ПРИБОРЫ И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА, 2012, № 5, с. 37–42

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 539.1.074.6

Nd-СОДЕРЖАЩИЙ ЖИДКИЙ ОРГАНИЧЕСКИЙ СЦИНТИЛЛЯТОР ДЛЯ ЭКСПЕРИМЕНТА ПО ИЗМЕРЕНИЮ ДВОЙНОГО БЕТА-РАСПАДА

© 2012 г. И. Р. Барабанов, Л. Б. Безруков, С. Cattadori*, Н. А. Данилов**, A. Di Vacri***, A. Ianni***, S. Nisi***, Г. Я. Новикова, F. Ortica****, A. Romani****, С. Salvo***, О. Ю. Смирнов*****, Е. А. Янович

Институт ядерных исследований РАН Россия, 119899, Москва, просп. 60-летия Октября, 7а *Instituto Nazionale di Fisica Nucleare-Milano Bicocca, Milano, Italy **Институт физической химии и электрохимии им А.Н. Фрумкина РАН,

Москва, Россия

*** Instituto Nazionale di Fisica Nucleare-Laboratori Nazionali del Gran Sasso,

Assergi, Italy

****Dipartimento di Chimica, Universita di Perugia and INFN, Perugia, Italy

*****Объединенный институт ядерных исследований, Дубна Московской обл., Россия Поступила в редакцию 12.09.2012 г.

Поступила в редакцию 12.09.2012 1.

Для эксперимента по поиску 0vββ-распада на ядре ¹⁵⁰Nd разработан Nd-содержащий жидкий органический сцинтиллятор на основе растворителя псевдокумола (PC). Для нескольких значений концентрации неодима измерены оптические характеристики сцинтиллятора. Измерения, выполненные на двух модулях длиной 1 и 2 м, позволили оценить эффективную прозрачность Nd-содержащего (6.5 г/л Nd) сцинтиллятора PC. Продемонстрирована стабильность характеристик сцинтиллятора в течение 1 года. Проведен анализ содержания радиоактивных примесей и выполнена оценка чувствительности эксперимента к эффективной массе майорановского нейтрино $\langle m_v \rangle \sim 0.05-0.1$ эВ для детектора, содержащего 12 т сцинтиллятора.

1. ВВЕДЕНИЕ

Поиск безнейтринного двойного β-распада является фундаментальной задачей современной физики. Программа поиска и надежного подтверждения событий, связанных с распадом 0νββ, включает постановку экспериментов с использованием ядер различных элементов. В настоящий момент наилучший результат был получен в эксперименте [1] на ядре ⁷⁶Ge. Одним из перспективных кандидатов для проведения эксперимента по поиску распада $0\nu\beta\beta$ является ядро изотопа ¹⁵⁰Nd. В планируемых экспериментах SUPERNEMO [2] и SNO+ [3] рассматривается возможность применения этого изотопа. Большая энергия перехода 150 Nd \rightarrow 150 Sm (3.367 МэВ) увеличивает вероятность процесса $0\nu\beta\beta$ -распада (~ $E_{\beta\beta}^{5}$) и, кроме того, обеспечивает более благоприятные фоновые условия благодаря уменьшению влияния естественной радиоактивности детектора и окружающих материалов.

В предыдущих экспериментах по двойному β -распаду на ядре ¹⁵⁰Nd были использованы полупроводниковый германиевый детектор (измерялся переход на возбужденный уровень ¹⁵⁰Sm [4]) и трековый детектор (эксперимент NEMO [5]).

В эксперименте NEMO-3 [6] наиболее точно был измерен период полураспада двухнейтринного двойного β-распада (2vββ) на основное и возбужденное состояния ядра ¹⁵⁰Sm, а также получен наилучший предел на безнейтринную моду распада 0vββ ядра ¹⁵⁰Nd – $T_{1/2}$ (0v) > 1.8 · 10²² лет (90% CL (Confidence Level или уровень достоверности)).

