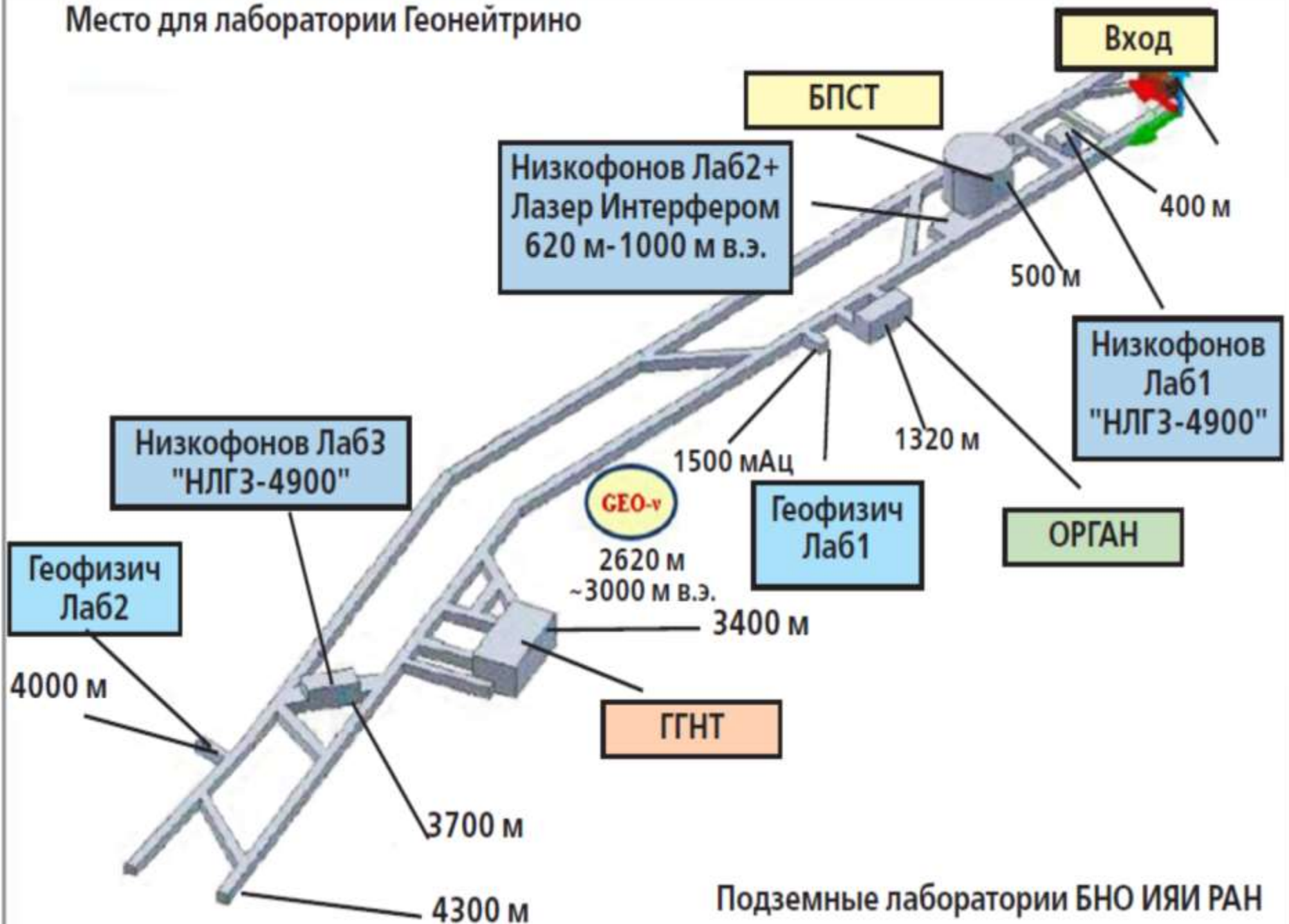
Цель программы – развитие фундаментальных и прикладных исследований в области физики нейтрино и астрофизики частиц. Разработка и исследование жидких сцинтилляторов для крупногабаритных детекторов экспериментов в области нейтринной физики, геофизики и, в частности, по поиску безнейтринного двойного бета распада на уровне 10^{26} - 10^{28} лет.

Физические задачи. Прорывные результаты в этих направлениях можно получить с помощью исследований в ультранизкофоновых условиях Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН, расположенной в Кабардино-Балкарской республике. В связи с этим, в последнее время обсуждается проект подземного крупномасштабного сцинтилляционного детектора массой 10-20 килотонн в Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН.

Основные направления и цели, предполагаемых в проекте исследований, относящихся к нейтринной геофизике и астрофизике: изучение потока антинейтрино, излучаемого дочерними продуктами распада урана и тория (геонейтрино), содержащимися внутри Земли, и определение, таким образом, радиогенной составляющей теплового потока Земли; исследование спектра солнечных нейтрино и поиск нейтрино от реакций CNO.

Кроме перечисленных выше предполагаемых исследований на таком детекторе, предлагается провести эксперимент по поиску безнейтринного двойного ($0\nu 2\beta$) бета распада ^{150}Nd на современном уровне 10^{26} - 10^{28} лет.

Место для лаборатории Геонейтрино



Подземные лаборатории БНО ИЯИ РАН

Актуальность проблемы, предлагаемой к решению

Поиск двойного безнейтринного бета распада ($0\nu2\beta$) является одной из наиболее интересных и актуальных задач современной экспериментальной физики. Эта задача связана с определением природы массы нейтрино (дираковской или майорановской) и возможным нарушением закона сохранения лептонного числа. Решение этих задач имеет фундаментальное значение для физики частиц и космологии. Поиску $0\nu2\beta$ в настоящее время посвящены около десятка действующих или находящихся в стадии запуска крупномасштабных экспериментов, использующих различные изотопы, испытывающие двойной бета-распад. До настоящего времени $0\nu2\beta$ не обнаружен и для его периода полураспада ($T_{1/2}$) получены только верхние пределы. Наибольшие ограничения на значения $T_{1/2}$ на уровне 10^{26} лет получены в экспериментах GERDA (^{76}Ge) и KamLAND-Zen collaboration (^{136}Xe).

Выбор изотопа ^{150}Nd в качестве кандидата для поиска безнейтринного двойного бета распада имеет ряд важных преимуществ по сравнению с другими экспериментами по его поиску:

- энергия распада (3.367 МэВ) является одной из наибольших и, как следствие, ожидаемая вероятность $0\nu2\beta$ является одной из наибольших.
- предварительные оценки показывают, что благодаря большой энергии распада в жидком органическом сцинтилляторе может быть получено хорошее энергетическое разрешение (несколько процентов).
- большая энергия распада и высокий атомный номер приводят к тому, что часть событий от двух нейтринного двойного бета распада $2\nu2\beta$, попадающих в область $0\nu2\beta$, оказывается минимальной по сравнению с другими элементами.
- наибольшая энергия внешнего гамма излучения от естественных радиоактивных изотопов составляет 2.615 МэВ (^{208}Tl в ряду ^{232}Th) и существенно меньше энергии $0\nu2\beta$ распада. Это существенно упрощает проблему внешнего гамма фона по сравнению с другими кандидатами $0\nu2\beta$, например, ^{76}Ge .

Возможность крупномасштабного эксперимента по поиску $0\nu2\beta$ распада ^{150}Nd обсуждалась много раз, но основная проблема заключалась в отсутствии метода получения, обогащенного по ^{150}Nd образцов в большом количестве. На данный момент изучается вопрос о возможности разработки технологии центрифужного разделения изотопов неодима, н-р предприятием АО «ПО ЭХЗ», что в перспективе делает возможным проведение крупномасштабного эксперимента.

