

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО
ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 539.1.03

РАЗРАБОТКА МЕТОДА ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОТОПА ^{37}Ar ДЛЯ
КАЛИБРОВКИ ДВУХФАЗНОГО ЭМИССИОННОГО ДЕТЕКТОРА НА
ЖИДКОМ АРГОНЕ

© 2026 г. Д. Ю. Акимов^a, Ф. Б. Ата-Курбонова^{a,*}, В. А. Белов^{b, a},
А. И. Болоздыня^a, А. Г. Коваленко^{b, a}, А. М. Коновалов^{a, c},
В. Н. Корноухов^{a, d}, А. В. Кумпан^a, А. В. Лукьяшин^{a, e}, А. Ю. Пресняков^f,
О. Е. Разуваева^a, Г. Е. Симаков^{a, b}, В. В. Сосновцев^a, А. В. Шакиров^a,
Д. И. Юрков^{a, f}

^a Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”
Россия, 115409, Москва, Каширское ш., 31

^b Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

^c Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук
Россия, 119991, Москва, Ленинский просп., д. 53

^d Институт ядерных исследований Российской академии наук
Россия, 117312, Москва, просп. 60-летия Октября, 7а

^e МИРЭА – Российский технологический университет
Россия, 119571, Москва, просп. Вернадского, 86 стр. 3

^f Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова
Россия, 127030, Москва, Суцневская ул., 22

*e-mail: ferangiz_ab@mail.ru

Поступила в редакцию 30.08.2025 г.

После доработки 22.10.2025 г.

Принята к публикации 17.11.2025 г.

Описывается методика приготовления газообразного радиоактивного изотопа ^{37}Ar в лабораторных условиях при помощи облучения металлического кальция нейтронами от нейтронного генератора с целью калибровки двухфазного эмиссионного детектора РЭД-100, предназначенного для исследования упругого когерентного рассеяния нейтрино на атомном ядре.

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время эмиссионные двухфазные детекторы на сжиженных благородных газах широко применяются в низкофоновых исследованиях, таких как поиск темной материи во Вселенной в форме слабо взаимодействующих массивных частиц (Weakly Interacting Massive Particle, WIMP) [1–3] и регистрация реакторных нейтрино с помощью эффекта упругого когерентного рассеяния на атомных ядрах (УКРН) [4, 5]. Благодаря электролюминесцентному усилению ионизационного сигнала они обладают очень низким энергетическим порогом – вплоть до чувствительности к единичным ионизационным электронам, что соответствует выделившейся энергии порядка нескольких десятков эВ электронного эквивалента ($\text{эВ}_{\text{э}}$) или нескольких сотен эВ эквивалента ядер отдачи ($\text{эВ}_{\text{яо}}$). Калибровка и исследование отклика эмиссионного детектора в килоэлектронвольтовой и суб-килоэлектронвольтовой областях возможны только при помощи достаточно короткоживущего радиоактивного изотопа, который хорошо растворяется в жидком благородном газе, обеспечивая однородную по объему калибровку рабочей области детектора, а также не влияет на рабочие характеристики самого детектора. Для такой калибровки различными экспериментальными группами довольно широко используется [6–16] радиоизотоп ^{37}Ar с периодом полураспада $T_{1/2} = 35.01 \pm 0.04$ дня [17]. Он распадается посредством K -захвата с вероятностью 0.9017 ± 0.0024 и L -захвата с вероятностью 0.0890 ± 0.0020 в стабильный изотоп ^{37}Cl . Последующие процессы заполнения K - и L -оболочек приводят к испусканию мягкого рентгеновского излучения и оже-электронов с суммарными энерговыделением в детекторе 2.82 и 0.27 кэВ соответственно [18].

Радиоизотоп ^{37}Ar может быть получен в следующих трех реакциях:



Наиболее широко используемые реакции (1) и (3) для получения этого радиоизотопа описаны в работах [6–10] и [11–16] соответственно. Реакция (1) идет на тепловых нейтронах, а реакция (3) имеет наибольшее сечение в области быстрых нейтронов. Авторы [15] сопоставляют с практической точки зрения оба этих метода.