Увеличение массы изотопа ¹⁵⁰Nd повышает чувствительность эксперимента, т.е. обеспечивает возможность достижения более высокого предела величины $T_{1/2}(0\nu\beta\beta)$. Детектор на основе жидкого сцинтиллятора, в принципе, позволяет осуществить эксперимент с десятками, сотнями и более килограммов растворенного неодима. Эффективность регистрации электронов от $0\nu\beta\beta$ -распада при этом будет близка к 100%. Помимо неодимсодержащего сцинтиллятора, разрабатываются также олово- (¹²⁴Sn) [7] и молибденсодержащий (¹⁰⁰Mo) [8] сцинтилляторы для поиска $0\nu\beta\beta$ -событий.

В данной статье приводятся результаты исследования, связанного с разработкой Nd-содержащего сцинтиллятора, полученные в рамках проекта MetaLS.





2. ЭКСПЕРИМЕНТ

2.1. Световыход

Высокое энергетическое разрешение детектора является важным фактором в экспериментах по поиску 0увв-распада, позволяющим дискриминировать различные фоновые события, особенно вызванные 2vββ-распадом. Разработка Nd-содержашего сцинтиллятора направлена на получение такой композиции, которая позволила бы обеспечить наилучшие характеристики световыхода и прозрачности. В качестве основы сцинтиллятора был использован псевдокумол РС (1,2,4-триметилбензол), световыход которого при концентрации активатора РРО (2,5-дифенилоксазол) 1.5 г/л составляет ~11000 фотонов/МэВ [9]. Исходя из опыта, полученного при разработке Yb/In/Gd-содержащих сцинтилляторов [10], композиция раствора содержала соль карбоксилата неодима, а именно металлоорганический комплекс на основе 2-метилвалериановой кислоты Nd(2MVA). Изменяя количество растворенного неодима в псевдокумоле, была измерена зависимость световыхода от концентрации металла в сцинтилляторе. Световыход измерялся на образцах объемом 5 мл, залитых в оптические кюветы с притертым дном, вертикально установленные на фотокатод ф.э.у. (3", Philips XP3462). Перед измерением жидкость барботировалась аргоном для удаления растворенного кислорода воздуха. В качестве γ -источника использовался ¹³⁷Cs ($E_{\gamma} = 662 \text{ кэB}$). Полученная зависимость световыхода от концентрации Nd для сцинтиллятора с активатором ВРО (2-(4-бифенил)-5-фенилоксазол) представлена на рис. 1.

Также был измерен световыход сцинтиллятора с добавками PPO и bis-MSB. Для композиции Nd(6.5 г/л) PC(PPO(1.5 г/л), bis-MSB(30 мг/л))

световыход составил ~80% относительно не содержащего металл PC(PPO(1.5 г/л)). Дальнейшее повышение концентрации металла приводило к падению световыхода до уровня ~35% (Nd(52 г/л)). Примеры энергетических спектров для сцинтилляторов с различным содержанием растворенного неодима приведены на рис. 2. На спектре 3 (52 г/л Nd) виден пик полного поглощения.

2.2. Прозрачность

Предварительная информация об эффективной прозрачности неодимсодержащих жидких образцов в области спектральной чувствительности ф.э.у. была получена из спектров поглощения в ультрафиолетовой области. Измерения были проведены на спектрофотометрах UV/VIS PE Lambda 18 и Cary 300 Scan (VARIAN) с использованием кварцевых кювет длиной от 10 до 100 мм. На рис. 3 представлен спектр поглошения неодима в псевдокумоле и для сравнения — эмиссионные спектры РРО, ВРО. Согласно рисунку, левый край спектра РРО в большей степени по сравнению с ВРО перекрывается с линией поглощения неодима (~354 нм). Это ведет к поглощению фотонов и, как следствие, должно сказываться на энергетическом разрешении сцинтилляционного детектора. В дальнейшем все исследования с Nd-содержащим сцинтиллятором проводились с использованием активатора ВРО или РРО с добавкой шифтера bis-MSB (~30 мг/л).

