

## РАЗРАБОТКА И ИССЛЕДОВАНИЯ ТЕЛЛУРСОДЕРЖАЩЕГО ЖИДКОГО СЦИНТИЛЛЯТОРА

*И. А. Суслов<sup>а,б,1</sup>, И. Б. Немченко<sup>а,б</sup>, А. Д. Быстрыakov<sup>а,б</sup>*

<sup>а</sup> Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

<sup>б</sup> Государственный университет «Дубна», Дубна, Россия

Представлены результаты разработки и исследования нового теллурсодержащего жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола для крупномасштабных детекторов по поиску и исследованию двойного безнейтринного бета-распада. В качестве теллурсодержащей добавки впервые предложено использовать комплексное соединение оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты. Исследованы зависимости световыхода и прозрачности от концентрации теллура, влияние вторичного сцинтилляционного растворителя на световыход, изучена стабильность свойств теллурсодержащих жидких сцинтилляторов.

Herein the R&D results of new tellurium-loaded liquid scintillator based on linear alkylbenzene for large-scale detectors for the search and study of neutrinoless double beta-decay are presented. For the first time, it was proposed to use a complex compound of diphenyltellurium oxide and di-(2-ethylhexyl)phosphoric acid as a tellurium-containing additive. The dependences of the light yield and transparency on the tellurium concentration, the effect of a secondary scintillation solvent on the light yield, and the stability of the properties of tellurium-containing liquid scintillators have been studied.

PACS: 14.60.Pq; 14.60.St; 23.40.–s; 29.40.Mc

### ВВЕДЕНИЕ

Природа массы нейтрино, дираковская или майорановская, является одним из ключевых вопросов современной физики, так как нейтрино, в отличие от других фермионов, может быть собственной античастицей [1]. Практическим способом ее исследования является поиск безнейтринного двойного бета-распада ( $0\nu\beta\beta$ ). Наиболее перспективными для наблюдения этого редкого процесса являются изотопы  $^{48}\text{Ca}$ ,  $^{76}\text{Ge}$ ,  $^{82}\text{Se}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ ,  $^{100}\text{Mo}$ ,  $^{116}\text{Cd}$ ,  $^{130}\text{Te}$ ,  $^{136}\text{Xe}$ ,  $^{150}\text{Nd}$  [2], среди которых особое внимание привлекает  $^{130}\text{Te}$ , что связано с высоким содержанием его в естественной смеси изотопов (34%) и наибольшим периодом  $2\nu\beta\beta$  полураспада  $8,2 \cdot 10^{20}$  лет среди всех изотопов — кандидатов на обнаружение этого процесса [3].

---

<sup>1</sup>E-mail: ivsuslov@jinr.ru

Чувствительными инструментами для поиска  $0\nu\beta\beta$  являются детекторы на основе жидких сцинтилляторов (ЖС). К достоинствам ЖС относят низкий радиационный фон, возможность создания на их основе установок любой формы и объема, а также возможность направленной модификации их состава и обеспечения таким образом высокого содержания ядер двойного  $\beta$ -распадчика.

В связи с этим разработка теллурсодержащих жидких сцинтилляторов (Те-ЖС) привлекает к себе внимание для поиска и исследования  $0\nu\beta\beta$ .

Наибольших успехов в этом направлении достигла коллаборация SNO+. В работах [4, 5] описан Те-ЖС на основе линейного алкилбензола (ЛАБ) с содержанием теллура 0,5–10%<sub>масс</sub>. В качестве теллурсодержащей добавки используется продукт взаимодействия теллуровой кислоты с 1,2-бутандиолом, который представляет собой жидкую смесь мономерных и димерных соединений.

Для увеличения световыхода сцинтиллятора и повышения устойчивости теллурсодержащей добавки к гидролизу используется N,N-диметилдодециламин. Наилучший световыход получен для образца с содержанием теллура 1%<sub>масс</sub>. Он составляет ~ 0,65 относительно ЖС того же состава, не содержащего теллур.