Реакция (3) реализуема в лабораторных условиях, поскольку она не требует облучения в нейтронных каналах ядерного реактора. С получения ^{37}Ar с помощью данной реакции могут быть использованы Am–Be-, Pu–Be-источники нейтронов или D–T-генератор нейтронов. В работе [14] рассмотрены три метода извлечения ^{37}Ar , полученного в соответствии с реакцией (3), и сравнивается эффективный выход ^{37}Ar из облученной мишени. В работе [15] для получения ^{37}Ar использовался металлический кальций,

изолированный при облучении в герметичную ампулу, который затем нагревался до температуры 900 °С для выделения образовавшегося ^{37}Ar . В работе [16] был описан метод получения ^{37}Ar с использованием металлического кальция для калибровки двухфазного эмиссионного детектора на жидком ксеноне, обеспечивающий необходимую степень чистоты газа. В настоящей работе дано описание процедуры наработки радиоизотопа ^{37}Ar для калибровки эмиссионного двухфазного детектора РЭД-100 на жидком аргоне, предназначенного для исследования процесса УКРН на атомном ядре. Также приведены результаты измерения эффективности выхода ^{37}Ar из металлического кальция при помощи пропорционального счетчика.

2. НАРАБОТКА ИЗОТОПА ^{37}Ar

Для наработки изотопа ^{37}Ar мы выбрали металлический кальций в виде стружки. Стружка с характерными размерами примерно $5 \times 20 \times 0.5 \text{ мм}^3$ была получена путем обработки болванки из металлического кальция на токарном станке в атмосфере аргона. Такая мера предосторожности была выбрана для предотвращения окисления и гидратации кальция. По мере наработки стружка быстро транспортировалась в герметичный стеклянный сосуд, продуваемый аргоном, для последующего хранения в аргонной атмосфере. Для проведения облучения нейтронами стружка кальция была перенесена в герметичный контейнер из нержавеющей стали, представляющий собой полый цилиндр высотой 750 мм, внутренним и внешними диаметрами 155 и 255 мм соответственно. Объем внутренней полости цилиндрического сосуда составил 20.76 ± 0.04 л, общая масса кальция в контейнере составляла около 4.0 кг. Перед облучением было произведено вакуумирование контейнера до давления менее 10^{-5} торр. В течение нескольких суток он был прогрет до температуры свыше 100 °С, затем заполнен стандартным аргоном до давления 2 атм (абс.) и отсоединен от вакуумной/газовой системы. Нарботка изотопа ^{37}Ar происходила путем облучения контейнера с кальциевой стружкой потоком нейтронов с энергией 14.1 МэВ от двух D–T-импульсных нейтронных генераторов ИНГ-062 [19]. Для повышения эффективности облучения и минимизации утечки нейтронов генераторы были ориентированы таким образом, чтобы нейтроны генерировались в центре контейнера (см. рис. 1). Облучение проводилось в течение 20 ч с суммарной интенсивностью нейтронов $4 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ в лаборатории Всероссийского научно-исследовательского института автоматики имени Н. Л. Духова. После завершения облучения контейнер выдерживался в течение 5 суток для распада короткоживущих наведенных радионуклидов и снижения фона до уровня, близкого к естественному.

Рис. 1. Geant4-модель герметичного контейнера из нержавеющей стали, заполненного кальциевой стружкой [20]. Размеры приведены в мм

3. ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ НАРАБОТАННОГО ИЗОТОПА ^{37}Ar

Для определения активности наработанного радиоизотопа ^{37}Ar использовался пропорциональный счетчик (ПС), выполненный в виде коаксиального цилиндра из нержавеющей стали диаметром 29 мм, длиной 300 мм, толщиной стенки 0.5 мм с анодом из золоченой вольфрамовой проволоки диаметром 50 мкм. ПС был расположен внутри трех последовательно соединенных стандартных (CF2.75") высоковакуумных элементов типа "тройник". Боковые порты CF2.75" и CF1.33" использовались для откачки счетчика, наполнения аргоном из облученного контейнера и измерения давления газа, соответственно. Блок-схема соединений показана на рис. 2а.

Рис. 2. Пропорциональный счетчик, использованный для измерения активности ^{37}Ar :

Все газовые линии и линии откачки выполнены из высоковакуумных материалов со стандартными соединениями типа VCR и CF. Счетчик заполнялся либо натуральным аргоном (не содержащим радиоизотопа ^{37}Ar), либо аргоном из контейнера с кальциевой стружкой. Перед заполнением счетчика аргоном из контейнера последний был прогрет при температуре около 100 °С в течение 18 ч.