Помимо поглощения фотонов ионами растворенного неодима, возможно влияние на прозрачность примесей других элементов. Так, было обнаружено, что в ряде образцов неодима содержится примесь другого редкоземельного элемента - празеодима Pr – на уровне ~1%. Линия поглощения Pr ($\lambda = 444.2$ нм) с коэффициентом экстинкции ε = 10.49 л/(моль см) находится в области эмиссионного спектра активатора. На рис. 4 изображены у.ф.-спектры поглощения двух образцов Nd-содержащего раствора, приготовленных из оксида неодима, от различных фирм производителей. Масс-спектрометрический анализ на ICP-MS показал, что образец оксида неодима фирмы Aldrich имеет наименьшую концентрацию Pr (<3 ppm). В дальнейшем все исследования проводились именно с этим сцинтиллятором.

2.3. Время высвечивания

Малое время высвечивания, характерное для жидкого органического сцинтиллятора, позволяет достичь хорошего пространственного разрешения, что является важным условием для эффективной дискриминации фоновых событий от распадов ²³⁸U(²²⁶Ra), ²³²Th и других радиоактивных ядер. Чтобы оценить возможное влияние неодима на временные характеристики сцинтиллятора,



Рис. 2. Спектры (источник 137 Cs), полученные для трех образцов жидкого органического сцинтиллятора с различным содержанием растворенного Nd: I - 0; 2 - 10.2; 3 - 52.0 г/л.

было измерено время высвечивания двух образцов: РС и РС(РРО(1.5 г/л), Nd(10 г/л)). Измерения выполнялись с помощью флуоресцентного спектрометра Edinburgh Instruments 199S в режиме единичного счета фотонов. Радиационным источником возбуждения служила Хе-лампа ($\lambda = 267$ нм). Временное разрешение спектрометра 0.4 нс.

По результатам измерений время высвечивания составило: $\tau_F = 29.5$ нс для РС и $\tau_F = 3.5$ нс для



Рис. 3. Спектр поглощения неодима в псевдокумоле (*1*) и эмиссионные спектры активаторов РРО (*2*) и ВРО (*3*).

ПРИБОРЫ И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА № 5 2012



Рис. 4. Спектры поглощения водных растворов соли хлорида неодима с концентрацией Pr: $\sim 10^4$ ppm (*I*); <3 ppm (Aldrich) (*2*). Размер кюветы 10 см.





Рис. 5. Положение комптоновского края спектра $(L_{1/2})$ в зависимости от расстояния между источником ¹³⁷Сѕ и ф.э.у. для двух композиций сцинтиллятора: l, 2 - PC(PPO(1.5 г/л)) и 3, 4 - PC(PPO(1.5 г/л)), bis-MSB(30 мг/л), Nd(6.5 г/л). Две кривые для одного образца отображают полученную зависимость для каждого из двух ф.э.у., установленных по торцам ячейки.

РС(РРО(1.5 г/л), Nd(10 г/л)). Полученные данные согласуются с результатами измерений, выполненных для образцов РС и РС(РРО(1.5 г/л)) с помощью ионизационного источника возбуждения методом задержанных совпадений [11]. Таким образом, добавка неодима в концентрации <10 г/л не ухудшает временные характеристики сцинтиллятора, время высвечивания определяется концентрацией растворенного РРО.

2.4. Оптическая ячейка длиной 1 м

Исследование оптических характеристик Ndсодержащего сцинтиллятора было продолжено с помощью кварцевой ячейки длиной 1 м и сечением 5×5 см². Сцинтилляционная вспышка регистрировалась двумя ф.э.у. (3", Philips XP3462), установленными по торцам ячейки. Для увеличения светосбора боковые стенки ячейки были обернуты отражающей зеркальной пленкой VM2000. В качестве источника ионизации использовался уизотоп ¹³⁷Сs активностью 100 кБк. Источник находился внутри свинцового контейнера с диаметром коллиматора 5 мм. Измерения выполнялись при установке источника ¹³⁷Сs около ячейки на различном расстоянии относительно ф.э.у. Объем залитого в ячейку сцинтиллятора составлял ~2.2 л. Ячейка после заливки сцинтиллятора продувалась азотом и герметично закрывалась.

