

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



И.Р. Барабанов, В.П. Моргалюк,
Г.Я. Новикова, Е.А. Янович

Исследование эффективности
методов очистки
жидкого сцинтиллятора от U, Th, K

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН
1418/2016
ФЕВРАЛЬ 2016

препринт
preprint

МОСКВА 2016 MOSCOW

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



И.Р. Барабанов, В.П. Моргалюк,
Г.Я. Новикова, Е.А. Янович

**Исследование эффективности
методов очистки
жидкого сцинтиллятора от U, Th, K**

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН
1418/2016
ФЕВРАЛЬ 2016

препринт
preprint

МОСКВА 2016 MOSCOW

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



И.Р. Барабанов, В.П. Моргалюк,
Г.Я. Новикова, Е.А. Янович

Исследование эффективности
методов очистки
жидкого сцинтиллятора от U, Th, K

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН

1418/2016

ФЕВРАЛЬ 2016

МОСКВА

2016

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences
60-th October Anniversary prospect 7a,
Moscow 117312, Russia

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук
проспект 60-летия Октября, 7а
Москва, 117312

И.Р. Барабанов, В.П. Моргалюк, Г.Я. Новикова,
Е.А. Янович

Исследование эффективности методов
очистки жидкого сцинтиллятора от U, Th, K

Исследовалась эффективность очистки от внутренней радиоактивности (U, Th,) базового растворителя ЛАБа методами 1) водной экстракции с использованием АМДФК (аминометилендифосфоновой кислоты), 2) сорбции U, Th на Al_2O_3 и силикагеле.

Проверялась возможность очистки сцинтиллятора (*p*-терфенил и bis-MSB) на Al_2O_3 . Был разработан метод очистки сцинтилляционных добавок (PPO, ВРО, *p*-терфенила) от калия методом двойной водной экстракции их насыщенных бензольных растворов.

ISBN 978-5-94274-306-2

© Федеральное государственное
бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук, 2016
Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences, 2016

И.Р. Барабанов, В.П. Моргалюк, Г.Я. Новикова,
Е.А. Янович

Исследование эффективности методов очистки
жидкого сцинтиллятора от U, Th, K

Препринт 1418/2016

Февраль 2016

Подписано в печать 18.01.2016

Ф-т 60x84/8. Уч.-изд.л. 6,0. Зак. 22377 Тираж 40 экз.

Бесплатно

Печать цифровая
Издательский отдел

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук

117312, Москва, проспект 60-летия Октября, 7а

Введение

Жидкие органические сцинтилляторы находят всё более широкое применение в области нейтринной физики и астрофизики. Они используются как для исследования свойств нейтрино [1], так и для регистрации потоков нейтрино от Солнца [2,3], вспышек Сверхновых звёзд [4], а также для измерения потоков антинейтрино земного происхождения, так называемых гео-нейтрино [5].

Гео-нейтрино — это нейтрино, которые образуются при бета-распаде радиоактивных элементов U, Th, K, содержащихся в толще Земли. В этом случае метод регистрации аналогичен существующим методам регистрации потоков антинейтрино от ядерных реакторов, где с успехом используются жидкие органические сцинтилляторы. Детектирование антинейтрино от U, Th основано на реакции обратного бета-распада с водородом, входящим в состав органического сцинтиллятора ($\nu + p = e^+ + n$) и на последующем захвате термализованного нейтрона протоном $p(n, \gamma)d$. Аннигиляция позитрона и задержанный по времени в среднем на 220 мкс вылет гамма кванта 2.2 МэВ от захвата нейтрона позволяют измерить энергию антинейтрино и надёжно идентифицировать событие. Для увеличения эффективности регистрации антинейтрино, в условиях, когда фоновые условия недостаточно хорошие, в органический сцинтиллятор часто вводят элементы, имеющие высокое сечение захвата нейтрона, например, гадолиний, который с успехом используется в экспериментах RENO [6], DayaBay [7], Double Chooze [8], Neos [9], iDREAM [10].

Ожидаемый поток гео-нейтрино на 4–5 порядков ниже потока антинейтрино от ядерных реакторов. Это значит, что число событий от гео-нейтрино в единице объема сцинтиллятора будет настолько же порядков ниже. Следовательно, для того чтобы, получить достаточное число событий в жидком сцинтилляторе, надо в десятки тысяч раз увеличивать объемы детекторов, и если для регистрации антинейтрино от реакторов достаточно иметь жидкие сцинтилляторы объемом 1 т [9,10], то для регистрации гео-нейтрино необходимо иметь детекторы объемом 10000 т и более.

Увеличение объема детекторов влечет за собой требование к увеличению прозрачности органических сцинтилляторов (фотоны от сцинтилляционной вспышки могут не дойти до ФЭУ).