Опыт работы больших супернизкофоновых детекторов на основе ЖС, например, Borexino, показывает возможность создания большого детектора на основе Nd-ЖС для поиска $0\nu2\beta$ распада с большой массой изотопа.

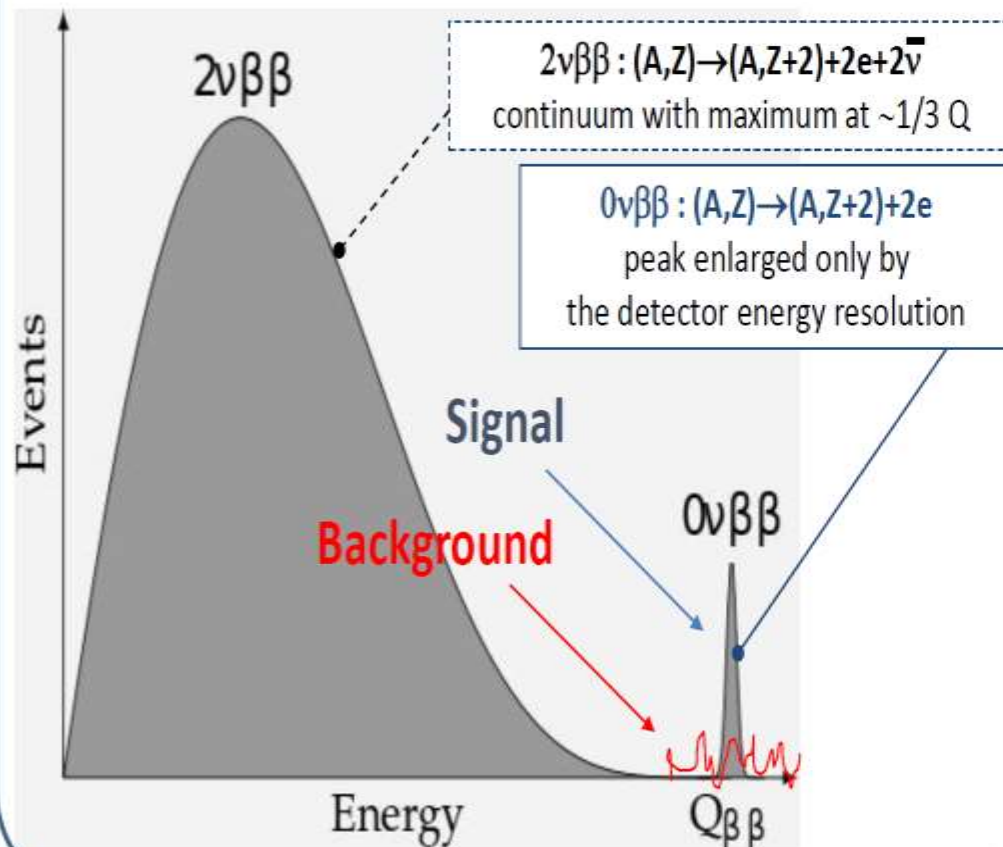
Возможно также эксперимент по поиску безнейтринного двойного бета-распада с изотопом ^{96}Zr .

В связи, со сказанным выше необходимо создание детектора на основе Nd, Zr-содержащих жидкостных органических сцинтилляторов (Nd, Zr -ЖС) со стабильными рабочими характеристиками в течении длительных измерении.

Which signature and which nuclei?

Sum energy spectrum of the two electrons

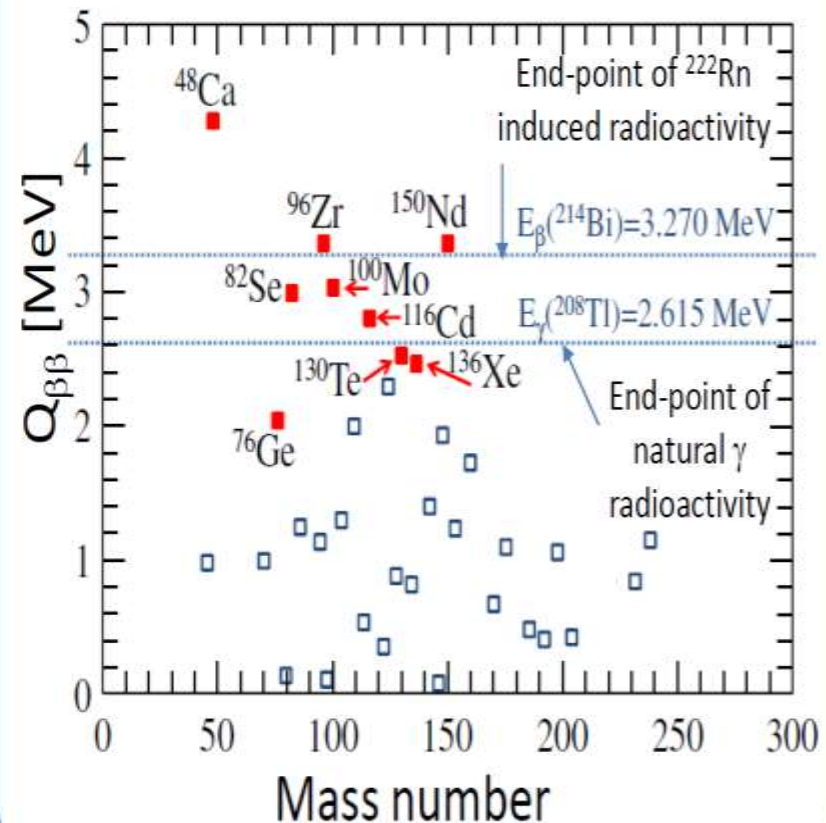
$Q_{\beta\beta}$: energy available for the products



Possible for 35 nuclei

Only **9** are **experimentally relevant**

$Q_{\beta\beta} \sim 2-3$ MeV for the most promising candidates



Органические сцинтилляторы

- Экспериментальные требования к установкам ставят задачи улучшения оптических, сцинтилляционных и фоновых характеристик детекторов. Поэтому требуются поиски как новых сцинтилляторов так и оптимизация их состава. В настоящей работе рассматривается один из возможных сцинтилляторов на основе синтина.
- Органические жидкие сцинтилляторы, несомненно, относятся к числу наиболее часто используемых детекторов. Органический сцинтиллятор состоит из ароматических углеводородных соединений, содержащих структуры бензольного кольца. Наиболее отличительной особенностью этих сцинтилляторов является очень быстрое время высвечивания по сравнению с другими типами сцинтилляторов.
- В настоящее время рассматриваются различные органические сцинтилляторы и добавки к ним, в качестве кандидатов в детекторы больших объемов для регистраций крайне редких событий.
- Ниже приведен список жидких сцинтилляторов кандидатов в экспериментах с большой массой мишени.

Синтин

- 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 фона некоторых сцинтилляторов.
- Предполагается исследовать образцы сцинтилляторов с основой из растворителей, полученного 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** – синтетическое высокоэнергетическое углеводородное ракетное топливо, разработанное в СССР. 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°C. температура самовоспламенения 210 °C.
- Для измерения фона был использован образец сцинтиллятора на основе синтина объемом 1340 мл. Состав смеси: шифтера РОРОР (фенилоксазолил бензол) – 0,03 г/л, и сцинтиллирующей добавки РРО (2,5-дифенилоксазол) – 1 г/л.
- Образцы были приготовлены на стенде ИСКОН БНО в городе Нальчик.



