На правах рукописи

Ханбеков Никита Дмитриевич

ИЗУЧЕНИЕ СВОЙСТВ МОНОКРИСТАЛЛОВ ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ И ИЗГОТОВЛЕННЫХ НА ИХ ОСНОВЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ ЭЛЕМЕНТОВ КРИОГЕННОГО ДЕТЕКТОРА ДЛЯ ПОИСКА БЕЗНЕЙТРИННОГО ДВОЙНОГО БЕТА-РАСПАДА ИЗОТОПА ¹⁰⁰Mo

(01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики)

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Москва 2014 год

Работа выполнена в НИЦ «Курчатовский институт» ФГБУ «Государственный Научный Центр Российской Федерации Институт Теоретической и Экспериментальной Физики»

Научный руководитель:

кандидат физико- математических наук	В.Н. институт» (Российской Эксперимен	Корноухов ФГБУ «Госуд Федерации тальной Физ	(НИЦ царственны Институт ики»)	«Курчатовски й Научный Цент Теоретической	й р и
Официальные оппоненты:					
доктор физико-математических наук, заместитель директора по научной работе ИЯИ РАН	Л.Б. Бе	зруков			
доктор физико-математических наук, директор центра ядерной медицины НИЯУ МИФИ	А.И. Б	олоздыня			
Ведущая организация:	Объединённ (Дубна)	ый институт	ядерных и	сследований	

Защита диссертации состоится «___» ____ 2014 г.

в «____» часов на заседании диссертационного совета Д201.002.01 НИЦ "КИ" ФГБУ «ГНЦ РФ Институт теоретической и экспериментальной физики».

Адрес: 117218, г. Москва, ул. Большая Черемушкинская, д. 25.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ "КИ" ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ»

Автореферат разослан «___»____ 2014 г.

Ученый секретарь диссертационного совета Д201.002.01 к.ф.-м.н. В.В. Васильев

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования

Интерес к поискам безнейтринного двойного бета-распада резко вырос после открытия осцилляций нейтрино, свидетельствующих о наличии у нейтрино ненулевой массы (эксперименты SuperKamiokande, SNO, KamLAND, K2K). Данные эксперименты также позволили установить значения разности квадратов масс нейтрино. Следующий шаг в данном направлении – определение природы массы нейтрино, дираковской или майорановской, может быть сделан в случае открытия безнейтринного двойного бета-распада. Кроме того это дало бы возможность получить значение эффективной массы частицы.

Эти соображения определили разработку и запуск ряда новых низкофоновых экспериментов по поиску безнейтринного двойного бета-распада различных изотопов (эксперименты GERDA, EXO-200, Kamland-Zen). Настоящая работа выполнена в рамках подготовки ещё одного эксперимента – AMoRE (Advanced Mo based Rare process Experiment), который ставит своей целью обнаружение безнейтринного двойного бета-распада изотопа ¹⁰⁰Mo с использованием в качестве материала детектора сцинтилляционных монокристаллов молибдата кальция ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, произведённых из изотопно-обогащённых материалов.

Выбор изотопа ¹⁰⁰Мо основывается на высокой энергии его двойного бета распада, что обуславливает более низкий фон в соответствующей области энергетического спектра и увеличивает вероятность искомого процесса. Кроме того данный изотоп может быть произведён центрифужным методом в количестве десятков килограмм, необходимых для проведения эксперимента.

Монокристаллы ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, в качестве материала криогенного сцинтилляционного детектора, обладают рядом преимуществ. Прежде всего, это высокое содержание в молибдате кальция рабочего изотопа (49%), возможность анализировать сцинтилляционный сигнал с целью отбора фоновых событий, а также возможность добиться высокой эффективности регистрации событий в эксперименте по схеме «источник≡детектор». Всё это делает исследование и характеризацию монокристаллов 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ актуальной задачей в рамках подготовки полномасштабного эксперимента по поиску безнейтринного двойного бета-распада.

3

Степень разработанности темы

Первое сообщение об исследованиях монокристаллов молибдата кальция для использования в сцинтилляционном детекторе двойного бета-распада изотопа ¹⁰⁰Мо прозвучало на конференции «New Views in Particle Physics (VIETNAM'2004)» и было опубликовано в трудах конференции ¹. Затем, в 2005 году, результаты изучения сцинтилляционных свойств образцов CaMoO₄ (и пути их улучшения) были представлены в статье S. Belogurov *et al.* «CaMoO₄ scintillation crystal for the search of ¹⁰⁰Mo double beta decay», IEEE Tran. of Nucl. Sci., Vol. 52, No. 4, pp. 1131-1135 (2005).

Дальнейшая работа велась в нескольких направлениях, необходимых для подготовки эксперимента: совершенствование технологии очистки исходного сырья и роста монокристаллов, с целью снижения внутреннего фона и получения наилучших сцинтилляционных свойств; характеризация выращенных монокристаллов; изучение сцинтилляционных свойств молибдата кальция в диапазоне температур от комнатной до криогенной; разработка методики проведения эксперимента (снижение фона, архитектура установки, разработка систем съема сигнала и обработки данных).

Характеризация больших CaMoO₄ первых монокристаллов (измерения прозрачности, световыхода, радиоактивной чистоты) была опубликована в работе M.V. Korzhik et al., «Large Volume CaMoO₄ Scintillation Crystals» IEEE Trans. Nucl. Sci. 55, 1473 (2008). В другой работе 2008 года А. N. Annenkov et al., «Development of CaMoO₄ crystal scintillators for a double beta decay experiment with ¹⁰⁰Mo» Nucl. Instrum. Methods A 584, 334 (2008) были опубликованы результаты по достигнутому энергетическому разрешению в установке с использованием различных образцов кристаллов CaMoO₄, а также детальное исследование фона (и путей его снижения) в эксперименте с использованием CaMoO₄. Дальнейшая характеризация имевшихся на тот момент образцов, включавшая измерение абсолютного световыхода молибдата кальция, была проведена в работе H.J. Kim et al., «Neutrino-Less Double Beta Decay Experiment Using Ca¹⁰⁰MoO₄ Scintillation Crystals» IEEE Trans. Nucl. Sci. 57, 1475 (2010).