Уменьшение числа нейтринных событий накладывает более жесткие требования к уровню фона в сцинтилляторе. Регистрация редких антинейтринных событий от распадов U, Th и, особенно K, в толще Земли, требует, чтобы фон сцинтилляционного детектора был очень низким.

Кроме того, при измерении спектра редких событий в области низких энергий (<200 кэВ) существенную роль начинает играть примесь радиоуглерода (изотоп ^{14}C), входящий в молекулярную структуру углеводородов жидкого сцинтиллятора, и очистка от которого химическим путем невозможна. Поэтому становится актуальным поиск растворителей для жидких органических сцинтилляторов, в которых содержание радиоуглерода было бы минимально. С этой целью в технологии приготовления органических сцинтилляторов используют растворители, которые были получены из сырья длительное время находившегося на больших глубинах. В этих условиях содержание ^{14}C понижено за счёт его бета-распада ($T_{1/2}=5730$ лет). Исследованию содержания ^{14}C в органических сцинтилляторах посвящены работы [11,12]

Целью данной работы является исследование методов очистки органического сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола (ЛАБа) от таких радиоактивных элементов, как U, Th и ^{40}K . Требования по чистоте для жидких сцинтилляторов относительно U, Th и ^{40}K приведены в таблице 1 (взято из работы [13]).

В предыдущей нашей работе [14] была исследована возможность удаления U, Th и K из органического сцинтиллятора путем промывки деионизированной водой. Было показано, что такая очистка эффективна только при соотношении объемов органической и водной фазы не менее 1:5.

Таблица 1
Требования к содержанию U, Th, K
в сцинтилляторе

Изотоп	Для антинейтрино (г/г)	Для солнечных нейтрино (г/г)
^{232}Th	$<10^{-15}$	$<10^{-17}$
^{238}U	$<10^{-15}$	$<10^{-17}$
^{40}K	$<10^{-16}$	$<10^{-18}$

В данной работе исследовались другие методы удаления внутренней радиоактивности из органического растворителя (линейного алкилбензола – ЛАБ), такие как:

1) реакстракция урана и тория с помощью водных растворов комплексообразователей (аминометилендифосфоновая кислота), что позволило значительно уменьшить объем водной фазы;

2) сорбция U и Th на оксиде алюминия и силикагеле;

3) исследовалась также возможность очистки готового сцинтиллятора (с введенными сцинтилляционными добавками) на оксиде алюминия и силикагеле;

4) также была исследована возможность очистки сцинтилляционных добавок (fluors): (PPO (2,5-дифенил-оксазол), BPO (2-дифенил,5-фенил-оксазол) и p-терфенила (1,4-дифенилбензол)) от калия-40.

Экспериментальная часть

Поскольку требуемый уровень радиоактивности для современных жидких сцинтилляторов (табл.1) крайне мал для того, чтобы анализировать его лабораторными методами, было принято решение сначала вводить в органический растворитель исследуемый радионуклид, а затем исследовать эффективность методов его удаления.

Уран и торий вводили в ЛАБ при помощи разработанного ранее [14] метода жидкостной экстракции с помощью триоктилфосфиноксида (ТОРО) из водных растворов нитратов уранила и тория, соответственно.

Для максимально полной экстракции нитратов уранила и тория использовался высаливатель LiCl, взятый в количестве, необходимом для достижения его концентрации в экстракте 6 моль/л.

Соотношение водной и органических фаз составляло: $V_{\text{орг}}/V_{\text{вод}} = 1:1$.

Для введения урана использовался 0,014 М водный раствор $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ и раствор ТОРО в ЛАБе с концентрацией 0,02 моль/л.

Для введения тория использовался 0,039 М водный раствор $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ и раствор ТОРО в ЛАБе с концентрацией 0,059 моль/л.

Эффективность экстракции урана и тория (в %) в ЛАБ определялась с помощью сцинтилляционного метода. Для этого отобранную органическую пробу экстракта (5 мл) помещали в пузырек со шлифованным дном, добавляли туда PPO (из расчета 2г/л) и bis-MSB (из расчета 0,02г/л) и ставили на ФЭУ (для улучшения оптического контакта между пузырьком и ФЭУ использовалась силиконовая смазка).

1. Реэкстракция урана и тория 0,02М водным раствором аминометилендифосфоновой кислоты (АМДФК)

Как было показано ранее [14], реэкстракция урана и тория из ЛАБа деионизированной водой эффективна только при соотношении $V_{\text{ЛАБ}} / V_{\text{H}_2\text{O}}=1:5$. Для уменьшения объема используемой воды и концентрирования урана и тория, в водную фазу было решено ввести эффективный комплексон, образующий с ураном(VI) и торием(IV) устойчивые комплексы, и не ухудшающий при этом прозрачность ЛАБа. Подходящим для этой цели комплексом оказалась аминометилендифосфоновая кислота $\text{NH}_2\text{CH}[\text{P}(\text{O})(\text{OH})_2]_2$ (АМДФК, $M=191\text{г/моль}$). Для реэкстракции урана и тория из раствора из ЛАБа использовали водный 0,02 М раствор АМДФК при отношении фаз $V_{\text{ЛАБ}} / V_{\text{H}_2\text{O}}=10:1$.

