

УДК 539.1.074.6

## ИЗМЕРЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ ИЗОТОПА $^{14}\text{C}$ В ЖИДКОМ ОРГАНИЧЕСКОМ СЦИНТИЛЛЯТОРЕ НА УСТАНОВКЕ МАЛОГО ОБЪЕМА

© 2012 г. С. Buck\*, О. Besida\*\*, С. М. Cattadori\*\*\*, F. X. Hartmann\*,  
Th. Lasserre\*\*, **D. Motta\***, A. di Vacri\*\*\*, L. Pandola\*\*\*, S. Schoenert\*,  
U. Schwan\*, И. Р. Барабанов, Л. Б. Безруков, Н. А. Данилов\*\*\*\*, Е. А. Янович

*Институт ядерных исследований РАН*

*Россия, 117312, Москва, просп. 60-летия Октября, 7а*

*\*Max Planck Institut für Kernphysik*

*Saupfercheckweg, 1, D-69117, Heidelberg, Germany*

*\*\*CEA (Commissariat à l'énergie atomique)/Saclay*

*F-91191, Gif-sur-Yvette, France*

*\*\*\*Laboratory Nazionali del Gran Sasso (LNGS)*

*S.S.17bis km, 18.910, I-67010, Assergy (AQ), Italy*

*\*\*\*\*Институт физической химии и электрохимии им А. Н. Фрумкина РАН*

*Россия, 119991, Москва, Ленинский просп., 31*

Поступила в редакцию 07.06.2011 г.

Описана низкофоновая сцинтилляционная установка, которая была расположена в подземной лаборатории Gran Sasso и состояла из девяти идентичных ячеек объемом 2 л каждая. С помощью этой установки было измерено содержание  $^{14}\text{C}$  в сцинтилляторе на основе РХЕ. Полученный результат,  $R(^{14}\text{C}/^{12}\text{C}) = (12.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-18}$ , может быть использован для более детального исследования возможных каналов образования  $^{14}\text{C}$  в органических сцинтилляторах.

### ВВЕДЕНИЕ

Так называемый радиоуглеродный метод, предложенный Либби в 1949 г. [1] и основанный на измерении активности изотопа  $^{14}\text{C}$  в различных органических средах, широко используется для датирования самых различных органических останков. Данная работа посвящена измерению ультрамалых концентраций  $^{14}\text{C}$  в жидких органических сцинтилляторах (ж.о.с.).

Внутренняя активность от распада изотопа  $^{14}\text{C}$ , присущая всем органическим сцинтилляторам, естественным образом ограничивает область регистрации солнечных нейтрино в области низких энергий энергетическим порогом  $>156$  кэВ, а с учетом энергетического разрешения — до 250 кэВ [2]. Впервые с высокой чувствительностью содержание  $^{14}\text{C}$  в жидком органическом сцинтилляторе было измерено на установке STF (4.8 м<sup>3</sup> сцинтиллятора) [3], являющейся прототипом детектораorexino [2]. Сцинтиллятор содержал псевдокумол (РС) с растворенной добавкой РРО (1.5 г/л), измеренная концентрация  $^{14}\text{C}$  составила  $R(^{14}\text{C}/^{12}\text{C}) \sim 2 \cdot 10^{-18}$  г/г. На этой же установке была измерена концентрация  $^{14}\text{C}$  в другом сцинтилляторе, РХЕ (фенил-кселилэтан)/р-Тр(2 г/л)/bis-MSB(20 мг/л), содержание  $^{14}\text{C}$  составило  $R(^{14}\text{C}/^{12}\text{C}) \sim 9.1 \cdot 10^{-18}$  г/г [4]. Аналогичные измерения были выполнены на установке

KamLAND (1000 т ж.о.с. на основе смеси РС-додекан/РРО (2 г/л)), измеренная концентрация  $^{14}\text{C}$  составила  $\sim 4 \cdot 10^{-18}$  г/г [5].

Эксперименты нового поколения с детекторами на основе ж.о.с. (измерение солнечных  $pp$ -нейтрино с помощью реакции  $\nu e^-$  рассеяния) требуют разработки сцинтилляторов с ультранизким фоном в области низких энергий. В связи с этим становится актуальной возможность измерения малых активностей  $^{14}\text{C}$  в различных образцах ж.о.с. на установках небольшого объема. Это позволит более детально изучить влияние различных факторов (состава и возраста исходного сырья, а также всего технологического цикла приготовления сцинтиллятора) на качество сцинтиллятора, что важно для разработки ж.о.с. с минимальной концентрацией  $^{14}\text{C}$ .