В 2009 году была защищена диссертация А. В. Вересниковой «Исследование параметров сцинтилляционных кристаллов CaMoO₄ для поиска двойного бета-распада изотопа ¹⁰⁰Mo» Дис. Канд. физ.-мат. наук 01.04.01, Москва, 2009, 102 с. в которой обобщались исследования автора по изучению оптических свойств монокристаллов

¹ H. J. Kim *et al.,* «A search for the 0-neutrino double beta decay with the CaMoO4 scintillator», Proceedings of New Views in Particle Physics (VIETNAM'2004), August 5–11, 2004, p. 449.

молибдата кальция, их кинетики высвечивания и абсолютного световыхода, а также приводился расчет индекса фона сцинтилляционного детектора на основе CaMoO_{4.}

Важные работы по изучению абсолютного световыхода, кинетики высвечивания, механизма сцинтилляции и иных свойств молибдата кальция проводились группой Крауса-Михайлика (H. Kraus, V. B. Mikhailik)².

Однако в работах выполнявшихся вплоть до 2009 года исследовались образцы молибдата кальция, произведённые из необогащённого (природного) сырья. Разработка технологии выращивания монокристаллов молибдата кальция из исходных компонент обогащённых изотопом ¹⁰⁰Мо и получение первых образцов монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в 2009 году стало отправной точкой данной работы. Дальнейшее совершенствование процесса очистки исходных компонент И шихты, технологии выращивания монокристаллов и подготовка запуска полномасштабного эксперимента с молибдатом потребовали проведения новой характеризации имеющихся изотопнокальция обогащённых кристаллов, а также разработки методов снижения их внутреннего фона.

Цели и задачи исследования

- Получение первых монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ для эксперимента AMoRE.
- Проведение комплексной характеризации имеющихся образцов монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в рамках совершенствования технологии выращивания монокристаллов (измерение относительного световыхода, показателя ослабления, абсолютного световыхода, удельной γ-активности).
- Разработка и создание установки для измерения относительного световыхода образцов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, поставляемых с завода-изготовителя.
- Разработка методов анализа сцинтилляционных сигналов с целью улучшить идентификацию фоновых событий в эксперименте по поиску безнейтринного двойного бета-распада.

²V.B. Mikhalik, H. Kraus, D. Wahl, M.S. Mykhaylyk «Studies of electronic excitations in MgMoO₄, CaMoO₄ and CdMoO₄ crystals using VUV synchrotron radiation» Phys. Status Solidi B Vol. 242, Issue 2, pp. 17-19 (2005); V.B. Mikhalik et al., «Luminescence of CaWO₄, CaMoO₄, and ZnWO₄ scintillating crystals under different excitations» Journal of applied physics 97, 083523 (2005); V.B. Mikhalik et al., «Radiative decay of self-trapped excitons on CaMoO₄ and MgMoO₄ crystals» J. Phys.: Condens. Matter 17, 7209-7218 (2005); V.B. Mikhalik and H. Kraus «Cryogenic scintillators in searches for extremely rare events» J. Phys. D: Appl. Phys. 39, 1181-1191 (2006); A. Senychyn et al., «Thermal properties of CaMoO₄: Lattice dynamics and synchrotron powder diffraction studies» Physical Review B73, 014104 (2006); V.B. Mikhalik, S. Henry, H. Kraus, I. Solskii «Temperature dependence of CaMoO₄ scintillation properties», Nucl. Instrum. Methods A 583, 350-355 (2008); V.B. Mikhalik and H. Kraus «Perfomance of scintillation materials at cryogenic temperatures» Phys. Status Solidi B, 1-17 (2010).

Научная новизна

В представляемой диссертации впервые описаны процессы производства (и очистки) исходных изотопно-обогащённых компонент для роста кристаллов молибдата кальция, синтеза шихты и выращивания изотопно-обогащенных монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ и дано всестороннее исследование их свойств.

Впервые проведены измерения удельной активности сцинтилляционных элементов ${}^{40}\text{Ca}{}^{100}\text{MoO}_4$ в активном режиме и разработан новый алгоритм обработки данных этих измерений, позволяющий улучшить идентификацию фоновых событий и, таким образом, снизить индекс фона экспериментальной установки в энергетической области безнейтринного двойного бета-распада изотопа ${}^{100}\text{Mo}$.

Впервые проведено определение абсолютного световыхода монокристаллов молибдата кальция на основе методики MCRIM (Monte-Carlo refractive index matching technique).

Теоретическая и практическая значимость работы

Результаты проведённых исследований используются для планирования, подготовки и совершенствования методики эксперимента AMoRE по поиску безнейтринного двойного бета-распада изотопа ¹⁰⁰Mo. Разработанные методы снижения фона позволяют повысить чувствительность данного эксперимента.

Разработана установка для измерения относительного световыхода образцов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, поставляемых с завода-изготовителя. На установке проводятся регулярные измерения с целью совершенствования процесса изготовления монокристаллов.

Положения, выносимые на защиту

- Результаты измерения относительного световыхода и времени высвечивания образца ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в широком диапазоне температур 8-295 К.
- 2) Значение абсолютного световыхода молибдата кальция при комнатной температуре.
- Результаты измерения показателя ослабления (прозрачности) образцов
 ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄.
- 4) Результаты измерения α/β отношения для монокристаллов ${}^{40}Ca^{100}MoO_{4.}$
- 5) Результаты ИСП-МС измерений и измерений на ППД из высокочистого германия содержания примесей в исходных изотопнообогащенных материалах

 $^{40}{\rm CaCO_3}$ и $^{100}{\rm MoO_3},$ шихте $^{40}{\rm Ca}^{100}{\rm MoO_4}$ и монокристаллах молибдата кальция $^{40}{\rm Ca}^{100}{\rm MoO_4}.$

- Методика анализа данных, позволяющая улучшить идентификацию фоновых событий, в том числе отобрать сигналы с наложениями от нескольких событий внутри детектора.
- Результаты измерения удельной активности выращенных сцинтилляционных элементов в сцинтилляционном режиме.
- Индекс фона и чувствительность низкофоновой установки со сцинтилляционными элементами на основе монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄.