Для реэкстракции урана использовали 100 мл раствора комплекса нитрата уранила с ТОРО в ЛАБе ($C_{\text{UO}_2}=6,8 \cdot 10^{-4}$ моль/л) и 10 мл водного раствора АМДФК ($C_{\text{АМДФК}}=0,02$ моль/л). Реэкстракция проводилась в делительной воронке в течение 6 мин. При этом наблюдалось выпадение белого осадка и пожелтение водной фазы.

В случае тория для реэкстракции использовалось 100 мл раствора комплекса $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ с ТОРО с начальной концентрацией $1,8 \cdot 10^{-3}$ моль/л и также 10 мл 0,02М водного раствора АМДФК. Условия реэкстракции были те же, что и в случае с ураном, при этом наблюдалось выпадение белого осадка, но не было пожелтения водной фазы.

Эффективность реэкстракции определялась путем измерения радиоактивности пробы органической фазы до и после экстракции. Результаты представлены в таблице 2.

Из данных, представленных в таблице 2, следует, что АМДФК (0,02М) эффективно удаляет уран и торий из ЛАБа при соотношении объемов $V_{\text{ЛАБ}} / V_{\text{H}_2\text{O}}=10:1$, и с её помощью возможно концентрирование этих примесей в водную фазу, по меньшей мере, на поряд-

док.

Таблица 2
Реэкстракция U и Th с АМДФК

	UO ₂ р/с, (%)	Th р/с (%)
Нач. активность	17,0 (100)	44,6 (100%)
После реэкстракции	1,4 (8,2%)	0,5 (1,1%)

1.1. Проверка влияния АМДФК на прозрачность ЛАБа

При использовании АМДФК для реэкстракции урана и тория из ЛАБа необходимо также проверить влияние АМДФК на прозрачность ЛАБа. Для этого брали 100 мл очищенного на оксиде алюминия ЛАБа (1:6) и 10 мл 0,02 М раствора АМДФК в деионизированной воде. Проводили экстракцию в делительной воронке в течении 6 мин, разделяли фазы.

Прозрачность (длину ослабления света в е-раз) органической фазы определяли на спектрофотометре Perkin Elmer Lambda 35 по ранее разработанной методике [15]. Измерения проводились в 10 см кювете по отношению к пустой кювете и длина ослабления света в е раз (L) считалась по формуле:

$$L_{420} = 10/2,3(A_{420} - A_{\min}) \quad (1)$$

где

A_{420} — значение поглощения света при 420 нм,

A_{\min} — минимальное поглощение света в области 500-600нм.

Результаты измерения прозрачности представлены в таблице 3.

Из данных, представленных в таблице 3, следует, что длина ослабления света в ЛАБе при длине волны 420 нм после экстракции 0,02 М раствором АМДФК практически не изменяется.

Следовательно, АМДФК может быть использован для удаления урана и тория из сцинтиллятора на основе ЛАБа при соотношении объемов $V_{\text{ЛАБ}} / V_{\text{H}_2\text{O}} = 10:1$.

Таблица 3
Прозрачность ЛАБа с АМДФК

N	Образец	L_{420} М
1534	ЛАБ до экстракции	19,8
1531	После экстракции с АМДФК	18,9

2. Сорбция U и Th на Al_2O_3 и силикагеле

Ранее в ряде работ [15-18], показано, что органические растворители, применяемые для создания жидких сцинтилляторов, улучшают свою прозрачность (длину ослабления света в е раз) после пропускания их через оксид алюминия (Al_2O_3) или силикагель. Однако, сорбция радиоактивных элементов во время очистки растворителей и сцинтилляторов до нашего времени изучена недостаточно. Только в работе [19] была исследована очистка фенилксилэтанана (РХЕ) на силикагеле. Анализ

радиоактивности производился с помощью нейтроноактивационного метода (НА) [20]. Для ЛАБа подобных работ не найдено.

В данной работе для исследования сорбции урана и тория на Al_2O_3 и силикагеле мы использовали растворы ЛАБа с заранее введенными туда комплексами урана (VI) и тория (IV) с ТОРО. При этом начальная радиоактивность раствора урана составляла 18,1р/с, раствора тория— 45,3 р/с.

Были использованы сорбционные колонки диаметром 1 см и высотой столба сорбента 4 см, т.е. объём сорбента составлял $3,14 \text{ см}^3$. ЛАБ, с введенной в него радиоактивностью, пропускаться через сорбент и на выходе собирался порциями по 36 см^3 , т.е. соотношение объема сорбента к объему одной порции составляло 1:11. Измерялась радиоактивность в каждой последовательно пропущенной порции (для измерения брались пробы по 5 мл). Результаты измерения представлены в таблице 4.