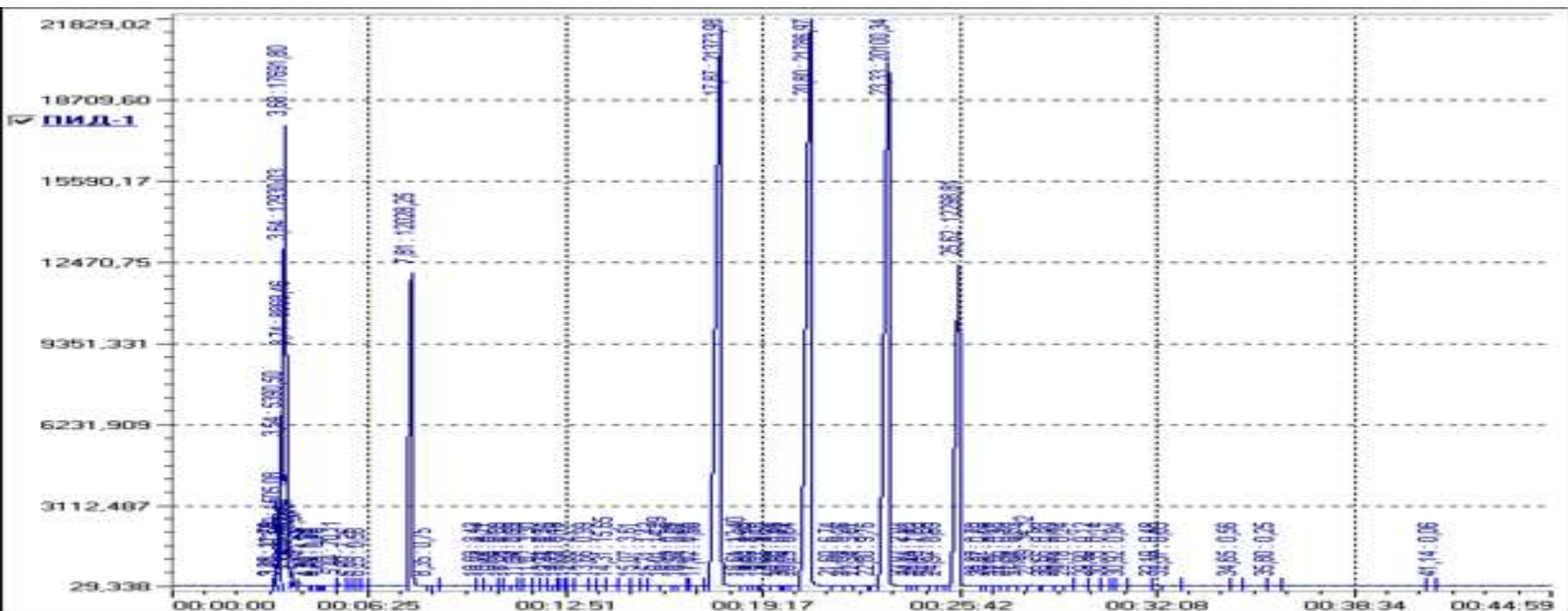
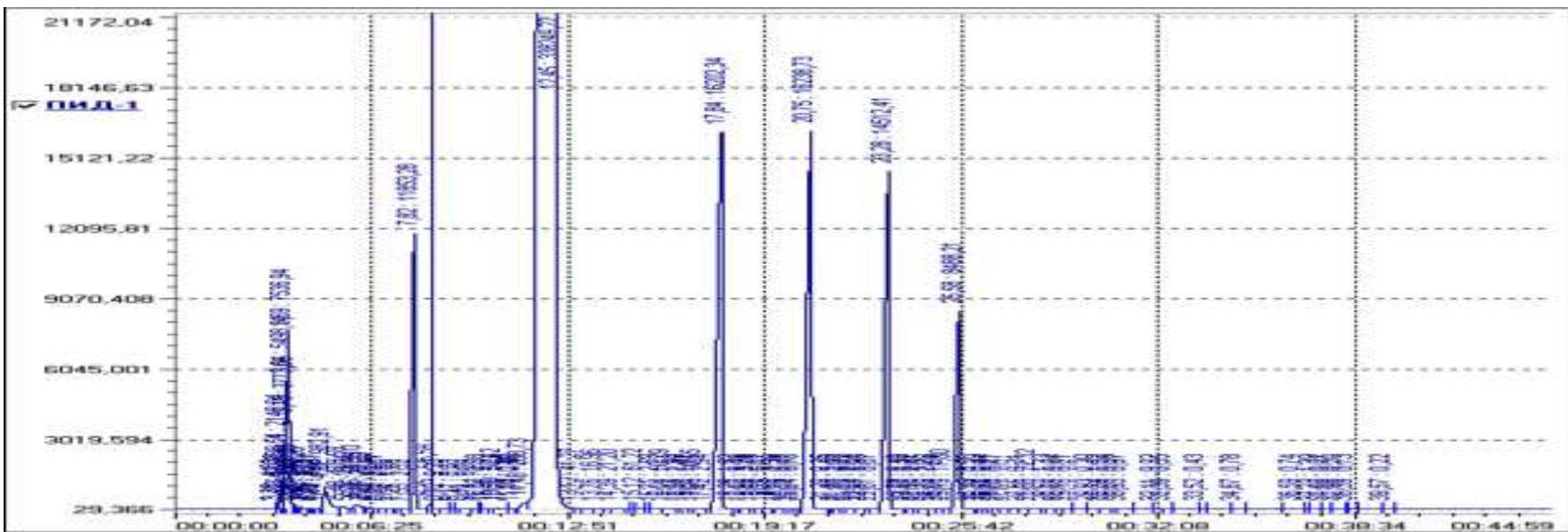


Газовый хроматограф (КристалЛюкс 4000М), оснащенный пламенно-ионизационным детектором