Апробация результатов

Результаты данной работы неоднократно докладывались на совещаниях международной коллаборации AMoRE. Также содержание работы было представлено на сессии-конференции секции Ядерной физики Отделения физических наук РАН в 2011 году и на семинаре ИТЭФ в 2013 году.

Содержание работы

Во **введении** диссертации обосновывается актуальность диссертационного исследования, раскрывается степень разработанности темы и приводятся основные публикации, задающие научный контекст исследования. Здесь же сформулирована цель работы, научная новизна и основные положения, выносимые на защиту.

В Главе 1 изложена краткая история теоретических и экспериментальных исследований безнейтринного двойного бета-распада (0v2 β); приведены элементы теории, существенные для экспериментальных поисков 0v2 β -распада: период полураспада процесса, иерархия нейтринных масс, расчет чувствительности эксперимента по поиску 0v2 β -распада; приведён обзор современных экспериментов по поиску 0v2 β -распада и описаны основные особенности изотопа ¹⁰⁰Мо в качестве рабочего изотопа в 0v2 β -эксперименте: высокая энергия $\beta\beta$ -перехода (3034.4 кэВ), возможность обогащения молибдена изотопом ¹⁰⁰Мо до уровня выше 95% с помощью центрифужного метода, значение периода полураспада 2v2 β -распада $T_{1/2}^{2\nu} = (7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$ лет.

Глава 2 посвящена использованию монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в эксперименте AMoRE по поиску 0v2β-распада. В **параграфе 2.1** представлены основные свойства молибдата кальция, важные для дальнейшего исследования характеристик образцов

монокристаллов. В **параграфе 2.2** описан механизм возникновения сцинтилляций в молибдате кальция.

В параграфе 2.3 приводится описание эксперимента AMoRE в рамках подготовки к которому выполнена настоящая работа. Коллаборация использует монокристаллы 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ в качестве криогенного сцинтилляционного болометра для исследования процесса $0v2\beta$ -распада изотопа 100 Mo. Общая масса молибдата кальция 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ составит 200 кг. Ожидается, что разрешение детектора AMoRE в области Q_{ββ} будет составлять 5 кэВ. Приведены результаты тестовых измерений с кристаллом CaMoO₄ (из природного сырья) массой 216 г при криогенной температуре. Энергетическое разрешение болометрической установки составило 9.9 ± 1.3 кэВ при энергии 2615 кэВ (фононный сигнал).

Планируемая чувствительность эксперимента за 5 лет набора данных $T_{1/2}^{0\nu} > 10^{27}$ лет.

В параграфе 2.4 приведено описание источников фона в эксперименте по поиску 0v2β-распада. Показано, что основными источниками фона являются: изотопы ²⁰⁸Tl ($Q_{\beta} = 5001 \text{ кэB}$) и ²¹⁴Bi ($Q_{\beta} = 3272 \text{ кэB}$), наложения сигналов от 2v2β-распада изотопа ¹⁰⁰Mo с суммарной энергией в области 3 МэВ, фон от космических мюонов.

Общий фон детектора AMoRE планируется снизить до уровня ниже 3×10^{-4} кэ B^{-1} кг⁻¹год⁻¹.

Параграф 2.5 посвящен описанию процесса производства и многоступенчатой очистки исходных компонент и шихты для роста монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. Основной вывод данного раздела состоит в том, что исходные компоненты и шихта ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, удовлетворяют требованиям на содержание долгоживущих изотопов ²³⁸U, ²³²Th и ²²⁶Ra для создания детектора коллаборации AMoRE в предположении, что в процессе двойной перекристаллизации произойдёт дальнейшее снижение удельно активности изотопа ²²⁶Ra до уровня 0.04 мБк/кг. Концентрация ²³⁸U и ²³²Th в обогащенном материале, измеренная методом ИСП-МС, ниже чем 0.2 × 10⁻⁷ мас.% и 0.8 × 10⁻⁷ мас.% соответственно. В Таблице 1 приведена удельная активность радиоактивных примесей в различных образцах исходных материалов и шихте ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, измеренная методом низкофоновой гаммаспектрометрии БНО ИЯИ РАН.

Процесс производства монокристаллов 40 Ca 100 MoO₄ (методом Чохральского) и изготовления сцинтилляционных элементов на их основе представлен в **параграфе 2.6.** Для данного исследования использовались первые сцинтилляционные элементы (СЭ) из сырья обогащенного изотопом 100 Mo. При производстве СЭ СБ28 и СБ29 была использована процедура двойной перекристаллизации, а СЭ СЗ5 был получен напрямую

из исходной шихты, что значительно повлияло на содержание в нём радиоактивных примесей. Изображения данных сцинтилляционных элементов приведены на Рисунке 1, а свойства даны в Таблице 2.

	Удельная активность, Бк/кг			
Изотоп	Оксид молибдена, ¹⁰⁰ МоО ₃	Формиат кальция ⁴⁰ Ca(HCOO) ₂	Формиат кальция ⁴⁰ Ca(HCOO) ₂ Доп. очистка ЗАО «НеоХим»	Шихта, ⁴⁰ Ca ¹⁰⁰ MoO ₄
⁴⁰ K	$(5.3\pm0.8)\cdot10^{-2}$	$(3.6 \pm 2.7) \cdot 10^{-3}$	$\leq 8.6 \cdot 10^{-3}$	$\leq 9.4 \cdot 10^{-3}$
²²⁸ Ac (²³² Th)	$\leq 3.8 \cdot 10^{-3}$	$(1.0 \pm 0.8) \cdot 10^{-3}$	$(1.3 \pm 1.1) \cdot 10^{-3}$	$(1.9 \pm 1.3) \cdot 10^{-3}$
²⁰⁸ Tl	$\leq 1.0 \cdot 10^{-3}$	\leq 5.2·10 ⁻⁴	$\leq 1.3 \cdot 10^{-3}$	$\leq 1.1 \cdot 10^{-3}$
(²³² Th)	[≤2.8·10 ⁻³]			
²¹⁴ Bi (²²⁶ Ra)	$\leq 2.3 \cdot 10^{-3}$	$(5.1 \pm 0.2) \cdot 10^{-2}$	$(1.4 \pm 0.9) \cdot 10^{-3}$	$\leq 1.6 \cdot 10^{-3}$

Таблица 1. Удельная активность радиоактивных примесей в различных образцах исходных материалов и шихте ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄.