3.1. Калибровка пропорционального счетчика

Для обеспечения удовлетворительных спектрометрических характеристик пропорционального счетчика использовалась газовая смесь, состоящая из 70% аргона и 30% ксенона. Добавка ксенона обеспечивала необходимое амплитудное разрешение. Например, полная ширина на полувысоте (ПШПВ) для гамма-линии с энергией 30 кэВ составила 8%. Смесь готовилась следующим образом: счетчик вакуумировался с помощью турбомолекулярного насоса до остаточного абсолютного давления $\sim 10^{-6}$ торр, затем в него подавался исследуемый аргон до абсолютного давления 1.4 атм, далее счетчик отсекался от объема с облученным кальцием, и после этого из отдельного баллона в него подавался ксенон до тех пор, пока общее давление в счетчике не достигало 2 атм.

Сигналы со счетчика регистрировались с помощью электронного тракта, включавшего спектрометрический предусилитель ORTEC 142РС. Измерения проводились при коэффициенте газового усиления около 200 и напряжении 1700 В. С выхода предусилителя сигнал подавался на спектрометрический усилитель-формирователь CAEN N968, а затем на многоканальный анализатор импульсов ASPEC MCA ORTEC 927. Время формирования CAEN N968 составляло 2 мкс, что обеспечило полное собирание заряда в счетчике.

Для калибровки энергетической шкалы анализатора использовался радиоактивный изотоп ^{241}Am , расположенный снаружи корпуса счетчика в его центральной части.

Полученный спектр за 10000 с живого времени при использовании натурального аргона в смеси с ксеноном с указанной выше пропорцией представлен на рис. 3а.

На спектре показаны линии (в порядке убывания энергии): 59.54 кэВ – ^{241}Am , 30 кэВ – пик вылета характеристического фотона с K -оболочки ксенона, 26.348 кэВ – ^{241}Am , 6.4 кэВ – характеристический фотон с K -оболочки железа (корпус счетчика) [21]. На рис. 3б приведен калибровочный график, построенный по этим линиям. Зависимость канала анализатора от энергии представлена формулой

$$N = 11.97 \cdot E - 10.07,$$

где E – энергия гамма-кванта, N – номер канала анализатора.

Рис. 3. Амплитудные спектры сигналов с пропорционального счетчика:

3.2. Измерение активности наработанного изотопа ^{37}Ar

На рис. 4 представлен амплитудный спектр со счетчика за 10000 с живого времени в отсутствие источника. В этом случае сигналы в основном образуются за счет ионизационных потерь атмосферных мюонов. Наиболее вероятное значение энергии, выделяемой атмосферными мюонами в счетчике, составляло около 11.3 кэВ, что находится далеко от ожидаемой линии ^{241}Am с энергией 2.82 кэВ от ^{37}Ar .

Рис. 4. Амплитудный спектр сигналов, полученный за 10000 с живого времени без источника ^{241}Am

На рис. 5 представлен спектр сигналов со счетчика за то же живое время (10000 с) в газовой смеси, где натуральный аргон был заменен на аргон из объема с облученным кальцием. К широкому распределению от ионизационных потерь атмосферных мюонов добавился узкий пик (ПШПВ примерно 20%) с энергией около 3 кэВ (см. рис. 5), связанный с характерным пиком от распада ^{37}Ar .

Рис. 5. Амплитудный спектр сигналов от пропорционального счетчика, заполненного смесью облученного аргона и ксенона

Для оценки скорости счета, обусловленной присутствием ^{37}Ar , было проведено вычитание спектров, показанных на рис. 4 и рис. 5. Разность спектров в области энергий от 1.5 до 4.0 кэВ, приведенная на рис. 6, демонстрирует пик от распада ^{37}Ar . Аппроксимация пика распределением Гаусса в интервале от 2.0 до 3.5 кэВ дает среднее значение энергии в пике 2.675 ± 0.144 кэВ, совпадающее в пределах ошибок с табличным значением для линии от K -захвата ^{37}Ar . Общее количество отсчетов в соответствующей области пика за 10000 с составило 4616 ± 316 отсчетов.