В качестве сорбентов использовался Al_2O_3 производства Донецкого завода (ТУ 6-09-3916-75), который, как было показано ранее [17], по своим свойствам соответствует нейтральному Al_2O_3 фирмы Aldrich (Aluminum oxide, activated neutral, Brockman I, standard grade –150 mesh, 58 \AA) и мелкодисперсный силикагель Silicawoelm DC немецкого производства.

Таблица 4. Сорбция U, Th, на Al_2O_3 и силикагеле

		U р/с, (%)	Сорбция U %	Th р/с (%)	Сорбция Th %
Al_2O_3	Нач. активность	18,1, (100)		45,3 (100%)	
	1 порция	0,56 фон	100	1,33 (2,7%)	97,3
	2 порция	0,54 фон	100	3,46 (7,6%)	96,5
	3 порция	0,59 фон	100	26,7 (59,3%)	40,7
SiO_2	1 порция	0,57 фон	100	0,74 фон	100
	2 порция	0,56 фон	100		

Из данных, представленных в таблице, следует, что уран хорошо сорбируется на оксиде алюминия и не выходит с колонки вплоть до соотношения объемов 1: 33.

Показано, что торий хорошо сорбируется как на оксиде алюминия, так и на силикагеле, но при меньших отношениях фаз — не более, чем 1:11.

С целью концентрирования урана и тория была также исследована эффективность смыва урана и тория с сорбента более полярным, чем ЛАБ, растворителем – этанолом. Смыв выполняли порциями по 10 мл. После этого к взятому объему спирта добавляли 10 мл 12 М раствора LiCl и 20 мл 0,2 М раствора ТОРО в ЛАБе и производили экстракцию радиоактивных элементов в ЛАБ. Затем отбирали 5 мл органической фазы на определение активности. Оказалось, что уран (VI) не десорбируется 10 мл спирта ни с Al_2O_3 , ни с силикагеля. Однако указанный объем спирта полностью десорбирует торий с Al_2O_3 .

3. Очистка готового сцинтиллятора на Al_2O_3 (Исследование сорбции РРО и *p*-терфенила на Al_2O_3)

В случае использования жидких органических сцинтилляторов для длительных экспериментов важно очищать их в процессе эксплуатации, как это было показано в экспериментах СТФ Борексина [19,21], где в качестве растворителей использовались фенилксилилэтан [19] и псевдокумол [21].

В нашем случае, поскольку мы показали, что ЛАБ хорошо очищается на Al_2O_3 , как от органических примесей [15], так и от урана и тория при соотношении объемов не более 1:10 (для тория), было также исследована возможность очистки готового сцинтиллятора с введенными в ЛАБ сцинтилляционными добавками. В качестве добавок использовались РРО (221г/моль), *p*-терфенил (231г/моль) и bis-MSB.

Для эксперимента были приготовлены по 1 л растворов ЛАБа с одинаковой концентрацией 0,0065 моль/л РРО (1,43 г/л) и *p*-терфенила (1,5 г/л), 1 л раствора bis-MSB с концентрацией 30 мг/л и три сорбционные колонки, заполненные Al_2O_3 диаметром 3,5 см, и высотой столба сорбента 10 см ($V \sim 100 \text{ см}^3$).

Образцы сцинтиллятора, прошедшего через колонки, собирались порциями. Для каждой порции измерялся световыход (LY) в процентах от первоначального, принятого за 100%. По значению световыхода оценивалась десорбция сцинтилляционной добавки с сорбента. Также измерялись спектры поглощения (в 10 см кювете по отношению к пустой такой же) на спектрофотометре, и рассчитывалась длина ослабления света при длине волны 420 нм (L_{420}) по формуле 1. Результаты измерений

Таблица 5
Сорбция РРО и р-Тр на Al_2O_3

Образец	V мл	L_{420} м	LY%
ЛАБ с РРО (0,0065 моль/л) – исх.	1л	11,82	100
1 порция	96 мл	36,22	0
2 порция	100	23,14	0
3 порция	180	27,17	0
4 порция	104		0
5 порция	106	17,39	0
6-7-8 порция	272	16,72	0
ЛАБ очищ.(1:6)		16,10	
ЛАБ с р-Тр (0,0065 моль/л) – исх.	1л	8,00	100
1 порция	95	33,44	61
2 порция	100	20,70	80
3-4-5 порция	300	18,90	89
6 порция	105	19,76	94
7 порция	107	16,72	93
8 порция	160	15,00	97

представлены в таблице 5, где для сравнения приводится также длина ослабления света чистого ЛАБа, очищенного ранее при соотношении объемов $V_{Al_2O_3}/V_{ЛАБ} = 1:6$

Из данных, представленных в таблице 5, следует, что РРО не выходит с колонки вплоть до 8-ой порции, в то время как р-терфенил начинает выходить уже с первой порции и практически полностью выходит уже при соотношении объемов 1:6. Сорбцию РРО на оксиде алюминия можно легко объяснить тем, что молекулы РРО содержат в своем составе атомы кислорода и азота, которые благодаря не по-

деленным парам электронов могут образовывать устойчивую связь с положительно заряженными активными центрами используемого сорбента.