СБ29

C35

Рис. 1. Сцинтилляционные элементы СБ28, СБ29 и С35.

	СБ28	СБ29	C35
Высота, мм	25.5	48/51	42
Диаметр большой, мм	49.5	50	44
Диаметр маленький, мм	40.5	42.5	39.5
Масса, г	195.9	390.4	259.0
Длительность отжига, ч	312	240	48
Цвет	голубоватый	голубоватый	бесцветный

Таблица 2. Свойства сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и СЗ5.

Глава 3 посвящена характеризации образцов монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. Целью проведённых работ по характеризации образцов являлось изучение возможности использования сцинтилляционных элементов на основе молибдата кальция из изотопнообогащённого сырья в сцинтилляционной фазе эксперимента AMoRE. Исследуемые характеристики образцов включали в себя: относительный световыход при комнатной и криогенной температурах, абсолютный световыход, прозрачность и удельную активность радиоактивных примесей.

В параграфе 3.1 приведены методика и результаты измерения относительного световыхода образцов монокристаллов ${}^{40}\text{Ca}{}^{100}\text{MoO}_4$ при комнатной температуре. Разработанная установка используется с целью совершенствования технологии выращивания монокристаллов и текущего контроля качества получаемых образцов. На установке проводятся регулярные измерения. Образцы, мерные кубики размерами 1 х 1 х 1 см³, получают из конических частей выращенных буль. Все стороны кубиков отполированы до состояния оптической прозрачности.

Схема установки представлена на Рисунке 2. В ней используется специальный тефлоновый держатель, позволяющий закреплять каждый образец и источник в одном и том же положении относительно друг друга и ФЭУ, что обеспечивает воспроизводимость условий светосбора. При этом мерные кубики находятся в непосредственном контакте с окном ФЭУ ЕТ Enterprises 9124В (с максимальной чувствительностью в зелёной области спектра) с использованием оптической смазки. Держатель с мерным кубиком, радиоактивный источник и ФЭУ помещаются внутрь тёмного ящика. Сигнал с ФЭУ понижается в 10 раз и поступает на вход 14-разрядного АЦП DSP55X1-1 (полоса пропускания 400 МГц) российского производства. Четырёхканальная плата АЦП была специально разработана для данных измерений.

10



Рис. 2. Схема установки для измерения относительного световыхода образцов молибдата кальция при комнатной температуре.

Для обработки данных и построения спектров источников была написана программа в среде ROOT. В измерениях используются альфа-источник ²³⁸Pu ($E_{\alpha} = 5.6$ МэВ) и гаммаисточник ¹³⁷Cs ($E_{\gamma} = 662$ кэВ). Пример спектра источника ¹³⁷Cs приведен на Рисунке 3. Величина относительного световыхода измеряемого образца определяется по положению пика излучения на спектре, относительно положения пика образца сравнения.



Рис. 3. Спектр источника ¹³⁷Cs при измерениях с мерным кубиком ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. По оси абсцисс каналы АЦП.

Параграф 3.2 посвящен измерениям относительного световыхода и постоянной высвечивания ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в температурном диапазоне 8-295 К. Относительный световыход измерялся на образцах размерами 5 х 5 х 1 мм³. В качестве образца сравнения использовался образец кристалла, произведённый из необогащённых материалов на предприятии «КАРАТ» (Львов, Украина). В измерениях использовался гелиевый криостат с оптическим окном для прохождения света сцинтилляции, фотоумножитель 9124A (Electron Tubes) с повышенной чувствительностью в зелёной области спектра и α-источник ²⁴¹Am (E_α = 5.5 МэВ).

Изменение главной компоненты постоянной высвечивания сцинтилляций 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ в зависимости от температуры показано на Рисунке 4а. Эта зависимость соответствует результатам измерений с образцом из природного сырья. На Рисунке 4б показана температурная зависимость световыхода для образца 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ и образца сравнения CaMoO₄. Значения постоянной высвечивания и относительного световыхода при температурах 8 и 295 К представлено в Таблице 3. Как видно из Таблицы 3 и Рисунка 4б световыход монокристаллов 40 Ca¹⁰⁰MoO₄ из изотопно-обогащённого сырья находится на уровне световыхода СаMoO₄.



Рис. 4. Температурная зависимость постоянной высвечивания монокристалла 40 Ca 100 MoO₄ (a) и температурная зависимость световыхода образца 40 Ca 100 MoO₄ и референсного CaMoO₄ (б).

Таблица 3. Сцинтилляционные свойства кристалла 40 Ca 100 MoO₄ при температурах 8 К и 295 К.

Температура, К	295	8
Постоянная высвечивания, мкс	16.5±0.3	345±25
Световыход (относительно	105±39	106±32
референсного СаМоО ₄), %		

В параграфе 3.3 представлены результаты измерения прозрачности двух образцов монокристалла ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ размерами 10 х 10 х 10 мм³, полученных из буль C35 и CБ28. Измерения проводились на спектрофотометре Cary-5000 UV-VIS-NIR в диапазоне длин волн $\lambda = 250$ -3300 нм в трех различных направлениях. Спектр пропускания образца C35 представлен на Рисунке 5. Граница полосы поглощения кристалла находится в районе длины волны 330 нм. В диапазоне 540-570 нм, соответствующему максимуму высвечивания молибдата кальция, прозрачность (пропускание) достигает 78%. Данный результат позволяет использовать молибдат кальция в качестве детектора 0v2 β -распада как в болометрическом, так и в сцинтиляционном режиме.



Рис. 5. Спектр пропускания образца C35 монокристалла ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄.