Ниже приводятся результаты измерения активности  $^{14}\text{C}$  в ж.о.с. с использованием ячейки, содержащей  $\sim 2$  л ж.о.с. Установка создавалась как прототип индийсодержащего детектора [6], предназначенного для регистрации низкоэнергетических ( $pp$  и  $^7\text{Be}$ ) солнечных нейтрино на основе реакции захвата индием  $\nu_e(^{115}\text{In}, ^{115}\text{Sn})e^-$  [7].



Рис. 1. Принципиальная схема экспериментальной сцинтилляционной ячейки.

### КОНСТРУКЦИЯ УСТАНОВКИ

Установка содержала сборку из девяти идентичных сцинтилляционных ячеек, расположенных внутри низкофоновой пассивной защиты [8, 9]. Принципиальная схема сцинтилляционной ячейки представлена на рис. 1.

Ячейки размером  $100 \times 5 \times 5$  см с толщиной стенок 2 мм изготовлены из оптического кварца (фирма Heraeus Quartz Glass GmbH, Германия). К торцам ячеек через световоды из органического стекла длиной 50 см подсоединены фотомножители (ETL 9954В, 2"). Световоды служили для подавления фона в сцинтилляционной ячейке от радиоактивных примесей, главным образом  $^{40}\text{K}$ , содержащихся в стекле ф.э.у. Для повышения эффективности светосбора боковые поверхности ячейки были обернуты зеркальной отражающей пленкой VM2000.

Сигналы с двух ф.э.у. усиливались с помощью двух быстрых усилителей (LeCroy 612AM), после чего, при превышении порога дискриминатора (CAEN N224), поступали на вход а.ц.п. (LeCroy ADC 2249W). Энергетическая калибровка ячейки в диапазоне энергий до 2.6 МэВ осуществлялась с помощью двух  $\gamma$ -источников ( $^{137}\text{Cs}$  и  $^{228}\text{Th}$ ). При

положении источника в середине ячейки (на равном расстоянии от ф.э.у.) амплитуды сигналов с двух ф.э.у. уравнивались.

Установка была расположена в подземной лаборатории Gran Sasso, где интенсивность космических лучей подавлена в  $\sim 10^6$  раз. Поток мюонов на этой глубине составляет  $1.1 \text{ мюон} \cdot \text{ч}^{-1} \cdot \text{м}^{-2}$ . Для подавления внешнего фона, вызванного  $\gamma$ -квантами и нейтронами от окружающих горных пород, использовалась трехслойная пассивная защита: 15 см электролитической меди, 23 см стали и 20 см полиэтилена. Внутренний объем защиты, где размещалась сцинтилляционная сборка, был равен  $70 \times 70 \times 400$  см.

Радиационная чистота меди внутреннего слоя защиты в значительной степени определяет внешний фон сцинтиллятора. Ее уровень был измерен с помощью HPGe-детектора, установленного в подземной лаборатории Gran Sasso [10]. Результаты измерений в течение 70.45 дней приведены ниже:

$^{238}\text{U}$	$< 2 \cdot 10^{-12}$ г/г
$^{232}\text{Th}$	$< 7 \cdot 10^{-12}$ г/г
ест.К	$< 4 \cdot 10^{-12}$ г/г
$^{60}\text{Co}$	$< 11$ мкБк/кг

Активность отдельных  $\gamma$ -линий фона, измеренная внутри пассивной защиты

Источник	$E$ , кэВ	Активность, распад/сут
$^{214}\text{Pb}$	352	$1.1 \pm 0.2$
$e^- - e^+$	511	$0.28 \pm 0.11$
$^{214}\text{Bi}$	609	$0.21 \pm 0.11$
$^{137}\text{Cs}$	662	$0.32 \pm 0.12$
$^{228}\text{Ac}$	911	$0.18 \pm 0.09$
$^{60}\text{Co}$	1173	$< 0.15$
$^{60}\text{Co}$	1333	$< 0.10$
$^{40}\text{K}$	1461	$0.64 \pm 0.17$
$^{208}\text{Tl}$	2616	$0.32 \pm 0.12$
Диапазон	100–400	$69 \pm 2$
Диапазон	400–2700	$26 \pm 1$

Ячейки периодически калибровались капсулированными  $\gamma$ -источниками  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{228}\text{Th}$  ( $^{208}\text{Tl}$ ), которые вводились внутрь установки через 4 фторопластовые трубки. Источник  $^{137}\text{Cs}$  использовался для калибровки в области низких энергий, а  $^{228}\text{Th}$  – в высокоэнергетической области спектра, линия 2.6 МэВ ( $^{208}\text{Tl}$ ).