Ксилол

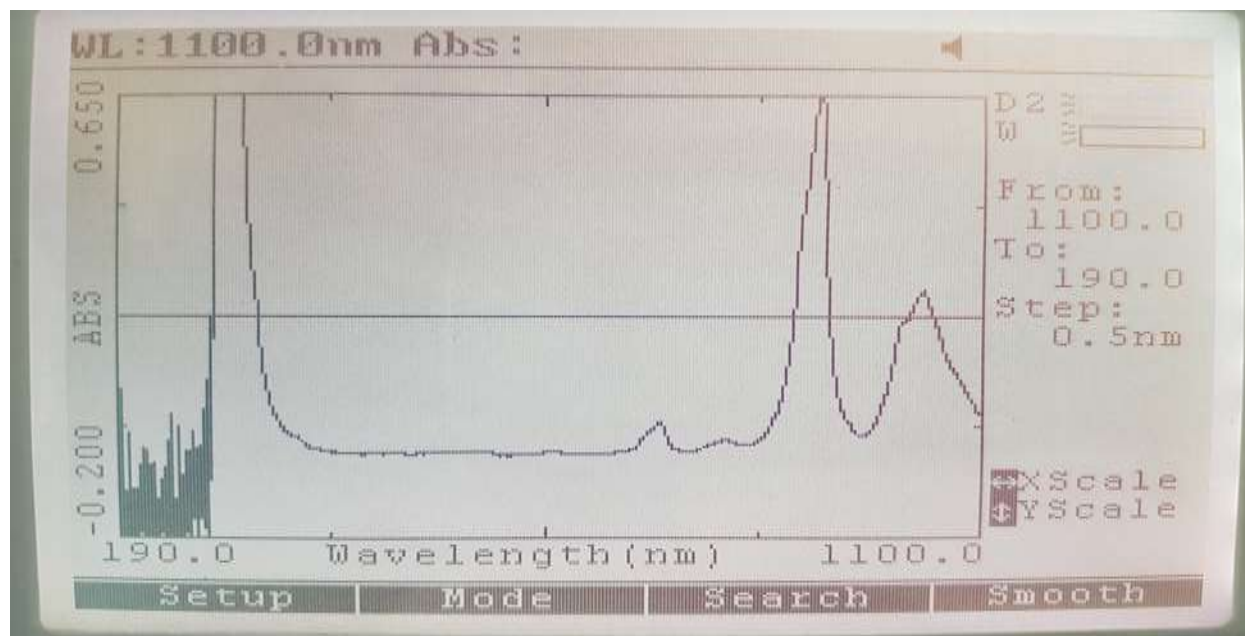
Синтин



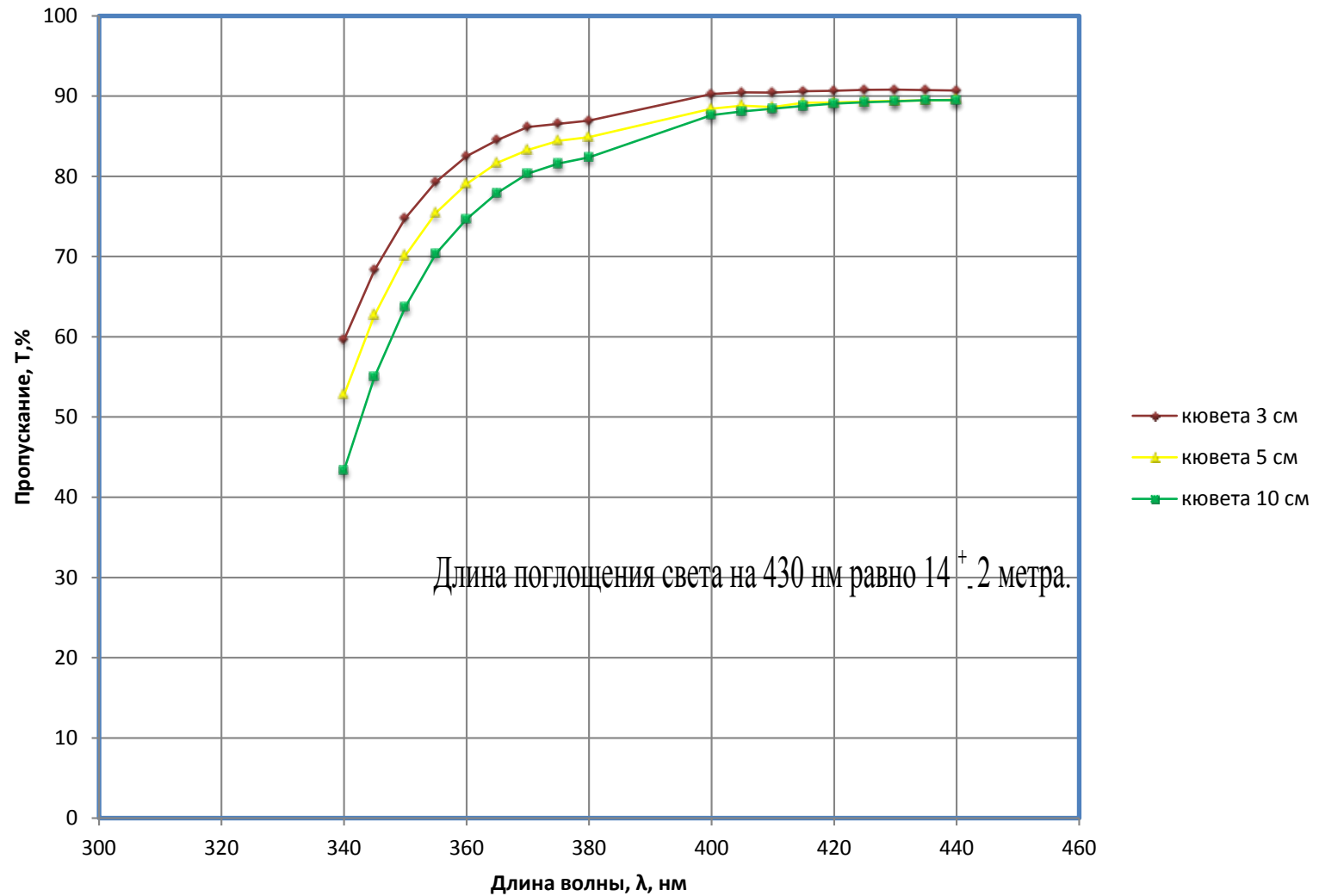
Измерение оптических свойств синтина

- Исследование оптических свойств продукта проводилось на спектрофотометре ПЭ-3000УФ, со спектральным диапазоном от вакуумного ультрафиолетового (УФ) излучения 190 нм. до инфракрасного (ИК) излучения 1100нм.
- С помощью данного прибора были определены значения оптической плотности и пропускания синтина в заданном диапазоне длин волн. Измерения проводились как в стеклянных кюветах так и кварцевых кюветах разных длин.
- Проведены также исследования спектров поглощения и оптической плотности синтина после введения в него последовательно шифтера (фенилоксазолил бензол, POPOP) и сцинтиллирующей добавки (2,5-дифенилоксазол, PPO). Из полученных данных стало ясно, что максимум поглощения чистого синтина, около 262 нм (ширина на полувысоте 241-272 нм).