Параграф 3.4 посвящен измерению абсолютного световыхода монокристалла 40 Ca 100 MoO₄ по методике MCRIM (Monte Carlo refractive index matching). В данной методике Монте-Карло моделирование сочетается с экспериментом, что даёт возможность получить характеристики рассеяния в кристалле, и на основе этого рассчитать эффективность светосбора η .

В измерениях использовался образец ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, размерами 10 x 10 x 10 мм³. Все поверхности образца были обработаны таким образом, что неровность поверхности не превышает 50 нм. Пропускание света на длине волны 540 нм составило 78%. Соответствующее значение прозрачности, с учётом многократного рассеяния, равно T = 96%. Коэффициент поглощения $\alpha_{abs} = 0.039$ см⁻¹.

Установка располагалась в светонепроницаемом ящике, использовался ФЭУ 9124А (ET Enterprise), радиоактивный гамма-источник ²⁴¹Am (59.5 кэВ). Для определения

количества фотонов применялась техника многофотонного счёта. Зазор толщиной 0.05 мм создавался двумя проводами находящимися между кристаллом и окном ФЭУ (рис. 6). Были проведены измерения с пустым зазором ($n_{gap} = n_{air} = 1.00$) и с заполнением зазора оптическим гелем Cargille 0607 ($n_{gap} = n_{gel} = 1.46$).



Рис. 6. Схема установки кристалла и ФЭУ с зазором толщиной 0.05 мм, создаваемым двумя проводами.

Для каждого значения коэффициента преломления зазора в программе моделирования разыгрывалось 100000 лучей, случайно распределённых в объёме кристалла. Результатом моделирования являлась доля энергии достигшей детектора, из полной энергии, выделившейся в сцинтилляторе. Это число соответствовало эффективности светосбора установки **η**. Прохождение лучей моделировалось для различных значений коэффициента рассеяния α_{scat} , с целью дальнейшего сравнения с результатами эксперимента.



Рис. 7. Гистограмма распределений числа фотонов на одну сцинтилляционную вспышку в кристалле ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ от прохождения γ-кванта с энергией 59.5 кэВ для случаев с использованием оптического геля и без.

На Рисунке 7 показаны типичные распределения числа фотонов на одну сцинтилляционную вспышку от прохождения γ -кванта с энергией 59.5 кэВ для двух геометрий – с использованием оптического геля и без. Световыход равен $N_{air} = 14.3 \pm 0.2$ и $N_{gel} = 24.5 \pm 0.4$ фотонов соответственно для воздушного зазора и зазора с оптическим гелем.

Отношение измеренных значений световыхода равно $R_{air/gel} = 0.583 \pm 0.012$. Это отношение не зависит от абсолютного световыхода кристалла и равно отношению эффективностей светосбора для двух схем измерений. В моделировании эффективность светосбора рассчитывалась для значений коэффициента рассеяния α_{scat} от 0.01 до 2 см⁻¹ (рис. 8).



Рис. 8. Результаты Монте-Карло моделирования зависимости эффективности светосбора от коэффициента рассеяния для двух схем измерений (с использованием оптического геля и без) и трёх значений прозрачности кристалла.

Из сравнения результатов моделирования и экспериментальных данных получается значение коэффициента рассеяния равное $\alpha_{scat} = 0.54 \pm 0.10$ см⁻¹. С учётом этого значения из зависимостей на рисунке 8 получена эффективность светосбора 25 % и 43% для схем измерений с воздушным зазором и оптическим гелем между кристаллом и ФЭУ соответственно.

При известной эффективности светосбора, световыход для обеих схем измерений вычисляется по формулам:

$$Y_{1} = \frac{N_{air}}{\varepsilon_{\lambda} \eta_{air} E} = \frac{14.3}{0.127 \times 0.25 \times 59.5} = 7.5 \text{ фотон/кэB}$$
$$Y_{2} = \frac{N_{gel}}{\varepsilon_{\lambda} \eta_{gel} E} = \frac{24.5}{0.127 \times 0.43 \times 59.5} = 7.5 \text{ фотон/кэB}$$

Световыход монокристаллов 40 Ca 100 MoO₄ при комнатной температуре равен 7.5 ± 1.2 фотон/кэВ.

В параграфе 3.5 представлены измерения удельной γ -активности монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ на ППД, выполненные в Баксанской нейтринной обсерватории. Измерялась удельная γ -активность монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ CБ29 (выращен с применением двойной перекристаллизации, параметры см. в Таблице 2) и CБ42 (выращен с применением двойной перекристаллизации). Удельные активности контролируемых радиоактивных изотопов для монокристаллов CБ29 и CБ42 приведены в Таблице 4. В монокристалле CБ42 было обнаружено повышенное содержание изотопа ²²⁶Ra. В тоже время, как видно из таблицы, для CБ29 достигнут предел чувствительности измерений, и определение содержания в нем р/а изотопов (внутреннего фона) требует иных методов измерений.

Таблица 4. Удельная активность радиоактивных изотопов в монокристаллах ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. Уровень достоверности 95%.

Образец,	t _{измерения} , ч	Удельная активность, Бк/кг			
масса		⁴⁰ K	²²⁸ Ac (²³² Th)	²⁰⁸ Tl [²³² Th]*	214 Bi (226 Ra)
СБ29,	953	<1 2 10 ⁻²	-2110^{-3}	$\leq 8.3 \cdot 10^{-4}$	(1) 10 ⁻³
390.4 г	755	$\leq 1.2 \cdot 10^{-2}$	$\leq 3.1 \cdot 10^{\circ}$	$[\leq 2.4 \cdot 10^{-3}]$	≤6.4·10°
СБ42,	803	(1.0.10.2)	- 2 2 1 0 ⁻³	$< 7.8 \cdot 10^{-4}$	$(1, \varepsilon) = 0, 1, 0, 2$
494.9 г	095	$(1.2\pm0.6)\cdot10^{-2}$	$\leq 3.3 \cdot 10^{\circ}$	$[\leq 2.2 \cdot 10^{-3}]$	$(1.6\pm0.2)\cdot10^{-2}$

*Активность ²³²Th определяется в предположении равновесия в ряду из активности ²⁰⁸Tl делением на коэффициент ветвления.