Герметичность пассивной защиты обеспечивала возможность удаления воздуха и содержащихся в нем инертных радиоактивных газов ( $^{222}\text{Rn}$ ) из внутреннего объема установки путем продувки азотом. Все измерения проводились в условиях непрерывной продувки азотом с расходом  $\sim 0.3 \text{ м}^3/\text{ч}$ .

Уровень радиоактивного фона внутри защиты был измерен с помощью HPGe-детектора с массой кристалла 0.9 кг. Полученные результаты в сравнении с измеренным фоном вне защиты представлены на рис. 2. Снижение фона во всей области энергий составило  $\sim 10^5 - 10^6$  раз. Достиг-

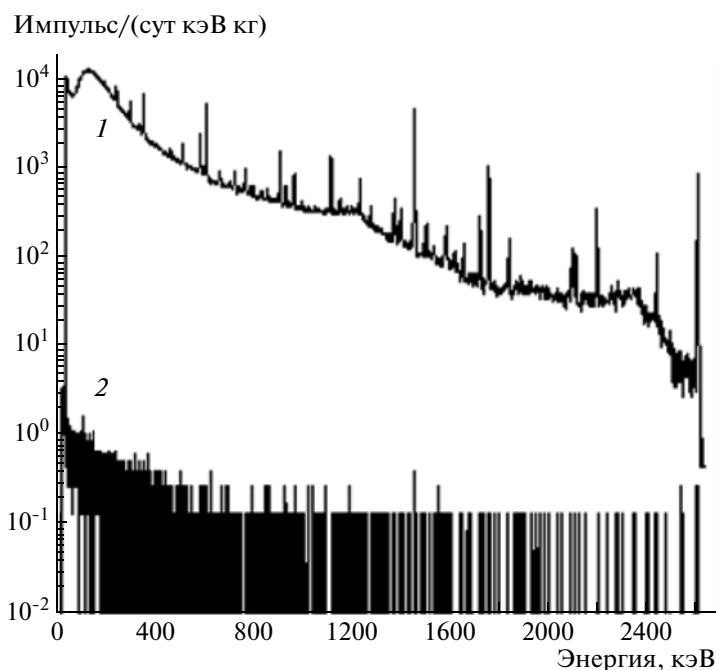


Рис. 2. Спектр фона вне (1) и внутри (2) пассивной защиты.

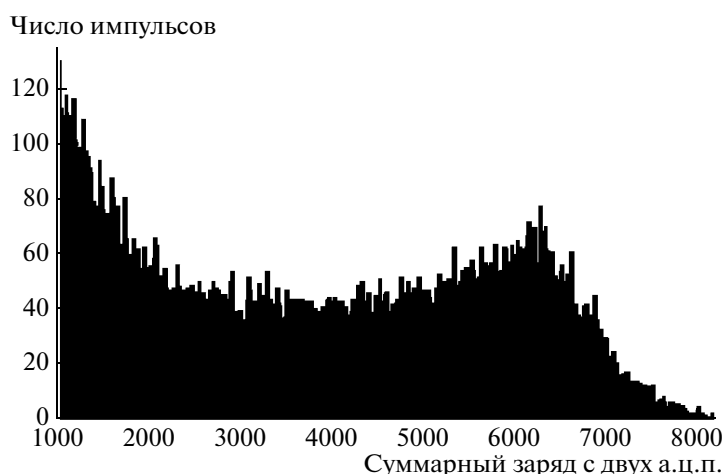


Рис. 3. Спектр от источника  $^{137}\text{Cs}$ , полученный для сцинтиллятора на основе РХЕ.

нутые фоновые условия были одними из лучших среди опубликованных в литературе. Для более детальной характеристики фона в таблице приведены интенсивности основных  $\gamma$ -линий спектра.

Был так же измерен фон от используемых в установке фотоумножителей. Активности, мкБк, радиоактивных примесей в ф.э.у. (ETL 9954В, 2"), измеренные HPGe-детектором, представлены ниже [11]:

$^{226}\text{Ra}$	$^{234}\text{Pa}-m$	$^{235}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{60}\text{Co}$
$176 \pm 5$	$156 \pm 74$	$10 \pm 2$	$35 \pm 2$	$136 \pm 14$	$<1$	$1.8 \pm 0.5$

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Все 9 ячеек были залиты сцинтиллятором на основе РХЕ/р-Тр(2 г/л)/bis-MSB(20 мг/л). На рис. 3 приведен амплитудный спектр от источника  $^{137}\text{Cs}$ , полученный на одной из ячеек прототипа. Измеренное энергетическое разрешение составило  $5.4 \pm 0.2\%$  для энергии 477 кэВ и практически не зависело от местоположения  $\gamma$ -источника относительно ф.э.у. Измерения с источником были выполнены на расстояниях 10, 30, 50 и 70 см от ф.э.у.