Рис. 6. Разность спектров ионизационных потерь атмосферных мюонов в газовой смеси с облученным и обычным аргоном.

С учетом соотношения количества аргона в активном объеме счетчика (0.412 ± 0.008 л) и полного количества ^{37}Ar , содержащегося в облученном объеме с кальциевой стружкой (41.52 ± 0.08 л), активность изотопа ^{37}Ar , извлеченного из кальциевой стружки после 20-часового прогрева контейнера, на момент измерений составила 46.9 ± 3.2 Бк. Согласно нашим оценкам фона в детекторе РЭД-100 в области нескольких килоэлектронвольт активность наработанного ^{37}Ar достаточна для объемной калибровки детектора РЭД-100.

Измеренная активность ^{37}Ar позволяет рассчитать важный параметр в реализованной технологии наработки калибровочного изотопа по реакции (3), а именно эффективность выхода ^{37}Ar из кальциевой стружки после ее облучения нейтронами и дополнительного прогрева до температуры около 100 °С. Моделирование процесса наработки ^{37}Ar , проведенное при помощи метода Монте-Карло с использованием программного пакета Geant4 [20] с учетом геометрии и материалов конструкции контейнера, заполненного кальциевой стружкой, технических данных D–T-генератора и условий облучения, показало, что за 20 ч облучения в используемой мишени из кальциевой стружки было образовано примерно $2.5 \cdot 10^{10}$ атомов ^{37}Ar . Оценка эффективности экстракции изотопа ^{37}Ar была проведена на основе его измеренной активности с учетом влияния таких факторов, как время распада изотопа, продолжительность выдержки облученного образца, этапов транспортировки и нагрева емкости с облученным кальцием, а также времени измерения активности в пропорциональном счетчике. Эффективность экстракции составила около 2% от общего количества ^{37}Ar , наработанного в кальциевой мишени в ходе реакции (3).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для проведения объемной энергетической калибровки эмиссионного двухфазного детектора РЭД-100 в области энергий около 1 кэВ был выбран изотоп ^{37}Ar . Нароботка ^{37}Ar была проведена путем облучения кальциевой стружки массой 4 кг в течение 20 ч нейтронами от D–T-генератора с энергией 14.1 МэВ и интенсивностью $4 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$. Измеренная с помощью пропорционального счетчика активность полученного изотопа на момент измерений составила 46.88 ± 3.19 Бк, что было достаточно для энергетической калибровки детектора РЭД-100 в низкоэнергетической области. Эффективность выхода ^{37}Ar из кальциевой стружки с учетом всех конструкционных, технических параметров, физических условий облучения, а также периода полураспада составила по нашим оценкам примерно 2%.

ФИНАНСИРОВАНИЕ

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда в рамках контракта №22-12-00082-П, а также Министерства науки и высшего образования РФ в рамках проекта

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Aprile E., Aalbers J., Abe K. et al. (XENON Collaboration).* // Eur. Phys. J. C. 2024. V. 84. P. 784. <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-024-12982-5>
2. *Akerib D.S., Akerlof C.W., Akimov D.Yu. et al.* // Nucl. Instrum. Meth. A. 2020. V. 953. P.163047. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.163047>
3. *Zhang H., Abdukerim A., Chen W. et al.* // Sci. China Phys. Mech. Astron. 2019. V. 62. P. 31011. <https://doi.org/10.1007/s11433-018-9259-0>
4. *Акимов Д.Ю., Александров И.С, Белов В.А. и др.,* // ПТЭ. 2017. № 2. С. 22
[*Akimov D.Yu., Aleksandrov I.S., Belov V.A. et al.* // ИЕТ. 2017. V. 60. P. 175. [https://doi.org/10.1134/S0020441217010146.](https://doi.org/10.1134/S0020441217010146)]
5. *Cai C., Chen G., Chen J. et al. (RELICS Collaboration)* // Phys. Rev. D. 2024. V. 110. P. 072011. <https://doi.org/10.1103/PhysRevD.110.072011>
6. *Zhang W., Liu Y., Han K. et al.* // IEEE Trans. Nucl. Sci. 2025. V.72. P. 1800.
<https://doi.org/10.1109/TNS.2025.3548261>
7. *Aprile E., Abe K., Agostini F. et al.* // Eur. Phys. J. C. 2023. V. 83. P. 542. <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-023-11512-z>
8. *Baudis L., Biondi Y., Galloway M. et al.* // Eur. Phys. J. 2020. C 80. P. 477. <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-020-8031-6>
9. *Sangiorgio S., Joshi T.H., Bernstein A. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A. 2013. V. 728. P. 69. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.06.061>
10. *Anachkova E., Kellerer A.M., Roos H.* // Radiat. Environ. Biophys. 1994. V. 33. P. 353. <https://doi.org/10.1007/bf01210456>
11. *Kelly F., Arnaud Q., Brossard A. et al.* // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2018. V. 318. P. 279. <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6130-8>
12. *Boulton E.M., Bernard E., Destefanoet N. et al.* // J. Instrum. 2017. V. 12. P. P08004. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/08/P08004>
13. *Барсанов В.И., Джанелидзе А.А., Замятина А.А. и др.* // ПТЭ. 2006. №4. С. 10.
[*Barsanov V.I., Dzhanelidze A.A., Zamyatina A.A. et al.* // ИЕТ. 2006. №4. P. 454. <https://doi.org/10.1134/S0020441206040026>]