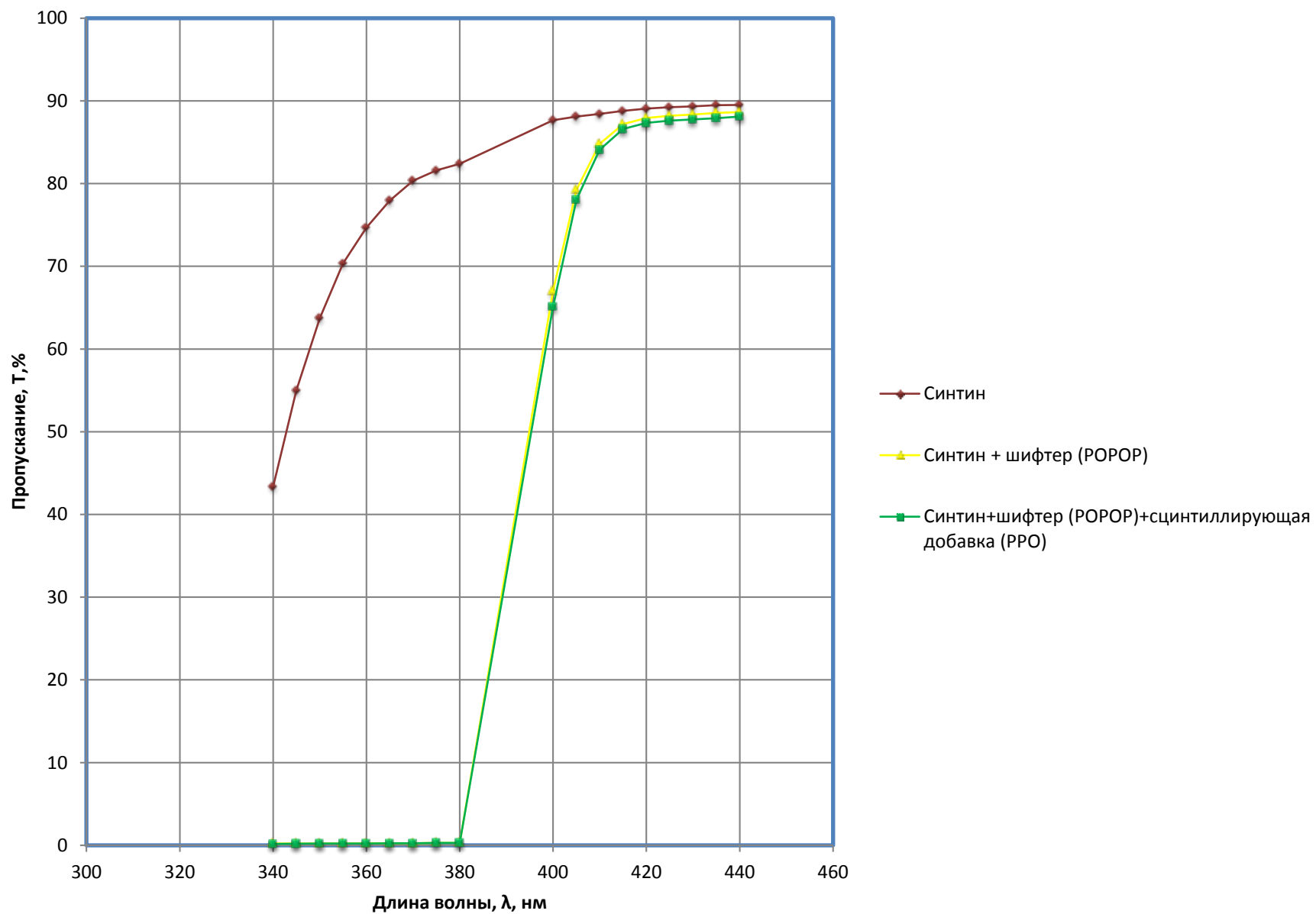
Спектрофотометр (ПЭ-3000УФ), со
спектральным диапазоном 190-1100 нм