Практически аналогичный подход предложен авторами [6]. Они разработали Те-ЖС на основе ЛАБ с содержанием теллура 0,4–0,6%<sub>масс</sub>. В качестве теллурсодержащих добавок используются продукты взаимодействия теллуровой кислоты с различными диолами (например, бутандиолом-1,2, пентандиолом-1,2, гександиолом-1,2, бутандиолом-2,3, циклогександиолом-2,3 и др.) и третичными аминами жирного ряда. Лучшими сцинтилляционными и оптическими характеристиками обладает образец, содержащий 0,5%<sub>масс</sub> теллура в форме продукта взаимодействия теллуровой кислоты, 1,2-бутандиола и N,N-диметилдодециламина (мольное соотношение: 1 : 3 : 0,4 соответственно). Световыход этого сцинтиллятора составляет 67% относительно ЖС того же состава, не содержащего теллур.

К недостаткам описанных сцинтилляторов относится необходимость использования аминов, что приводит к удорожанию и уменьшению доступности материала, невысокий световыход [4] и невысокая концентрация теллура [6].

Таблица 1. Световыход и пропускание образцов теллурсодержащего жидкого сцинтиллятора [7]

Те	Состав сцинтиллятора, % <sub>масс</sub>			Световыход, отн. ед.	$T_{\lambda=430 \text{ нм}} \pm 1, \%$
	РРО	РОРОР	Производное нафталина		
0,5	1	0,04	—	$0,55 \pm 0,04$	88,5
0,5	1	0,04	Диизопропилнафталин — 30	$0,72 \pm 0,04$	88,5
<sup>1</sup>	2	0,04	—	$0,42 \pm 0,02$	86,2
<sup>1</sup>	2	0,04	Диизопропилнафталин — 30	$0,57 \pm 0,03$	86,6
<sup>1</sup>	2	0,04	2,6-диизопропилнафталин — 30	$0,57 \pm 0,03$	81,0
<sup>1</sup>	2	0,04	1-метилнафталин — 30	$0,57 \pm 0,03$	77,7
<sup>2</sup>	2	0,04	2,6-диизопропилнафталин — 30	$0,54 \pm 0,03$	83,0
<sup>3</sup>	2	0,04	2,6-диизопропилнафталин — 30	$0,58 \pm 0,03$	85,0

<sup>1</sup> В форме ди-2-этилгексаноата дифенилтеллура.  
<sup>2</sup> В форме диизовалерата дифенилтеллура.  
<sup>3</sup> В форме дипивалоата дифенилтеллура.

В нашей работе [7] описан жидкий теллурсодержащий сцинтиллятор на основе линейного алкилбензола и его смесей с производными нафталина: диизопропилнафталином (смесь изомеров, ДИПН) или 2,6-диизопропилнафталином или 1-метилнафталином. Теллурсодержащие добавки — дикарбоксилаты дифенилтеллура: ди-2-этилгексаноат, диизовалерат и дипивалоат, полученные путем многостадийного синтеза из элементарного теллура. В табл. 1 представлены данные по световыходу (относительно сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола, не содержащего теллур) и пропусканию образцов сцинтиллятора.

Применение сцинтиллятора [7] для крупномасштабных детекторов может быть осложнено многостадийностью получения теллурсодержащих добавок.

Целью настоящей работы является разработка теллурсодержащего жидкого сцинтиллятора с высокой концентрацией теллура, пригодного для использования в крупномасштабных экспериментах по поиску двойного безнейтринного бета-распада, а значит, имеющего высокий световыход, доступного и безопасного в использовании.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Теллурсодержащую добавку получали путем взаимодействия оксида дифенилтеллура с ди-2-этилгексилфосфорной кислотой в соотношении 1 : 1 в гексане с последующей перекристаллизацией из этого же растворителя. Чистота полученного соединения подтверждена элементным анализом.

Первичная сцинтилляционная добавка и сместитель спектра — 2,5-дифенилоксазол (РРО, 99,9%) и 1,4-бис(5-фенилоксазол-2-ил)бензол (РОРОР, 99,9%) соответственно. В качестве компонентов основы сцинтиллятора использованы линейный алкилбензол (ООО «КИНЕФ»), очищенный перемешиванием с древесным углем (ОУ-А) при соотношении 30 : 100 и последующей фильтрацией, и диизопропилнафталин (extra pure, mixed isomers, Acros Organics), очищенный на абсорбционной колонке, заполненной свежeproкаленной окисью алюминия. Теллурсодержащий жидкий сцинтиллятор готовили растворением сцинтилляционных и теллурсодержащей добавок в линейном алкилбензоле или его смеси с диизопропилнафталином.

Спектры пропускания в видимой области образцов ЖС измерены при помощи спектрофотометра UNICO UV 2804 в 10-см кювете относительно воздуха при длине волны от 390 до 600 нм.