14. *Абдурашитов Д.Н., Гаерин В.Н., Мирмов И.Н. и др. // ПТЭ. 2000. №3. С. 5*
[*Abdurashitov D.N., Gavrin V.N. Mirmov I.N. et al. // ИЕТ. 2000. V. 43. № 3 P. 287.*
<https://doi.org/10.1007/BF02759020>]
15. *Akimov D.Yu., Afanasyev V.V., Alexandrov I.S. et al. // J. Instrum. 2014. V. 9. P. 11014*
<https://doi.org/10.1088/1748-0221/9/11/P11014>
16. *Michael H., Wölfle R., Qaim S.M // Int. J. Appl. Radiat. Isot. 1984. V. 35. P. 813.*
[https://doi.org/10.1016/0020-708X\(84\)90096-6](https://doi.org/10.1016/0020-708X(84)90096-6)
17. *Chechev V.P., Kondev F.G., Nichols A.L. et al. Table of Radionuclides. V. 7-A=14 to 245.*
Monographie BIPM-5, 2013.
18. *Larkins F.B. // At. Data Nucl. Data Tables. 1977. V. 20. P. 311.*
[https://doi.org/10.1016/0092-640X\(77\)90024-9](https://doi.org/10.1016/0092-640X(77)90024-9)
19. Гражданская продукция организаций оборонно-промышленного комплекса. Росатом. Т. II, электронный ресурс.
<https://www.rosatom.ru/upload/iblock/638/638671b605c456aa044069afaef4a5d7.pdf>
20. Geant4. 10.2 Book for Application Developers. <https://geant4-userdoc.web.cern.ch>.
21. *Bochek G.L., Deiev O.S., Maslov N.I., Voloshyn V.K. // // Problems of atomic science and technology. 2011. № 3. P. 42.*

ПОДПИСИ К РИСУНКАМ

- Рис. 1.** Geant4-модель герметичного контейнера из нержавеющей стали, заполненного кальциевой стружкой [20]. Размеры приведены в мм.
- Рис. 2.** Пропорциональный счетчик, использованный для измерения активности ^{37}Ar : **а** – схема подключения ПС для измерения активности наработанного ^{37}Ar (1 – газовые вентили, 2 – вакуумный вентиль, 3 – цифровой измеритель давления, 4 – корпус пропорционального счетчика, 5 – вакуумный высоковольтный ввод, 6 – баллон с ксеноном, 7 – стрелочный манометр); **б** – фото пропорционального счетчика.
- Рис. 3.** Амплитудные спектры сигналов с пропорционального счетчика: **а** – от источника ^{241}Am , **б** – калибровочная прямая. Погрешности измерений не превышают размеров экспериментальных точек.
- Рис. 4.** Амплитудный спектр сигналов, полученный за 10000 с живого времени без источника ^{241}Am .
- Рис. 5.** Амплитудный спектр сигналов с пропорционального счетчика, заполненного смесью облученного аргона и ксенона.
- Рис. 6.** Разность спектров ионизационных потерь атмосферных мюонов в газовой смеси с облученным и обычным аргоном (штриховой вертикальной линией отмечено полученное положение среднего значения 2.675 ± 0.144 кэВ).