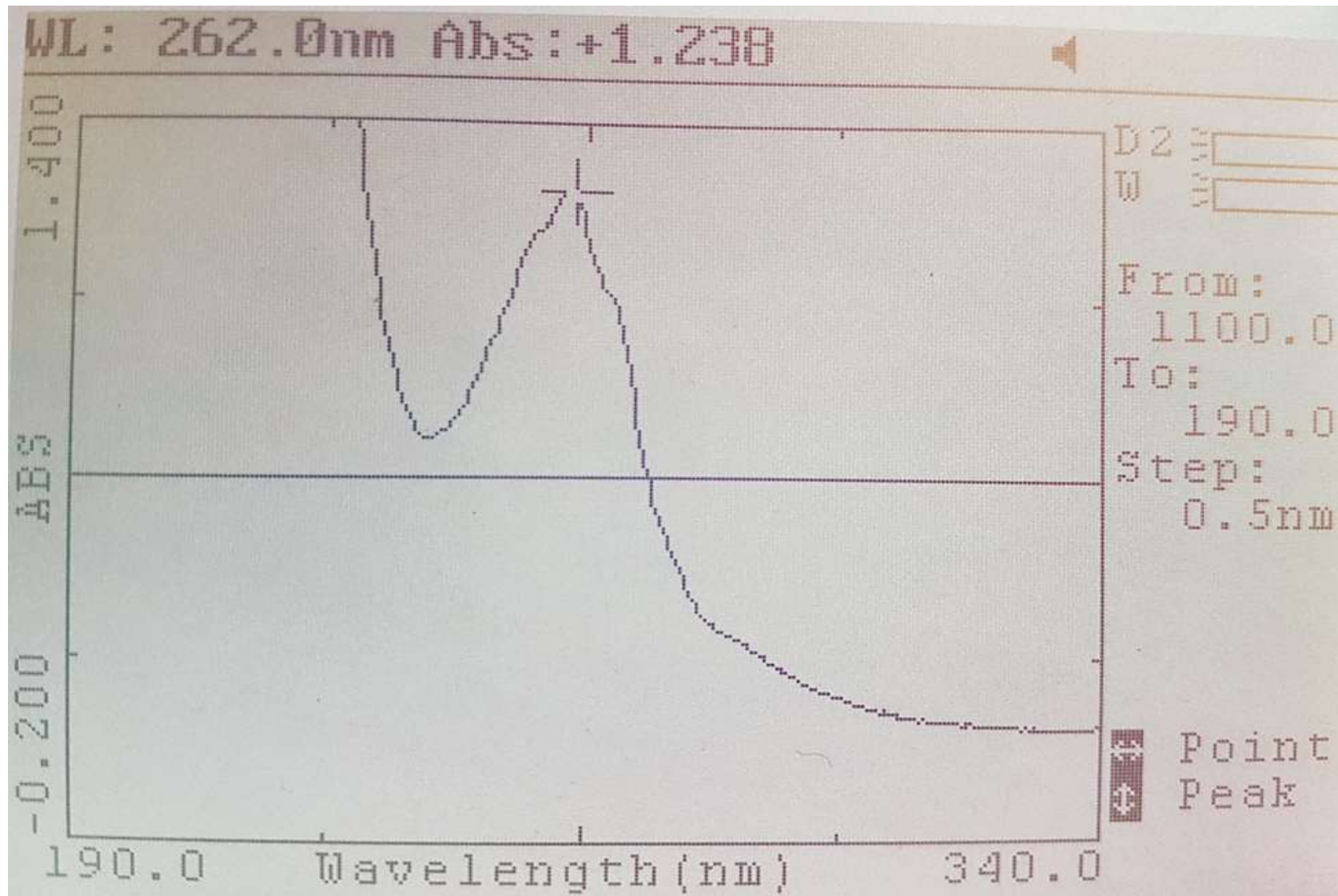


Синтин



Пропускание

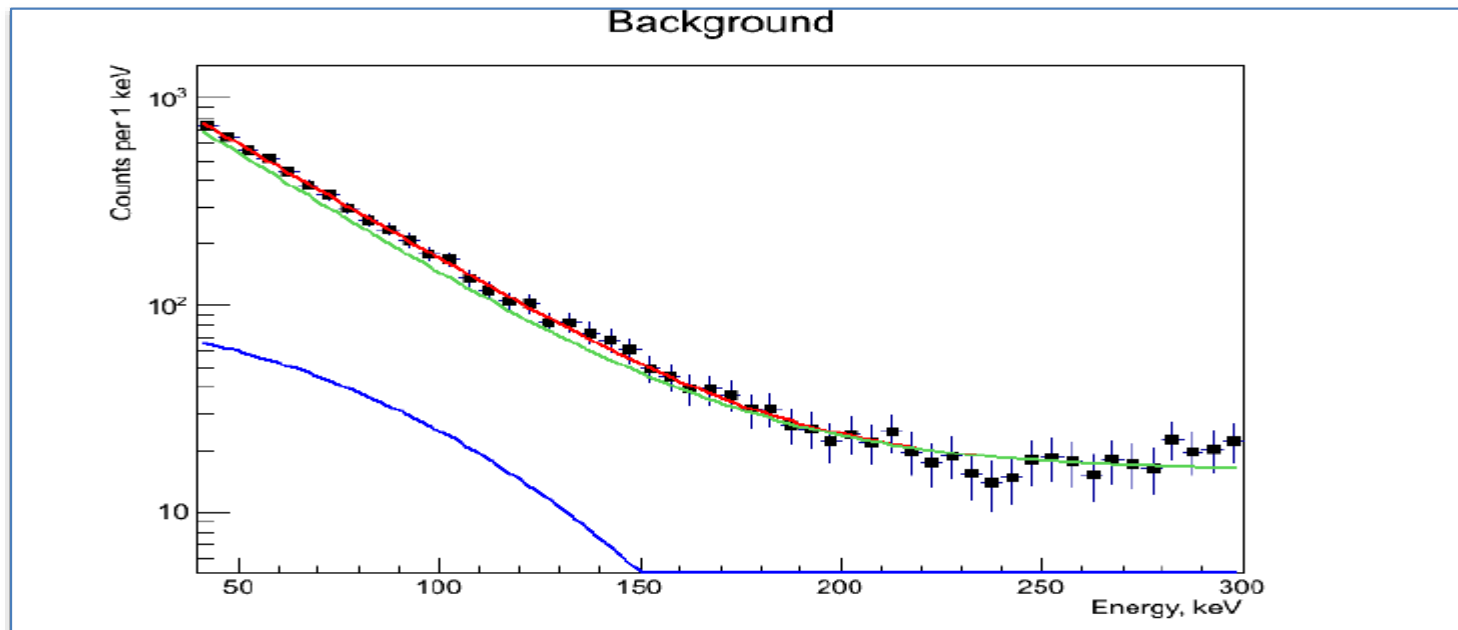




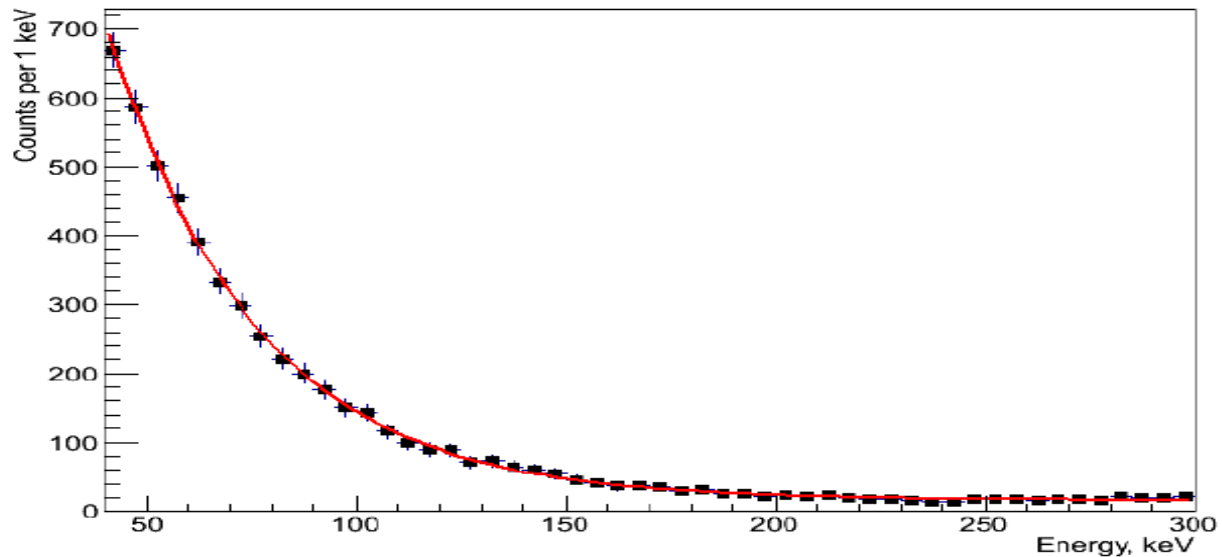
Максимум поглощения синтина 262 нм (область 241 - 272 нм)

Результаты

- Образцы синтина с добавками PPO и POPOP люминесцируют с максимумом излучения в области 415 нм. Результаты исследования люминесцентных свойств синтина с различными добавками показали что, максимум спектра люминесценции синтина + PPO лежит в области 370-390 нм, а образца синтин + POPOP около 410-420 нм, интенсивность люминесценции синтин с добавкой PPO больше в два и более раза, чем интенсивность люминесценции синтин + PPO + POPOP.
- Исследованы образцы раствора синтин + POPOP с различными концентрациями 1). 5 мг./л. 2). 10 мг./л. 3). 15 мг./л. 4). 30 мг./л. 5). 40 мг./л. 6). 50 мг./л., на поглощение света в области от 190 до 1100 нм.. Найден максимум поглощение раствора синтин + POPOP он лежит в области 395 нм. (от 380 нм. до 400 нм. В зависимости от концентрации POPOP . Максимум поглощение образцов раствора синтин + PPO лежит в области 352 нм. (от 338 до 365 нм.). Исследованы образцы растворов синтин + PPO со следующими концентрациями 1).0.5 г./л. 2). 1 г./л. 3). 2 г./л. 4). 3 г./л. 5). 4 г./л. 6). 5 г./л.7). 6 г./л..
- Эксперимент показал, что количество световыхода при добавлении POPOP к раствору синтин + PPO уменьшается до 50%.
- Сцинтиллятор на основе синтина показал абсолютную стабильность в течении 2 лет.
- Для жидкого сцинтиллятора на основе синтина были проведены измерения световыхода и прозрачности, которые дали соответственно значения ~ 9000 фотон/МэВ и 14 м при длине волны света 430 нм. Полученные значения позволяют проводить измерения в низкоэнергетической (< 50 кэВ) области спектра от распада радиоуглерода.
- Чистый синтин люминесцирует с максимумом 262 нм.



Спектр фона в логарифмической шкале с вычлененным бета-спектром ^{14}C



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

Результаты измерений ^{14}C в четырех образцах сцинтиллятора

Вещество	Время измерения, часы	Объем, мл	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \times 10^{-17}$
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
Синтин	370.87	1340	2.4 ± 1.4

Double Beta Decay Experiments With Loaded Liquid Scintillator Itaru Shimizu^{1*} and Mark Chen²

Frontiers in Physics | www.frontiersin.org March 2019 | Volume 7 | Article 33

Metal-loaded LS for Physics

[illegible]

- Reactor
- $\beta\beta$
- Solar
- Others

58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu
90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr

M.Yeh, Review of Metal-loaded Liquid Scintillator for Neutrino Physics, IJMPB (in preparation).

Работы по программе

Основная работа в КБГУ направлена на разработки и производства жидких сцинтилляторов (ЖС) с металлами (Yb, In, Nd, Zr, Gd, и др.), для нейтринных экспериментов с высокими энергетическими разрешениями, хорошими возможностями подавления фона и стабильностью работы сцинтилляторов. Опыт работ с жидкостными детекторами, ранее применяемыми в нейтринной физике, показала важность стабильности сцинтилляционных характеристик таких детекторов (так, например световыход сцинтиллятора падала вплоть до 50 % от первоначального в течений нескольких лет эксперимента).

В связи с этим важно в рамках разработки новых современных детектирующих материалов измерения как их рабочих характеристик, (в том числе оптических, сцинтилляционных, фоновых и т.д.), так и стабильности их значений во времени.