Были проведены измерения со сцинтилляторами PC(PPO(1.5 г/л)) и PC(PPO(1.5 г/л), bisMSB(30 мг/л), Nd(6.5 г/л)). Данные, полученные для PC(PPO(1.5 г/л)), были использованы для вычисления эффективной прозрачности Nd-содержащего сцинтиллятора.

Для двух композиций сцинтиллятора была измерена зависимость амплитуды сигнала от расстояния между источником ¹³⁷Сѕ и ф.э.у. Перед началом измерений сигналы с двух ф.э.у. уравнивались, для чего у-источник устанавливался в середине ячейки, на расстоянии 50 см от ф.э.у. Для набора спектров использовалась схема совпадений, в которой сигналы с двух ф.э.у., усиленные (усилитель PS777) и задержанные на ~200 нс, подавались на два входа а.ц.п. (LeCroy 2249A). Время интегрирования составляло 100 нс. Количество собранного света в зависимости от расстояния до у-источника оценивалось по положению края 50%-ного уровня комптоновского спектра электронов L_{1/2}. Полученная зависимость была аппроксимирована функцией вида

$$y(x) = k_1 / x^2 + k_2 e^{-x/\lambda},$$

где первый член функции отражает влияние геометрического фактора на светосбор, а второй описывает уменьшение числа собранных фотонов из-за потерь при распространении вдоль оптической ячейки. Коэффициенты k_1 , k_2 и эффективная длина поглощения (прозрачность) λ неизвестны и определялись по результатам фитирования. На рис. 5 представлены результаты измерений интенсивности собранного света в зависимости от расстояния между источником ¹³⁷Cs и одним из двух ф.э.у.

В результате фитирования для ячейки с двумя композициями сцинтиллятора была вычислена эффективная длина поглощения λ : 168 ± 12 см для PC и 74 ± 3 см для NdLS. Измеренная в сферической геометрии (эксперимент BOREXINO, сцинтиллятор PC(PPO(1.5 г/л))) величина λ_{PC} составила ~8 м. [12]. Более низкое значение λ в случае одномерной ячейки объясняется потерей фотонов в боковых стенках ячейки из-за несовершенства качества поверхности. Нормировка результатов измерений ячейки с Nd-содержащим сцинтиллятор ма значение $\lambda = 8$ м (PC(PPO(1.5 г/л)), BOREXINO) дает величину $\lambda_{NdLS} = 216 \pm 12$ см.

2.5. Стабильность

Стабильность характеристик сцинтиллятора является важным фактором при создании детектора по поиску $0\nu\beta\beta$ -распада. Повторные измерения эффективной длины поглощения (λ) Nd-содержащего сцинтиллятора в ячейке длиной 1 м были проведены через год. Результаты двух измерений (рис. 6), сделанных с интервалом 1 год, показали, что в пределах точности измерений величина λ не изменилась.

2.6. Содержание радиоактивных примесей и фон Nd-содержащего сцинтиллятора

Наиболее опасным в экспериментах по поиску $0\nu\beta\beta$ -распада является внутренний фон, обусловленный содержанием радиоактивных примесей. Большая энергия перехода (3.367 МэВ) ядра ¹⁵⁰Nd является исключительно благоприятным фактором, так как в этом случае суммарная энергия двух электронов, образовавшихся в результате $0\nu\beta\beta$ -распада, лежит в области, превышающей энерговыделение от распада большинства естественных радиоактивных элементов. Исключение составляет ²³²Th, а именно изотоп ²⁰⁸Tl ($T_{1/2} = 3.1$ мин), относящийся к продуктам распада ториевого ряда и распадающийся путем β^- -распада с энергией ~5 МэВ.

С помощью низкофонового полупроводникового НРGе-детектора (лаборатория Гран Сассо, Италия [13]) и масс-спектрометра ICP-MS было измерено содержание примесей в образце оксида неодима Nd_2O_3 . Измерение на НРGе-детекторе проводилось в течение 37.3 дней. Анализировался образец Nd_2O_3 массой 50.2 г. Результаты измерений представлены в таблице.