Световыход Те-ЖС измеряли относительно сцинтиллятора на основе ЛАБ, содержащего 0,5%<sub>масс</sub> РРО и 0,0025%<sub>масс</sub> РОРОР. Исследуемый образец помещали в тефлоновую кювету высотой 50 мм и диаметром 50 мм с выходным окном из увиолевого стекла, прозрачного в ближней УФ и видимой областях спектра. Объем исследуемого образца 40 мл. Кювету соединяли с фотоэлектронным умножителем R6091 (НАМАМАТСУ) при помощи оптической смазки (BC-630 optical grease, Saint-Gobain crystals). В качестве радиоактивного источника использовали <sup>207</sup>Bi (2,5 кБк). Применяли методику разностных измерений. Первое измерение осуществлялось прямым облучением измеряемого образца жидкого сцинтиллятора в кювете (получали  $\gamma + \beta$ -спектр). Во втором измерении между источником и исследуемым образцом помещали тефлоновую пластину толщиной 3 мм (получали  $\gamma$ -спектр). Геометрия и время обоих измерений были одинаковыми. Для определения световыхода анализировали  $\beta$ -спектр, полученный вычитанием  $\gamma$ -спектра из  $\gamma + \beta$ -спектра.

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В качестве основы сцинтиллятора использован линейный алкилбензол и его смеси с диизопропилнафталином (смесь изомеров). Как ЛАБ [8–10], так и ДИПН [11, 12] хорошо зарекомендовали себя для получения ЖС, обеспечивая их высокий световыход, доступность и безопасность в работе [13]. В качестве сцинтилляционной добавки и вторичной сцинтилляционной добавки использованы РРО и РОРОР соответственно.

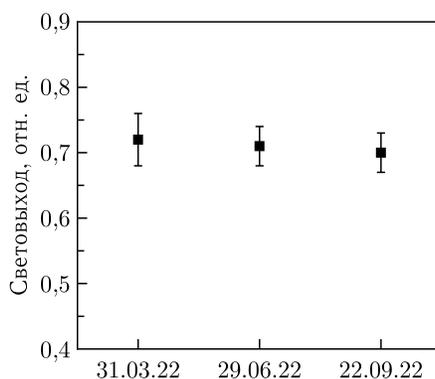
Таблица 2. Световыход и пропускание образцов жидкого теллурсодержащего сцинтиллятора с оптимальным содержанием сцинтилляционных добавок

Состав сцинтиллятора, % <sub>масс</sub>				Световыход, отн.ед.	$T_{\lambda=430 \text{ нм}} \pm 1$ , %
Те	РРО	РОРОР	ДИПН		
0	0,5	0,0025	—	$1,00 \pm 0,05$	90,9
0,25	0,5	0,0025	—	$0,87 \pm 0,04$	87,9
0,50	0,5	0,0025	—	$0,73 \pm 0,04$	87,1
0,75	0,5	0,0025	—	$0,62 \pm 0,03$	87,0
1,00	0,5	0,0025	—	$0,56 \pm 0,03$	85,1
1,25	0,5	0,0025	—	$0,45 \pm 0,03$	83,8
1	0,5	0,0025	10	$0,60 \pm 0,03$	82,9
1	0,5	0,0025	20	$0,67 \pm 0,03$	82,6
1	0,5	0,0025	30	$0,71 \pm 0,04$	80,8
1	0,5	0,0025	40	$0,74 \pm 0,04$	79,9
1	0,5	0,0025	50	$0,78 \pm 0,04$	79,0
1	0,5	0,0025	60	$0,88 \pm 0,04$	77,1

Теллурсодержащая добавка — комплексное соединение оксида дифенилтеллура с ди-(2-этилгексил)фосфорной кислотой состава 1 : 1. Это вещество просто в получении, имеет высокую растворимость в линейном алкилбензоле и его смесях с диизопропилнафталином, не поглощает в видимой области спектра, обладает устойчивостью к действию кислорода воздуха и атмосферной влаги, не подвержено гидролизу и, как показано ниже, обеспечивает высокий световыход Те-ЖС.

В табл. 2 представлена зависимость световыхода и пропускания (на длине волны 430 нм) Те-ЖС от содержания теллура. Оказалось, что предлагаемая теллурсодержащая добавка приводит к значительно меньшему снижению световыхода по сравнению с дикарбоксилатами дифенилтеллура [7].