Предлагаемые исследования в рамках создания подземного сцинтилляционного детектора большого объема – 20-50 килотонн:

1. Исследование оптических и люминесцентных свойств органических растворов, в том числе синтина и сцинтилляторов на их основе, а также анализ их химического состава.
2. Разработка новых органических жидких сцинтилляторов, нагруженных металлом (Gd, Yb, In, Nd, Zr) в том числе с применением полимерных комплексов и измерения их характеристик.
3. Разработка и создание экспериментальных установок для измерения характеристик детекторов на основе металлосодержащих (Yb, In, Gd, Nd, Zr) жидких органических сцинтилляторов.
4. Исследование содержания радиоуглерода (изотоп ^{14}C) в составе различных сцинтилляторов с высокой чувствительностью на уровне не более чем 10-18 г/г.
5. Исследование содержания радиоактивных примесей U, Th и других в составе различных сцинтилляторов с высокой чувствительностью. Исследование перспектив определения содержания радиоактивных примесей в разработанных сцинтилляторах методами молекулярной люминесцентной спектроскопии и нейтронно-активационного анализа с использованием низкофоновых гамма-спектрометров.
6. Исследование факторов, влияющих на стабильность жидких органических сцинтилляторов, нагруженных гадолинием, неодимом и др., предназначенных для использования в крупномасштабных экспериментальных установках нейтринной физики и астрофизики во время длительных измерении.

7. Изучение влияния состава (типа и структурной формулы соединений гадолиния и неодима) на оптические свойства таких сцинтилляторов. Исследования причины деградации (снижения прозрачности) сцинтилляторов, в том числе окисление алкилбензолов, а также возможности влияния на окисление соединения гадолиния, неодима и других металлов. В связи с этим будут проведены работы по поиску добавок, в сцинтиллятор препятствующих его окислению и не влияющих на его прозрачность.
8. Исследовать стабильность органических жидких сцинтилляторов, зависимость их от условий хранения: главным образом, колебаний температуры, освещения, а также объема.
9. Разработка жидкого сцинтиллятора растворенного в воде для экспериментов с нейтрино нового поколения. Жидкие сцинтилляторы на водной основе представляют собой привлекательную рабочую среду для крупномасштабных детекторов с возможностью улучшения разделения черенковских и сцинтилляционных сигналов от одной мишени.
10. Разработка проекта и создание подземного сцинтилляционного детектора большого объема с учетом результатов проведенных работ.

С целью выполнения и координации вышеперечисленных работ в КБГУ создан и функционирует Центр новых детекторных технологии регистрации нейтрино оснащенный современным оборудованием.

Хотелось бы отметить, что в рамках проводимых работ привлечены химики КБГУ, что связано с необходимостью применения их знаний и навыков в области использования специальных поверхностно-активных веществ и их большого опыта научно-исследовательских работ с люминесцирующими комплексами редкоземельных элементов с органическими реагентами под руководством Академика Н.С. Полуэктова.

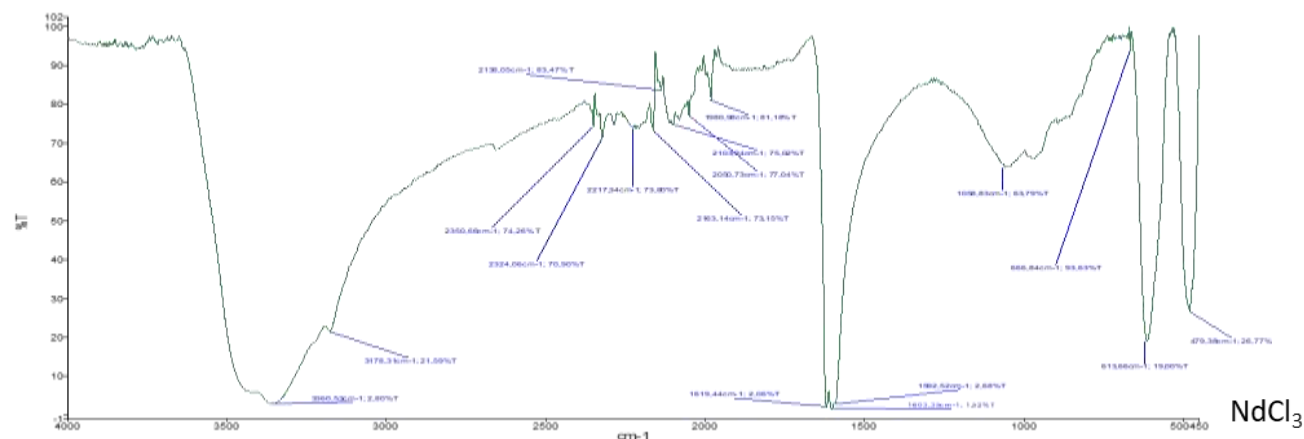
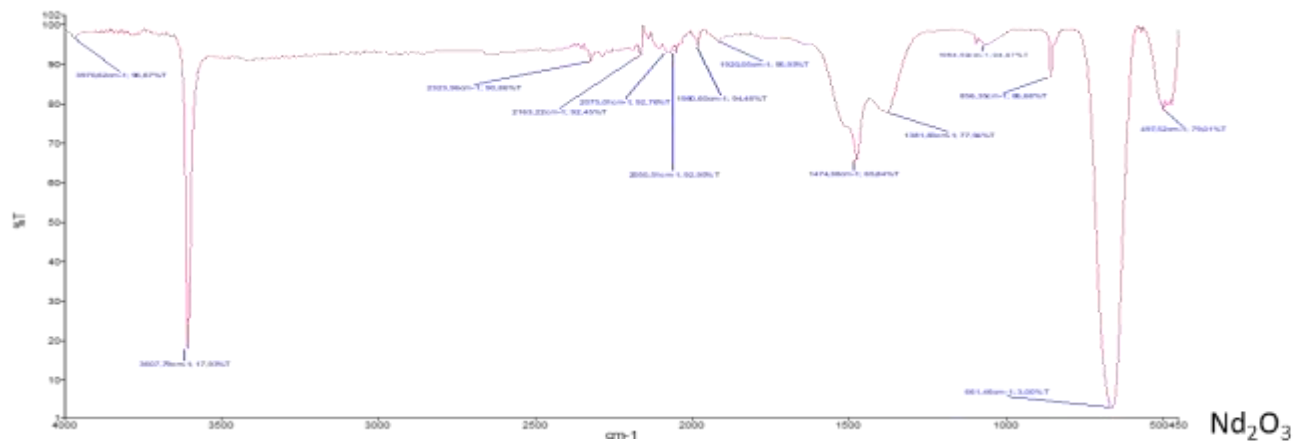
По результатам работ предлагается создать проект детектора с массой 20-50 килотонн, с целью измерения безнейтринного двойного бета-распада изотопа на современном уровне 10^{26} - 10^{28} лет.