В отличие от РРО молекулы р-терфенила являются нейтральными и слабо сорбируются на оксиде алюминия. При этом прозрачность (длина ослабления света) ЛАБа при выходе р-терфенила в количестве 93%-97% практически такая же, как прозрачность очищенного ЛАБа (без добавления сцинтилляционных добавок) при соотношении объемов (1:6).

На рис.1 показаны спектры поглощения (в области 320-440 нм): 1) ЛАБа с рТр (2г/л) до очистки 2) после очистки при соотношении объемов 1:8, когда вышел практически весь р-Тр 3) чистого ЛАБа, очищенного при соотношении объемов сорбента и растворителя 1:6. На рис.2 представлены те же спектры в области 420-440нм.

Из рисунков 1,2 видно, что присутствие р-терфенила практически не влияет на прозрачность сцинтиллятора в области 420-500 нм. Но, очевидно, до очистки на оксиде алюминия р-терфенил содержит какие-то органические примеси (так как прозрачность неочищенного ЛАБа падает при добавлении р-терфенила), от которых очищается вместе с ЛАБом в процессе прохождения через колонку с оксидом алюминия.

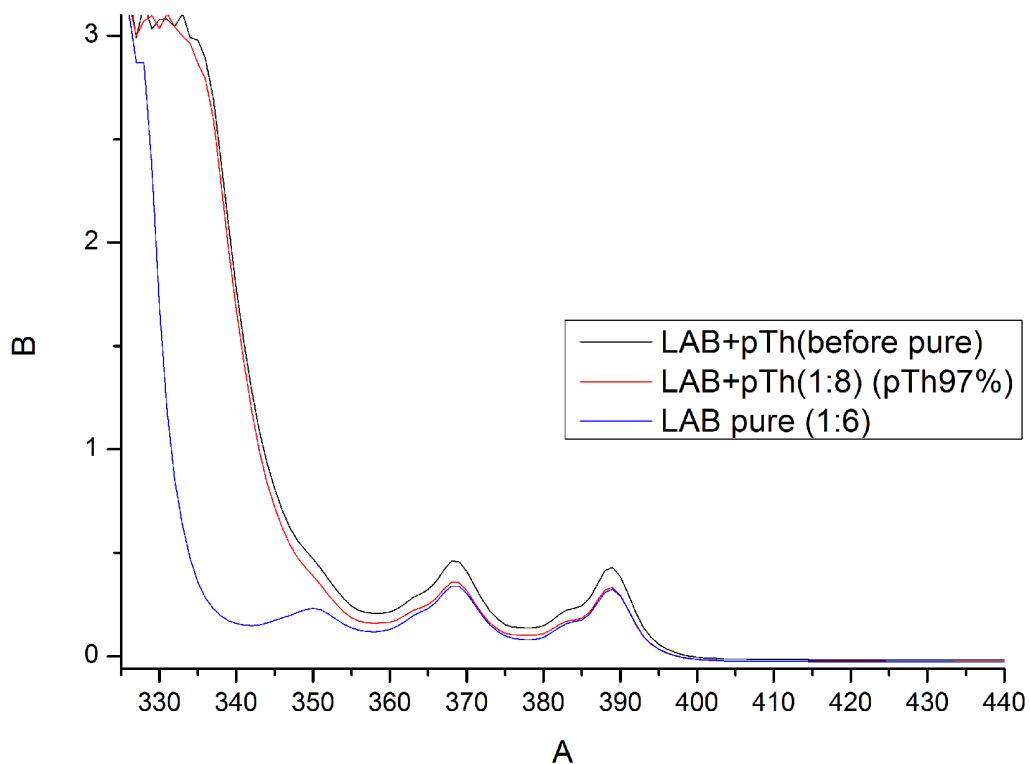


Рис.1. Спектры поглощения в области 320–440 нм: 1) ЛАБа с р-Тр (2 г/л) до очистки (черный) 2) ЛАБа с р-Тр после очистки (красный) 3) чистого ЛАБа, очищенного при соотношении объемов сорбента и растворителя 1:6 (синий)