Глава 4 посвящена исследованию внутреннего фона сцинтилляционных элементов на основе монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в подземной лаборатории ЯнгЯнг (Республика Корея). Описанию установки для измерений внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов (СЭ) ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ (рис. 10) посвящён **параграф 4.1.** Сцинтилляционные элементы с использованием оптической смазки соединялись с ФЭУ (диаметр 7.62 см, Electron tube Ltd.) с максимумом чувствительности в зелёной области спектра.

Для подавления внутреннего и внешнего ү-фона СЭ и ФЭУ были окружены активной защитой из 14 кристаллов CsI(Tl), поддерживаемых акриловой решёткой. Основной объём установки был окружен свинцовой защитой толщиной 10 см и размерами

50 см х 130 см. Для подавления фона от ²²²Rn установка продувалась азотом со скоростью подачи газа 4 л/мин.



Рис. 10. Схема экспериментальной установки для измерения внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов в подземной лаборатории ЯнгЯнг. Справа схема соединения ФЭУ с кристаллами CsI(Tl) активной защиты.

Электрическая схема установки представлена на Рисунке 11. Сигналы от СЭ усиливались в 10 раз предусилителем и поступали на вход цифрового АЦП с частотой 400 МГц. Тригтер записи определялся в программе цифрового АЦП. Для записи сигналов требовалось появление как минимум 6 фотоэлектронных пиков в течение 2 мкс, или превышение сигналом порога 25 мВ при длительности более 200 нс. Записываемое временное окно составляло 82 мкс (время высвечивания CaMoO₄ при комнатной температуре составляет ~16.5 мкс). При этом сигнал от CaMoO₄ начинался с момента 6 мкс от начала временного окна.

Одновременно записывались сигналы от кристаллов CsI(Tl) системы активной защиты. Сигналы усиливались в 10 раз тем же предусилителем и оцифровывались с частотой 64 МГц. Записываемое временное окно для системы активной защиты составляло 64 мкс. Данные записывались в деревья в формате пакета для обработки данных ROOT.



Рис. 11. Электрическая схема установки измерения внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов.

В параграфе 4.2 описываются структура данных и методы их первичной обработки. Калибровка энергетической шкалы для сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и С35 проводилась с помощью γ -источника ¹³⁷Cs (E_{γ} = 662 кэВ). Калибровочные спектры приведены в параграфе 4.3 диссертации. Между источником и СЭ находился свинцовый коллиматор. Построенные спектры фитировались составной функцией, включавшей экспоненциальную часть и Гауссову функцию. Полученные значения энергетического разрешения (FWHM) для энергии 662 кэВ следующие: для СЭ СБ28 20.0%, для СЭ СБ29 26.5%, для СЭ СЗ5 14.9%.

Параграф 4.4 работы посвящен методам обработки данных измерений внутреннего фона СЭ СБ28, СБ29 и С35. Для идентификации α- и γ-событий использовался метод отношения части сигнала к полному сигналу (tail to total method). Данный метод использует зависимость формы быстрых и медленных компонент сцинтилляционной вспышки от плотности ионизации dE/dx заряженной частицы. Для применения метода интегрируется весь сцинтилляционный сигнал и некоторый интервал внутри этого сигнала, а затем полученная зависимость одной величины от другой представляется в виде точечной гистограммы (каждая точка соответствует одному сигналу, рис. 12). Как видно из гистограммы, существует множество событий лежащих выше основного распределения событий с линейной зависимостью площади части сигнала от площади всего сигнала. Эти множества сигналов достаточно четко различаются. Поскольку для α-частиц амплитуды сигналов меньше чем для γ-квантов на Рисунке 12 α-события лежат выше основного распределения. В качестве параметра, используемого для разделения событий, можно взять отношение одной площади к другой (рис. 13, левый край распределения соответствует событиям, лежащим выше основного распределения на рис. 13).

Данная техника уже даёт возможный критерий для подавления фона. Сформулировав ограничения на параметр отбора можно исключить α -события из фонового спектра. Однако для полного анализа фона в области энергии 0v2 β -распада ¹⁰⁰Mo, требуется точно идентифицировать события, как связанные с бета-распадом ²¹⁴Bi, так и сигналы с наложением распадов двух изотопов в одном временном окне.

18



Рис. 12. Точечная гистограмма зависимости площади выбранной области в сигнале от полной площади сигнала (в отсчётах АЦП) для СЭ С35.



Рис. 13. Распределение отношения площади в области 6000-10000 бинов (площадь 1) к площади всего сигнала (площадь 2).

Для подавления фона от ²¹⁴Ві из цепочки распада ²³⁸U был использован метод время-амплитудного анализа. В данном случае мы анализировали следующий участок цепочки распада: ²¹⁴Ві (Q_{β} = 3.28 МэВ, $T_{1/2}$ = 19.8 мин) \rightarrow ²¹⁴Po (Q_{α} = 7.83 МэВ, $T_{1/2}$ = 164 мксек) \rightarrow ²¹⁰Pb.

55 % событий распада ²¹⁴Ро попадают во временное окно равное 100-800 мкс после распада ²¹⁴Ві. При этом α -частицы от распада ²¹⁴Ро в γ/β энергетической шкале детектора на основе монокристалла ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ имеют энергию 1.93 МэВ, то есть с учётом энергетического разрешения установки соответствующие события находятся в диапазоне спектра 1.8-2.1 МэВ. Исходя из этого, для каждого события с энергией выше 0.25 МэВ отбирались события с энергией 1.88-2.04 МэВ, если они попадали во временное окно равное 100-800 мкс после предыдущего сигнала. Затем, с помощью процедуры описанной

ранее, проверялось, что отобранное событие вызвано α-распадом. Если данные условия выполнялись, предыдущее событие идентифицировалось как распад ²¹⁴Bi. Согласно данным Монте-Карло моделирования таким образом можно отобрать до 85% распадов ²¹⁴Bi.