Был измерен фон сцинтилляционных ячеек в течение 22 сут. Отбирались события, превышающие порог регистрации 35 кэВ. Скорость счета в

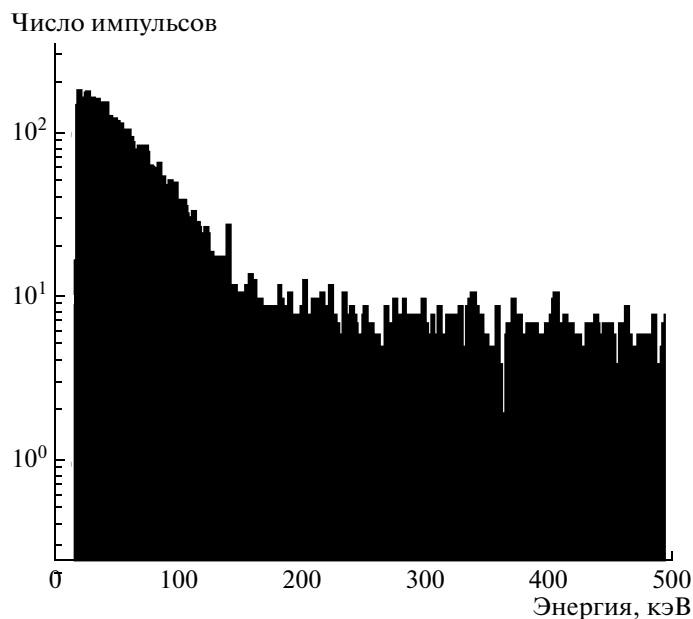


Рис. 4. Фон центральной ячейки установки, заполненной сцинтиллятором РХЕ/р-Тр(2 г/л)/bisMSB(20 мг/л).

ячейках колебалась в пределах  $(5-7) \cdot 10^{-3}$  импульс/с. Масса сцинтиллятора РХЕ в каждой ячейке составляла  $\sim 1850$  г. Полученный спектр фона идентичен для всех девяти ячеек. На рис. 4 представлен спектр фона центральной ячейки при пороге регистрации 20 кэВ.

Форма спектра в диапазоне энергий меньше 150 кэВ хорошо согласуется с ожидаемым  $\beta$ -спектром от распада  $^{14}\text{C}$  в органическом сцинтилляторе. Суммарный фон центральной ячейки в области 20–200 кэВ составил  $(4.92 \pm 0.07) \cdot 10^{-3}$  импульс/с. Вклад других фоновых источников в область распада  $^{14}\text{C}$  был учтен с помощью экстраполяции фона из области  $>200$  кэВ. На основе проведенных

измерений было вычислено содержание  $^{14}\text{C}$  в сцинтилляторе —  $R(^{14}\text{C}/^{12}\text{C}) = (12.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-18}$ .

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Продемонстрирована возможность измерения малых концентраций  $^{14}\text{C}$  (на уровне  $\sim 10^{-17}$ – $10^{-18}$  ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ )) на сцинтилляционной ячейке, содержащей  $\sim 2$  л ж.о.с. Полученные результаты являются первым шагом для более детальных исследований механизмов появления  $^{14}\text{C}$  в ж.о.с. и поиска ж.о.с. с более низкой активностью  $^{14}\text{C}$ .

Авторы хотят особенно отметить вклад Dario Motta в обработку и анализ экспериментальных данных  $\beta$ -спектра от распада  $^{14}\text{C}$ .

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Libby W.F., Anderson E.C., Arnold J.R. // Science. 1949. V. 109. № 2827. P. 227.
2. Arpesella C., Bellini G., Benziger J. et al. // Phys. Lett. B. 2008. V. 658. P. 101.
3. Alimonti G., Angloher G., Arpesella C. et al. // Phys. Lett. B. 1998. V. 422. P. 349.
4. Buck H.O., Balata M., de Bari A. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 2008. V. A585. № 1–2. P. 48.
5. Keefer G. // arXiv:1102.3786v1
6. Buck C., Barabanov I., Besida O. et al. // Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.). 2005. V. 143. P. 487; Barabanov I., Besida O., Buck C. et al. // Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.). 2005. V. 143. P. 559.
7. Raghavan R. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 37. P. 259.
8. Motta D. // 2004. PhD thesis. Heidelberg.
9. Motta D., Buck C., Hartmann F.X. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 2005. V. A547. P. 368.
10. Neder H. // 2002. Kupfer-Probe fur LENS – “CuHD”. Auswertung der ersten Messperiode. Memo; <http://www.mpi-hd.mpg.de>
11. Laubenstein M. // 2003. private communication; <http://www.lngs.infn.it>