Использование ДИПН в качестве вторичного растворителя (см. табл. 2) приводит к существенному увеличению световыхода. Так, для образца с содержанием ДИПН



Стабильность световыхода образца Те-ЖС (Те — 1%<sub>масс</sub>, РРО — 0,5%<sub>масс</sub>, РОРОР — 0,0025%<sub>масс</sub>, ДИПН — 30%<sub>масс</sub>) в течение 6 мес

60%<sub>масс</sub> при концентрации теллура 1%<sub>масс</sub> световойход составил  $0,88 \pm 0,04$  относительно образца сравнения.

Разработанные Те-ЖС демонстрируют высокую стабильность при длительном хранении в темноте. Их световойход остается постоянным в течение как минимум полугода (рисунок).

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе новой теллурсодержащей добавки, комплекса оксида дифенилтеллура и ди-(2-этилгексил)фосфорной кислоты, разработан новый устойчивый во времени и безопасный в работе теллурсодержащий жидкий сцинтиллятор. Исследовано влияние концентрации теллура на его световойход и прозрачность. Для увеличения световыхода использован вторичный сцинтилляционный растворитель — диизопропилнафталин.

Световойход разработанного Те-ЖС с массовой долей металла 1%<sub>масс</sub> составляет  $0,56 \pm 0,03$ – $0,88 \pm 0,04$  в зависимости от содержания диизопропилнафталина (относительно жидкого сцинтиллятора, не содержащего теллур, на основе линейного алкилбензола). Свойства сцинтиллятора стабильны по крайней мере в течение 6 мес.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bilenky S. M., Petcov S. T.* Massive Neutrinos and Neutrino Oscillations // *Rev. Mod. Phys.* 1987. V. 59. P. 671–754.
2. *Dell’Oro S., Marcocci S., Viel M., Vissani F.* Neutrinoless Double Beta Decay: 2015 Review // *Adv. High Energy Phys.* 2016. V. 2016. ID 2162659.
3. *Biller S. D.* Probing Majorana Neutrinos in the Regime of the Normal Mass Hierarchy // *Phys. Rev. D.* 2013. V. 87. P. 071301.
4. *Kroupova T.* Water Phase Results and  $0\nu\beta\beta$  Prospects of the SNO+ Experiment // *Proc. of Eur. Phys. Soc. Conf. on High Energy Phys. (EPS-HEP2019).* PoS. 2020. V. 364. P. 1.
5. *Biller S., Manecki S.* A New Technique to Load  $^{130}\text{Te}$  in Liquid Scintillator for Neutrinoless Double Beta Decay Experiments // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2017. V. 888. P. 12084.
6. Patent CN No. 112608263 (B), G01T 1/20. 27.05.2022. Tellurium Organic Complex, Preparation Method Thereof and Tellurium-Doped Liquid Scintillator Containing Tellurium Organic Complex / Yayun D. et al.
7. *Suslov I. A., Nemchenok I. B., Shitov Yu. A., Kazartsev S. V., Belov V. V., Bystryakov A. D.* Development of a New Tellurium Loaded Liquid Scintillator Based on Linear Alkylbenzene // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2022. V. 1040. P. 167131.
8. *Albanese V. et al.* The SNO Experiment // *J. Instrum.* 2021. V. 16. P. P08059.
9. *Beriguete W. et al.* Production of a Gadolinium-Loaded Liquid Scintillator for the Daya Bay Reactor Neutrino Experiment // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2014. V. 763. P. 82–88.
10. *Buck C. et al.* Production and Properties of the Liquid Scintillators Used in the STEREO Reactor Neutrino Experiment // *J. Instrum.* 2019. V. 14. P. P01027.
11. Ultima Gold Datasheet. [https://resources.perkinelmer.com/lab-solutions/resources/docs/BRO\\_ScintillationCocktailsAndConsumables.pdf](https://resources.perkinelmer.com/lab-solutions/resources/docs/BRO_ScintillationCocktailsAndConsumables.pdf).
12. EJ-309 Datasheet. [https://eljentechnology.com/images/products/data\\_sheets/EJ-301\\_EJ-309.pdf](https://eljentechnology.com/images/products/data_sheets/EJ-301_EJ-309.pdf).
13. *Anderson M. R. et al.* Development, Characterisation, and Deployment of the SNO+ Liquid Scintillator // *J. Instrum.* 2021. V. 16. P. P05009.

Получено 14 ноября 2022 г.