В результате применения описанной процедуры, при анализе данных внутреннего фона кристалла C35, набранных в течение 70 дней, было получено значение удельной активности ²¹⁴Po равное 1.74 мБк/кг. С учётом того, что использованное при анализе временное окно содержит только 55% событий от распада ²¹⁰Po, и эффективность регистрации составляет 85%, верхний предел удельной активности ²¹⁴Bi, равен 3.72 мБк/кг.

Такая же процедура использовалась для того, чтобы оценить уровень содержания изотопа ²⁰⁸Tl из цепочки распада ²³²Th, который так же вносит вклад в фон в энергетической области $0v2\beta$ -распада изотопа ¹⁰⁰Mo. Для этого анализировался следующий α - α участок цепочки распада: ²²⁰Rn (Q_{α} = 6.41 MэB, T_{1/2} = 55.6 c) \rightarrow ²¹⁶Po (Q_{α} = 6.91 MэB, T_{1/2} = 145 мc) \rightarrow ²¹²Pb.

Энергия α -частиц в γ/β энергетической шкале равна 1.5 МэВ для распада ²²⁰Rn и 1.6 МэВ для распада ²¹⁶Po. С учётом энергетического разрешения установки, в качестве триггера использовались события в диапазоне 1.28-1.68 МэВ. Затем отбирались события в том же энергетическом диапазоне во временном окне, равном 26-1450 мс после предыдущего сигнала, и проверялось, что оба сигнала связаны с α -частицами. Если данные условия выполнялись, события идентифицировались как распад ²²⁰Rn \rightarrow ²¹⁶Po. Полученное значение удельной активности ²¹⁶Po составило 0.26 мБк/кг, что соответствует удельной активности ²⁰⁸Tl равной 0.094 мБк/кг (поскольку в цепочке распада ²³²Th только 36% распадов изотопа ²¹²Bi идёт по α -каналу с рождением ²⁰⁸Tl).

На Рисунке 14 редставлены распределения событий распадов 214 Po, 216 Po, 220 Rn и 214 Bi на фоновом спектре СЭ СЗ5. Пик в области 1.13 МэВ связан с распадом изотопа 210 Po, дочернего для изотопа 210 Pb из цепочки 238 U.

Аналогично анализировались данные фоновых измерений СЭ СБ28. Получены значения удельной активности ²¹⁴Ро и ²¹⁶Ро равные соответственно 0.08 и 0.07 мБк/кг. С учётом эффективности процедуры отбора, верхний предел на удельную активность ²¹⁴Ві в СЭ СБ28 составляет 0.17 мБк/кг.

20



Рис. 14. Фоновый спектр СЭ СЗ5, измеренный в течение 70 дней. Разовым цветом показаны события распада ²¹⁴Ві.

Если время между последовательными распадами двух изотопов из одной цепочки распада оказывается меньше длительности записываемого временного окна (82 мкс), то сигналы от разных распадов накладываются друг на друга и записываются совместно. Полная энергия подобного события может находиться в области энергии $0v2\beta$ -распада, повышая уровень фона. Для решения этой проблемы можно использовать метод отношения части к полному сигналу, описанный выше. В этом случае события с наложением будут выпадать из линейной зависимости площади выбранной области в сигнале от полной площади сигнала (рис. 12). Используя указанный выше критерий удаётся подавить не только фон от α -распада, но также и сигналы с наложениями. Применение этого метода для СЭ С35 позволило снизить количество фоновых событий в энергетической области $0v2\beta$ -распада изотопа ¹⁰⁰Мо (2928-кэВ < *E* < 3140-кэВ) на 60.5 %.

Второй использованный метод анализа формы импульса основан на отборе событий по среднему времени высвечивания кристалла. Преимуществом этого подхода является возможность идентифицировать наложения и отделить их от событий α-распада.

Сцинтилляционный импульс кристалла молибдата кальция может быть описан следующей функцией:

$$f(t) = \sum A_i (e^{-t/\tau_i} - e^{-t/\tau_0}) / (\tau_i - \tau_0), t > 0$$
(1)

где A_i – амплитуды нескольких компонент высвечивания кристалла, τ_i - время высвечивания каждой компоненты, τ_0 - константа интегрирования электроники. Для дальнейшего анализа представим данную функцию в виде:

$$f_0(t) = A \mathcal{G}(t) \cdot (1 - e^{-t\lambda_r}) \cdot e^{-t\lambda_d}$$
⁽²⁾

где $\mathcal{G}(t)$ - функция Хевисайда, λ_r и λ_d – константы обратные времени нарастанию и времени спада сигнала.

Рассмотрим два сигнала с разницей во времени ∆t < 82 мкс между ними. Первый сигнал описывается формулой (2), а второй, смещённый сигнал, может быть описан функцией:

$$f_1(t) = \varepsilon \cdot f_0(t - \Delta t), \tag{3}$$

где ε - отношение амплитуд (энергий) первого и второго сигнала E₁/E₀.

Энергии сигналов равны соответственно:

$$E_0 = \int_0^\infty f_0(t) dt \tag{4}$$

$$E_1 = \mathcal{E}E_0 \tag{5}$$

Общий сигнал с наложением от двух распадов описывается суммой функций (2) и (3), и равен:

$$\mathbf{f}(\mathbf{t}) = \mathbf{f}_0(\mathbf{t}) + \mathbf{\epsilon} \cdot \mathbf{f}_0(\mathbf{t} - \Delta \mathbf{t}) \tag{6}$$

Отсюда можно получить, что разница между средним временем высвечивания нормального сигнала и сигнала с наложением равна:

$$\langle t_{01} \rangle = \langle t_0 \rangle + \frac{\varepsilon \Delta t}{1 + \varepsilon}$$
 (7)

Смещение среднего времени высвечивания для сигналов с наложением составляет $\frac{\epsilon \Delta t}{1+\epsilon}$.

На практике среднее время высвечивания сцинтилляционного сигнала вычислялось по формуле:

$$\langle t \rangle = \sum E_n \cdot n / E, \tag{12}$$

где *E_n* энергия одного бина на гистограмме сигнала, *n* номер бина от начала сигнала и *E* полная энергия сигнала. Данный параметр отличается для сигналов разной природы и так же может быть использован для идентификации событий α и β-распадов.