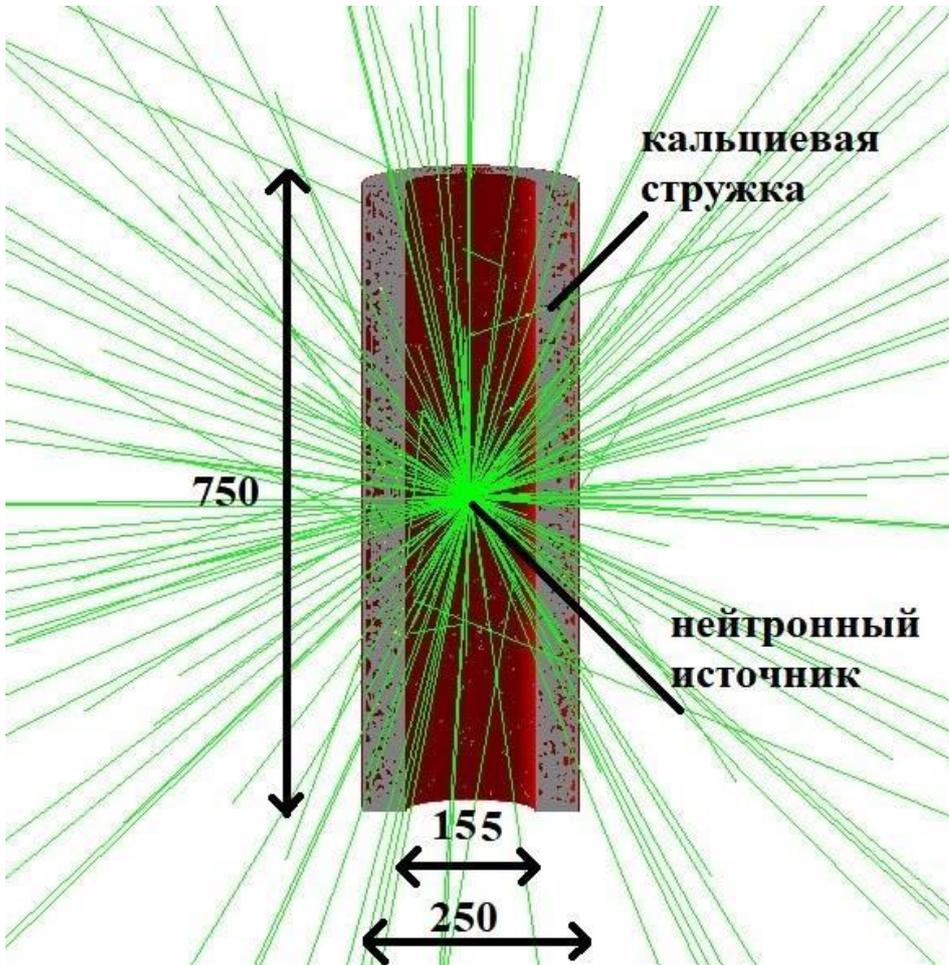
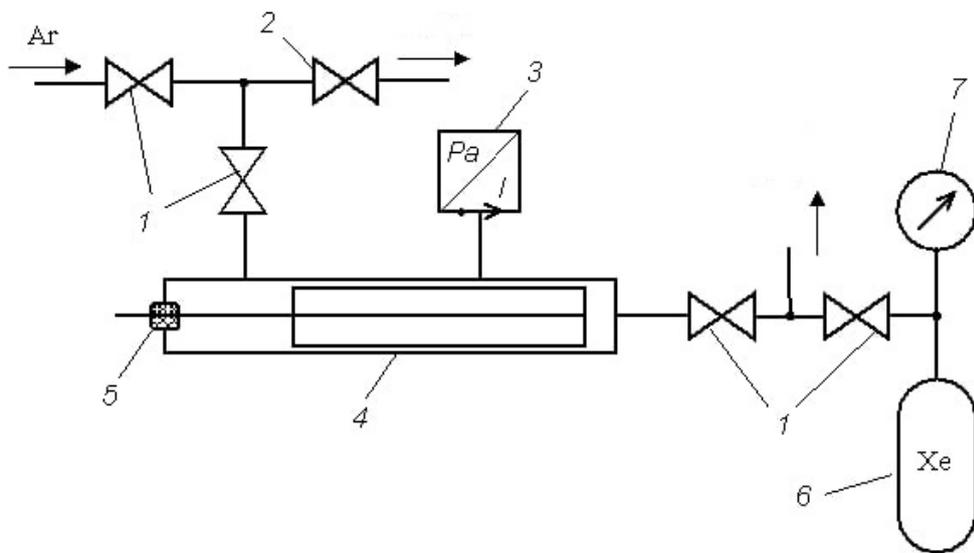