Из таблицы видно, что анализ содержания тория в оксиде неодима, выполненный с помощью двух различных методов, дает сопоставимые значения концентрации. В заключение было также измерено содержание ²³²Th непосредственно в Ndсодержащем жидком сцинтилляторе (Nd(6.5 г/л)). Для этого кварцевая ампула со сцинтиллятором объемом 400 мл была опущена и установлена в центре установки СТГ (BOREXINO) [14], содержащей ~4 т жидкого органического сцинтиллятора РС(РРО(1.5 г/л)). Регистрировались события в области 2.6 МэВ (±3о), ограниченной радиусом 40 см относительно центра детектора. Измерения проводились в течение 16.85 дней. По результатам измерений был получен предел на содержание ²³²Th (<1 ppb).

Номер канала а.ц.п.



Рис. 6. Количество собранного света в зависимости от расстояния между источником ¹³⁷Сs и ф.э.у., измеренное с интервалом 1 год. Ячейка длиной 1 м заполнена Nd-содержащим сцинтиллятором.

3. ПРОЕКТ ДЕТЕКТОРА НА 12 т Nd-СОДЕРЖАЩЕГО СЦИНТИЛЛЯТОРА

Рассмотрим возможность создания Nd-содержащего жидкого сцинтилляционного детектора с чувствительностью, соответствующей массе нейтрино на уровне ~100 мэВ. Предполагается использовать сферическую конструкцию детектора [15], содержащего 12 т жидкого сцинтиллятора с концентрацией Nd 6.5 г/л, аналогичную детектору BOREXINO. Концентрацию изотопа ¹⁵⁰Nd в естественной смеси планируется увеличить до 60%, например, с помощью технологии лазерного разделения AVLIS [16]. Достигнутые характеристики Nd-сцинтиллятора (световыход 80% относительно РС(РРО(1.5 г/л)) и эффективная прозрачность ~2 м) с учетом того, что ф.э.у. (квантовая чувствительность фотокатода 35%) занимают 80% поверхности сферы, позволяют получить энергетическое разрешение ~3.5% для энергии 3.367 МэВ $(Q_{\beta\beta}).$

Содержание примесей, ppb, в оксиде неодима, измеренное с помощью HPGe-детектора и масс-спектрометра ICP-MS

Гамма-спектрометрия (НРGе-детектор)							
²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²²⁶ Ra	²³⁴ Th	234 Pa _m	²³⁵ U	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
6.6 ± 1.8	8.5 ± 1.1	0.39 ± 0.23	<22	<9.5	<9.1	l <86 мБк/кг	9.7 ± 2.7 мБк/кг
Масс-спектрометрия (ICP-MS)							
Проба № 1			Проба № 2			Проба № 3	
²³² Th	²³⁸ U		²³² Th	²³⁸ U		²³² Th	²³⁸ U
5±1		<0.2	7 ± 2	7 ± 2 <0.		6 ± 1	< 0.3

ПРИБОРЫ И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА № 5 2012



Рис. 7. Ожидаемый спектр электронов для $m_{\beta\beta}^2 \sim 100$ мэВ в жидком сцинтилляционном детекторе, содержащем 92 кг обогащенного ¹⁵⁰Nd (60%): *1* – фон от распада ²⁰⁸TI; *2* – фон от 2vββ-распада ¹⁵⁰Nd; *3* – ожидаемый эффект от 0vββ-распада ¹⁵⁰Nd; *4* – суммарный спектр.

В [15] было показано, что концентрация 232 Th в сцинтилляторе PC(PPO) может быть понижена до ~10⁻¹⁷ г/г.