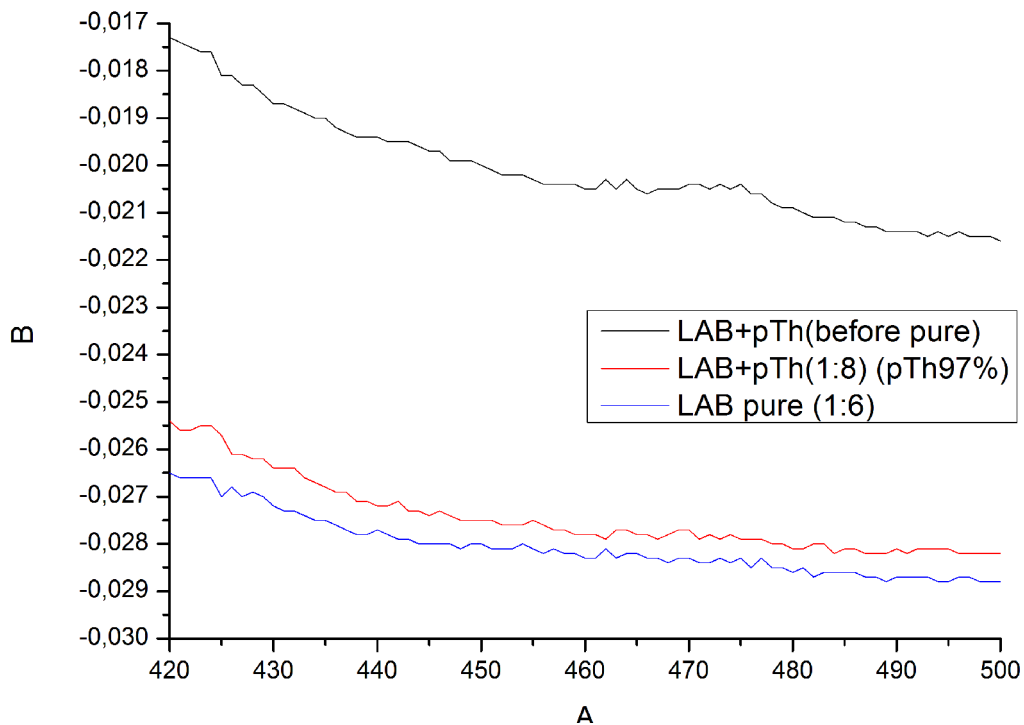


Рис.2. Спектры поглощения в области 420–440 нм

Таким образом, при использовании в качестве сцинтилляционной добавки р-терфенила, сцинтиллятор можно очищать в процессе его эксплуатации на колонке с оксидом алюминия при соотношении объемов сорбента и сцинтиллятора равном 1:6.

Недостатком р-терфенила по сравнению с РРО является его более низкий световыход, но, как известно, его можно увеличить добавив к нему bis-MSB (1,4-bis(2-метилстирил)бензол).

Наши исследования (см. таблицу 6) показали, что при пропускании раствора bis-MSB в ЛАБе (30мг/л) он также в достаточном количестве выходит с колонки, как и р-терфенил.

Из данных, представленных в таблице 6, следует, что при пропускании 4-ой порции, (что соответствует отношению объемов $V_{Al_2O_3} / V_{ЛАБ} = 1:8$) выход bis-MSB составляет 67% от первоначального выхода, что соответствует концентрации 20 мг/л bis-MSB, которая вполне достаточна для работы сцинтиллятора.

Таким образом, сцинтиллятор на основе ЛАБа с сцинтилляционными добавками р-терфенил (1,5г/л) и bis-MSB (30мг/л) можно успешно очищать на оксиде алюминия при соотношении объемов $V_{Al_2O_3} / V_{ЛАБ} = 1:8$

Таблица 6
Сорбция bis-MSB на Al_2O_3

Образец	V мл	LY%
ЛАБ с bis-MSB 30мг/л – не очищ.	1л	100
1 порция	150	0
2 порция	200	41
3 порция	200	44
4 порция	260	67

4. Очистка РРО, ВРО и р-терфенила от калия-40

В работе [21] показано, что РРО содержит довольно много калия ($2 \cdot 10^{-6}$ г/г, что в пересчете на ^{40}K , составляет $2 \cdot 10^{-10}$ г/г). Очистка РРО от калия производилась путем растворения РРО в псевдокумоле и последующей экстракции водой. Анализ калия осуществлялся нейтроноактивационным методом (НА).

В нашей работе мы осуществили сравнительный анализ содержания калия в трех разных сцинтилляционных добавках (fluors): РРО, ВРО и р-терфенила. В качестве растворителя был взят бензол (марки “для хроматографии”), так как растворимость в нем используемых добавок лучше, чем в ЛАБе и псевдокумоле, а также потому, что низкокипящий бензол можно легко удалить отгонкой для получения чистых об-

разцов РРО, ВРО и р-терфенила. Анализ калия осуществляли в водной фазе после экстракции бензольных растворов деионизированной водой методом ICP OES на приборе OPTIMA 7000 DV.

4.1. Очистка РРО.