Рис. 1.



(a)



(б)

Рис. 2

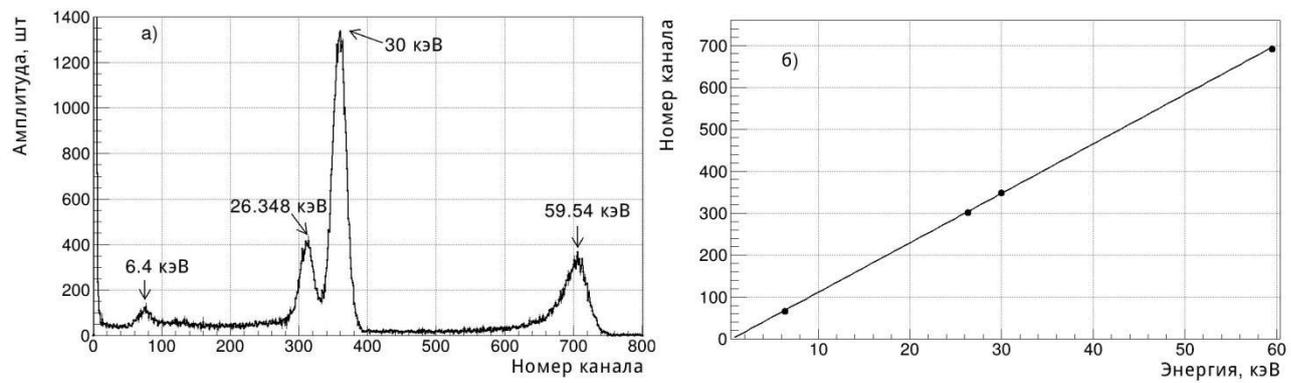


Рис. 3.

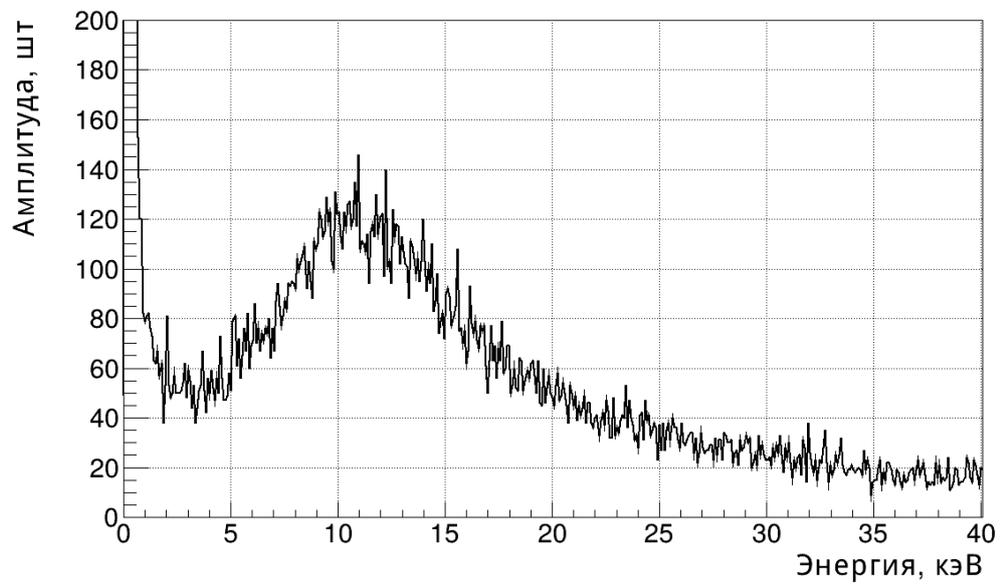


Рис. 4.