Примесь тория (²⁰⁸Tl) в неодиме является основным источником фона. Возможны две методики очистки неодима от тория: хроматографическое разделение на колонке, наполненной ионообменной смолой UTEVA, обеспечивающее фактор разделения неодима от U и Th ~200, и основанная на жидкостной экстракции методика, позволяющая уменьшить концентрации U и Th до уровня ~1 ppt [17]. При достижении степени очистки от Th уровня 1 ppt и одновременном 90%-ном подавлении фона (регистрация цепочки ²¹²Ві-²¹²Ро) фон от распада 208 Tl в области $Q_{\beta\beta}$ (1 σ) составит ~10 распадов в день. На рис. 7 в качестве иллюстрации приведен ожидаемый спектр электронов в случае реализации детектора, содержащего 12 т сцинтиллятора, для массы нейтрино 100 мэВ.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан Nd-содержащий сцинтиллятор с высокими оптическими и сцинтилляционными параметрами. Реализация полномасштабного детектора, содержащего 12 т сцинтиллятора, даст возможность исследовать область эффективных масс майорановского нейтрино на уровне ~50–100 мэВ. Это позволит подтвердить или опровергнуть результат работы [18], в которой объявлено о наблюдении положительного эффекта при измерении 0vββ-распада ⁷⁶Ge для массы > 170 мэВ.

Авторы выражают благодарность Frank Calaprice и Daniele Montanino за плодотворное обсуждение проблемы регистрации безнейтринного двойного β-распада с помощью жидких органических сцинтилляторов, а также Matthias Laubenstein за его помощь в измерении образцов Nd на полупроводниковом HPGe-детекторе.

Работа выполнена при финансовой поддержке INFN (Instituto Nazionale di Fisica Nucleare), а также гранта РФФИ 09-02-92423-КЭ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Klapdor-Kleingrothaus H.V., Dietz A., Baudis L. et al. //* Eur. Phys. J. 2001. V. A12. P. 147.
- Ohsumi H. for NEMO and SuperNEMO Collaboration // Journal of Physics: Conference Series. 2008. № 120. P. 052054.
- 3. *Chen M.C.* for the SNO + collaboration // 34th International Conference on High Energy Physics (ICHEP 2008). Philadelphia, Pennsylvania, 30 Jul–5 Aug 2008. www.slac.stanford.edu/econf/co80730
- 4. Артемьев В.А., Брахман Э.В., Васильев С.И. и др. // Ядерная физика. 1996. Т. 59. № 1. С. 10.
- 5. Arnold R., Barabash A., Blum D. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 1995. V. A354. P. 338.
- 6. Argyriades J., Arnold R., Augier C. et al. // arXiv:hep-ex./ 0810.0248.
- 7. *Hwang M.J., Kwon Y.J., Kim H.J. et al.* // Nucl. Instrum. and Methods. 2007. V. A 570. P. 454.
- 8. Gehman V.M., Doe P.J., Robertson R.G.H. et al. // arXiv: 0911.2198.
- 9. Miramonti L. // arXiv:hep-ex/0206063 v1.
- Данилов Н.А., Крылов Ю.С., Корпусов Г.В. и др. // Радиохимия. 2003. Т. 45. № 2. С. 128; Buck C., Barabanov I., Besida O. et al. // Nuclear Physics B (Proc. Suppl.). 2005. V. 143. Р. 487; Данилов Н.А., Крылов Ю.С., Цивадзе А.Ю. и др. // Радиохимия. 2008. Т. 50. № 3. С. 236; Данилов Н.А., Крылов Ю.С., Цивадзе А.Ю. и др. // Радиохимия. 2009. Т. 51. № 3. С. 239.
- 11. Elisei F., Gatti F., Goretti A. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 1997. V. A400. P. 53.
- 12. Alimonti A., Arpesella C., Balata M. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 2000. V. A440. P. 360.
- 13. Arpesella C., Back H., Balata M. et al. // Astroparticle Physics. 2002. V. 18. P. 1.
- Alimonti G., Anghloher G., Arpesella C. et al. // Astroparticle Physics. 1998. V. 8. P. 141.
- 15. Alimonti G., Arpesella C., Back H. et al. // Nucl. Instrum. and Methods. 2009. V. A600. P. 568.
- 16. Бабичев А.П., Григорьев И.С., Григорьев А.И. и др. // Квантовая электроника. 2005. Т. 35. № 10. С. 879.
- 17. Данилов Н.А., Крылов Ю.С., Жилов В.И. и др. // Радиохимия. 2011. Т. 53. № 3. С. 229.
- Klapdor-Kleingrothaus H.V., Krivisheina L.V. // Mod. Phys. Lett. 2006. V. A21. P. 1547.