50 г РРО растворили в 100 мл бензола и экстрагировали деионизированной водой (100мл) в делительной воронке. Время экстракции — 6 мин. Время расслаивания фаз — 1 сутки, после чего фазы были разделены и профильтрованы. Затем была проведена повторная экстракция деионизированной водой в тех же условиях

После этого было определено содержание калия в водных фазах после первичной и вторичной водной экстракции. Результаты представлены в таблице 7.

4.2. Очистка ВРО.

Растворимость ВРО в бензоле хуже, чем у РРО. Для растворения 50 г ВРО потребовалось 200 мл бензола, и растворение ВРО осуществлялось при нагреве до 60 °С и интенсивности перемешивания 400 об/мин. Для экстракции также бралось 100 мл деионизированной воды. Результаты анализа также приведены в таблице 7.

4.3. Очистка р-терфенила.

р-Терфенил растворяется в бензоле только при температуре 80 °С. Было растворено 5 г р-терфенила в 100 мл бензола и произведена экстракция со 100 мл горячей воды при перемешивании.

Результаты анализа показывают, что количество калия, экстрагированного из раствора с РРО в бензоле при вторичной экстракции, уменьшилось в 5 раз по сравнению первичной. Т.о., водная экстракция эффективно удаляет калий при его экстракции из 50% раствора РРО в бензоле.

Результаты анализа позволили оценить содержание калия и изотопа калия-40 в исходном РРО, которое получилось равным $2 \cdot 10^{-6}$ г/г и $2 \cdot 10^{-10}$ г/г соответственно. Это совпадает с результатами анализа в проекте Борексино, в котором содержание калия в РРО, определённое методом нейтронно- активационного анализа, составило $C_K = 2 \cdot 10^{-6}$ г/г. Полученные результаты показывают, что:

- I. Двойная водная экстракция практически полностью очищает РРО от К;

II. Метод позволяет определить абсолютное содержание К в РРО значительно менее трудоемким методом по сравнению с нейтронно- активационным анализом, используемым в *Worexino*

Таблица 7

Удаление калия из сцинтилляционных добавок (Анализ методом ICP OES)

Образцы	Водная фаза после экстракции	Концентр. калия в водной фазе мг/л	Масса калия мкг	Конц.. К in fluor г/г
РРО 50 г в 100 мл бензола, экстракция в 100 мл деионизованной воды	После 1-ой экстр.	0,867±0,0055	86,7	2·10 ⁻⁶
	После 2-ой экстр.	0,175±0,0008	17,5 Σ104,2	
ВРО 50г в 200мл горячего бензола, экстракция в 100 мл деионизованной воды	После 1-ой экстр.	0,212±0,0022	21,2	0,5·10 ⁻⁶
	После 2-ой экстр.	0,028±0,0004	2,8 Σ24,6	
р-терфенил 5г растворено в 100 мл горячего бензола, экстрагировано 100 мл горячей деионизованной воды	После 1-ой экстракции	0,237 ±0,0026	23,7	4,7·10 ⁻⁶

В случае ВРО количество калия, экстрагированного из раствора ВРО в бензоле при вторичной экстракции, уменьшилось в 7,5 раз по сравнению с первичной. Т.о., водная экстракция также эффективно удаляет примесь калия из ВРО при экстракции его 25% раствора в бензоле. Общее количество К, перешедшее в воду из ВРО, составляет 0,5·10⁻⁶ г/г (т.е. в 4 раза меньше, чем в случае РРО).

р-Терфенил трудно очищать таким способом из-за его плохой растворимости, но очевидно, что содержание калия в нем такого же порядка, как и в РРО.

Выводы

Показано, что ЛАБ, как основа жидких органических сцинтилляторов, может быть эффективно очищен от микропримесей урана и тория с помощью экстракции 0,02М водным раствором АМДФК при соотношении объемов $V_{\text{ЛАБ}} / V_{\text{H}_2\text{O}} = 10:1$. Вторым достоинством метода является то, что при этом прозрачность ЛАБа практически не изменяется.

Показано также, что уран и торий могут быть удалены сорбционно на оксиде алюминия и силикагеле из ЛАБа практически полностью при

отношения фаз 1:33 и 1:11, соответственно. При этом в случае тория возможна его десорбция этанолом с последующей регенерацией сорбента. Уран в этих условиях не десорбируется. Сорбционная очистка от урана и тория возможна также в случае уже готового сцинтиллятора при использовании в качестве сцинтилляционных добавок р-терфенила и bis-MSB.

При помощи двойной водной экстракции возможна практически полная очистка РРО и ВРО от К-40.

Работа поддержана грантами РФФИ № 14-22-03059 и № 13-02-92440.

Авторы выражают благодарность Н.И.Бакулиной за помощь в экспериментальной работе и Комарову Б.А. за помощь в проведении анализа методом ICP OES на приборе OPTIMA 7000 DV.