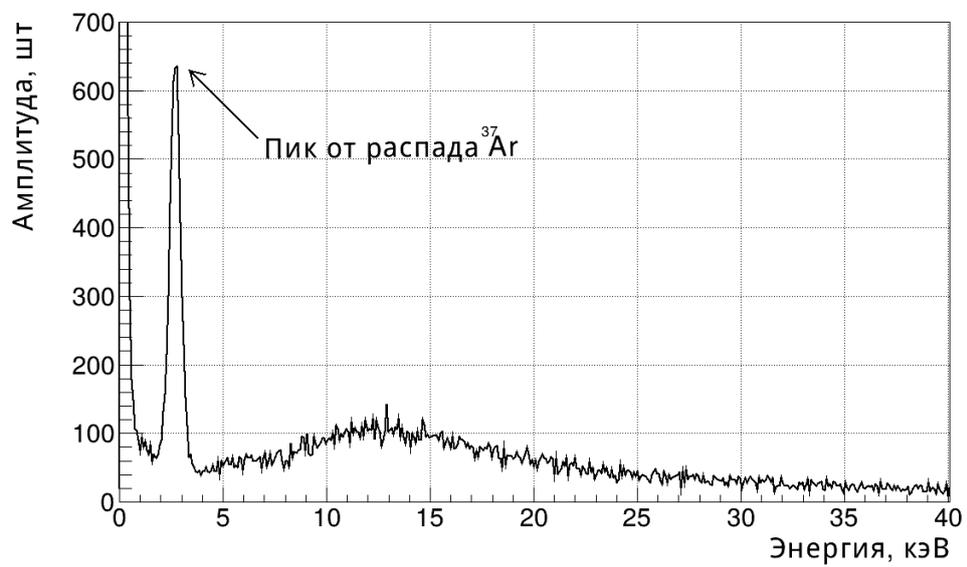


Рис. 5.

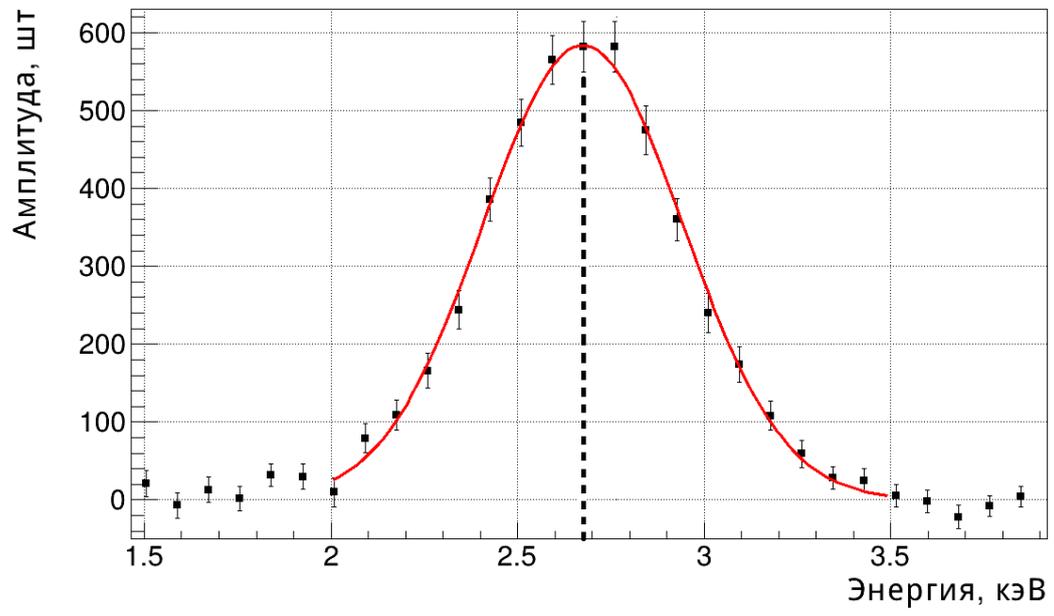


Рис. 6.