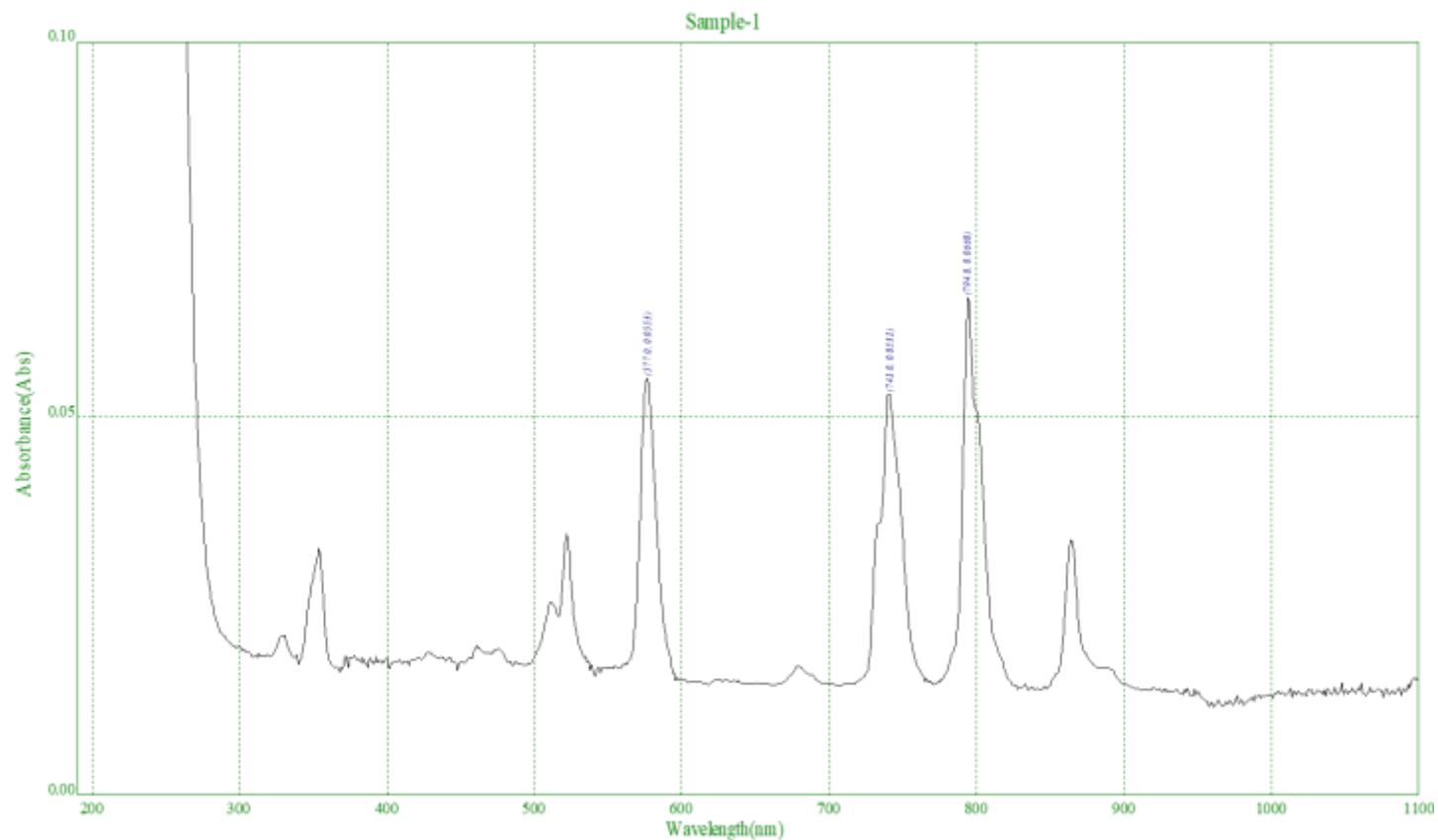
Измерение интенсивности оптического излучения исходных реагентов и полученных веществ проводили на люминесцентном спектрометре Perkin Elmer LS 55



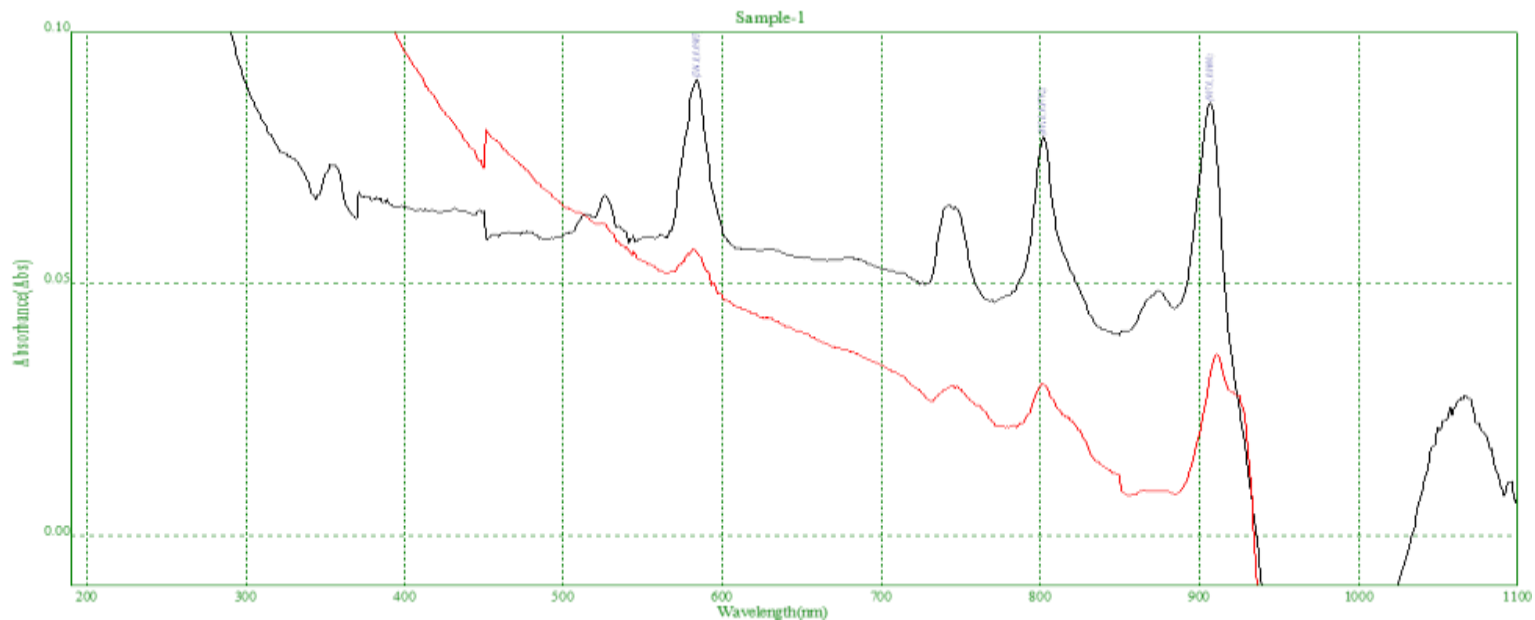
ИК-спектры полученных и исходных химических реагентов и солей снимали на ИК-спектрометре Perkin Elmer Spektrum Two. Частотная область исследования $4000\text{-}450\text{ см}^{-1}$



На данном слайде приведены ИК- спектры оксида и хлорида неодима. Уширение пика в области $3500-3000\text{см}^{-1}$ соответствует содержанию молекул воды, входящих в состав кристаллогидрата хлорида неодима. Пики в области $2500-1800\text{ см}^{-1}$ на обоих спектрах идентичны. Они характеризуют колебания, присущие ионам неодима (III). Образование интенсивного пика в области $1700-1500\text{см}^{-1}$ доказывает наличие хлорид-ионов.



На слайде показаны спектры поглощения 0,005М раствора хлорида неодима с адипиновой кислотой. Как видно, у неодима много полос поглощения в видимой области.



В ходе исследований получили комплексы иона неодима с метакрилатом гуанидина в изопропиловом спирте. Наличие в спектре пиков в видимой области говорит об участии ионов неодима в комплексообразовании (красный цвет). При введении полученного комплекса в синтин некоторые пики, присущие неодиму, сохраняются. Также на некоторых участках спектра видно уменьшение поглощения (черный цвет).