Литература

1. Gando a et al. (Kamland Collab.), arXiv: 1009.4771
2. Villante F.L. CNO solar neutrinos: a challenge for gigantic ultra-pure liquid scintillator detectors, arXiv: 1410.2796 [hep-ph], 2014.
3. Смирнов О.Ю. Измерение потока нейтрино из протон-протонной реакции на Солнце на детекторе Борексина // Новости ОИЯИ JINR NEWS Дубна 4., 2014, Dubna, с.10-13.
4. Ряжская О.Г. Об экспериментах в подземной физике // Успехи физических наук. Т.183, N3. С.315–323.
5. 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.
6. Park J.S., Lee J., Yeo I.S. et al. Production and optical properties of Gd-loaded liquid scintillator for the RENO neutrino detector // Nucl. Instr. Meth., A707 (2013). 45–53.
7. Wanda Beriguite et al. Production of Gadolinium-loaded liquid scintillation for the Daya Bay reactor neutrino experiment // arXiv: 1402.6694.
8. Aberle C., Buck C., Gramblich B. Hartman F.X., Lindner M., Schonert S., Schwan U., Wagner S., Watanabe H. Large scale Gd-beta-diketonate based organic liquid scintillator production for antineutrino detection, arXiv: 1112.5941v2[physics.ins-det] 25Jun 2012.
9. Ba Ro Kim, Boyoung Han⁵, Eun-ju Jeon⁴, Kyung Kwang Joo et al. Development and Mass Production of a Mixture of LAB- and DIN-based Gadolinium-loaded Liquid Scintillator for the NEOS Short-baseline Neutrino Experiment
10. Громов М.Б., Лукьянченко Г.А., Марков Д.С., Новикова Г.Я., Обиняков Б.А., Оралбаев А.Ю., Скорохватов М.Д., Сухотин С.В., Чепурнов А.С., Этенко А.В.,

- Промышленный детектор iDREAM для мониторинга работы атомных реакторов нейтринным методом. Вестник Московского университета, Серия 3, N3, 2015
11. Alimonty G., (Borexino Collab.), Measurement of the ^{14}C abundance in a low-background liquid scintillator, *Physics Letters* 1998, B 422, p.349-358.
 12. Барабанов И.Р., Безруков Л.Б., Вересникова А.В., Гаврилюк Ю.М. и др. Измерение содержания ^{14}C в жидких сцинтилляторах с помощью детектора малого объема в низкофоновой камере в Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН, препринт ИЯИ РАН 1414/2015, ноябрь 2015.
 13. Hu Wei, Fang Jian, Yu Voxiang, Zhang Xuan, Zhoi Li, Cai Xiao, Sun Lijun The efficiency study of different purification methods for liquid scintillator, arXiv: 1601.02780v1 [physics.ins-det] 12 Jan 2016.
 14. Барабанов И.Р., Безруков Л.Б., Вересникова А.В., Гуренцов В.И., Моргалюк В.П., Новикова Г.Я., Янович Е.А. Способ очистки жидкого органического сцинтиллятора на основе ЛАБа от микропримесей урана, тория и калия-40 // *Радиохимия* 2016. Т. 58, N1.
 15. Безруков Л.Б., Бакулина Н.И., Иконников Н.С., Моргалюк В.П., Новикова Г.Я., Чепурнов А.С. Исследование прозрачности отечественного ЛАБа как растворителя для сцинтилляторов большого объема. Препринт ИЯИ РАН 1382/2014. М., 2014.
 16. Воеводский А.В., Дадькин В.Л., Рязская О.Г. // *ПТЭ*, 1970, N1. С. 85–89.
 17. Барабанов И.Р., Безруков Л.Б., Данилов Н.А., Куцев С.В., Моргалюк В.П., Новикова Г.Я., Синев В.В., Янович Е.А. Физико-химическое исследование линейного алкилбензола как базового компонента для создания сцинтилляционных нейтринных детекторов // *ЖПХ*. Т.84, N3. С. 385–391.
 18. Huang P., Li P., Fu Z., He C., Ding Y., Li J. and Qi M. Studi of attenuation length of linear alkyl benzene as solvent, 2010, *Jinst* 5 P08007.
 19. Back H.O., Balata M., A.de Bari et al., Study of phenylxylylethane (PXE) as scintillator for low energy neutrino experiment *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research A* 585 (2008) 48–60.
 20. Goldbruner T., Feilitzsch F.V., Hentig R.V., Jochum J. Neutron activation analysis of detector components for solar neutrino experiment BOREXINO, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 216, No. 2 (1997) 293-297.
 21. Benziger J.B., Johnson Michael, Calaprice F.P., Chen M., Darnton N., Loeser R., Vogelaar R.B. A scintillator purification system for a large scale neutrino experiment, // *Nucl. Instr. and Methods A* 417 (1998) 278-296.