Зависимость полной энергии от среднего времени высвечивания для СЭ С35 показана на Рисунке 15. Цветовой градиент определяется плотностью точек в данной области гистограммы (построено с помощью функции ROOT). Эллиптические круги на гистограмме формируются событиями от α -распада изотопов ²¹⁰Ро и ²¹⁴Ро. Как можно заметить эти эллиптические сгущения точек располагаются в областях энергии (по вертикальной оси) соответствующих положению пиков от изотопов ²¹⁰Ро и ²¹⁴Ро на спектре (рис. 14). В то же время центры эллиптических сгущений смещены влево по оси времени высвечивания относительно центра основного распределения точек, которое состоит из γ -событий.



Рис. 15. Зависимость энергии сигнала (эВ) от среднего времени высвечивания для кристалла СЗ5. Цветовой градиент определяется плотностью точек в данной области гистограммы.

В то же время сигналы с наложением должны иметь более длительное время высвечивания и, следовательно, располагаться правее среднего $\beta(\gamma)$ -времени (рис. 16). Для отбора таких событий край основного распределения событий фитировался гиперболой, с использованием стандартной функции ROOT. Стоит отметить, что большинство событий справа от гиперболы лежат выше уровня энергии распада ²¹⁴Po (1930 кэВ в γ/β шкале, красная черта на рис. 16а), а форма правого края области этих точек повторяет гиперболическую форму края основного распределения. Это также свидетельствует о том, что найденные события являются сигналами от наложения двух распадов.

Применение этого метода для СЭ СЗ5 позволило снизить количество фоновых событий в энергетической области $0v2\beta$ -распада изотопа ¹⁰⁰Мо на 64.2 % (по сравнению с 60.5 %, полученными с помощью метода отношения части к полному сигналу). Для СЭ СБ29, с низким удельной активностью примесей, разницы в результатах применениях обоих методов не было. Число фоновых событий было снижено на 18.8 %.

Следует отметить, что данный метод может быть использован для разделения не только сигналов, получающихся от двух последовательных распадов из одной цепочки, но и для подавления фона от наложений между событиями двунейтринной моды 2β-распада.





Рис. 16. Зависимость энергии сигнала от среднего времени высвечивания для кристаллов С35 (а) и СБ29 (б) с гиперболическим фитированием.

В параграфе 4.5 представлен анализ индекса фона СЭ СЗ5 и СБ29, и чувствительности $0v2\beta$ эксперимента. Для анализа индекса фона использовались данные за 50 дней измерений внутреннего фона сцинтилляционного элемента СЗ5, и за 90 дней измерений со сцинтилляционным элементом СБ29. Фоновый спектр СЭ СБ29 представлен на Рисунке 17.



Рис. 17. Энергетический спектр СЭ СБ29 после 90 дней измерений.

С учётом энергетического разрешения область энергии $0v2\beta$ -распада изотопа ¹⁰⁰Мо для СЭ СЗ5 - (2928-кэВ < E < 3140-кэВ), а для СБ29 - (2846-кэВ < E < 3222-кэВ). Применение методов анализа позволило идентифицировать и исключить из этой области ряд событий связанных, как с распадом изотопа ²¹⁴Ві, так и с наложениями сигналов от двух последовательных распадов в цепочке. На Рисунке 18 представлены распределения событий оставшихся после данного отбора. Эти результаты позволяют получить значение индекса фона, которое равно 3.3 событий кэВ⁻¹ кг⁻¹ год⁻¹ (90% у. д.) для СЭ СЗ5, и 0.7 событий кэВ⁻¹ кг⁻¹ год⁻¹ (90% у. д.) для СЭ СБ29.

Также можно оценить чувствительность регистрации 0v2β-распада в наших измерениях. Для этого используем следующую формулу, дающую нижний предел значения периода полураспада 0v2β- процесса:

$$\lim T_{1/2} = \ln 2 \cdot \varepsilon \cdot N \cdot t / \lim S, \tag{13}$$

где ε – эффективность регистрации, N – число ядер ¹⁰⁰Мо, t – время эксперимента, lim S – максимальное число событий 0v2 β -распада, которое может быть выделено при данной доверительной вероятности.

Эффективность регистрации, равная ~80 %, была получена с помощью моделирования в программном пакете Geant4; lim S можно оценить как квадратный корень из числа фоновых событий в энергетической области 0v2β-распада ¹⁰⁰Мо, умноженный на параметр 1.6, соответствующий доверительной вероятности 90 %.



Рис. 18. Фоновый спектр в области энергии $0v2\beta$ -распада изотопа ¹⁰⁰Мо для СЭ С35 (а, 50 дней измерений) и СБ29 (б, 90 дней измерений) с исключением наложений и событий распада ²¹⁴Ві.

Полученная чувствительность измерений 0v2 β -распада с помощью СЭ СБ29 в течение 90 дней составляет $T_{1/2} > 1.8 \cdot 10^{22}$ лет с доверительным интервалом 90 %. Аналогично для измерений в течение 50 дней с СЭ СЗ5 новое значение чувствительности составило $T_{1/2} > 6.8 \cdot 10^{21}$ лет (по сравнению со значением $4.0 \cdot 10^{21}$ лет, рассчитанным без исключения событий с наложениями нескольких распадов).

Для эксперимента в сцинтилляционном режиме с 5 кг 40 Ca 100 MoO₄ и 5 годами измерений нижний предел на период полураспада изотопа 100 Mo для 0v2β-процесса составил бы 2.9·10²³ лет (90 % у.д.) при условии, что индекс фона детектора примерно равен фона кристалла CБ29.

В параграфе 4.6 на основе полученных спектров рассчитано α/β отношение (коэффициент тушения сцинтилляции при прохождении электронов и α-частиц,

«Quenching factor»). Определяется как отношение световыхода при прохождении αчастицы к световыходу при прохождении β-частицы с той же энергией.

Электрон/гамма-эквивалентной шкалой энергии называется шкала, полученная при калибровке сцинтилляционного детектора с помощью γ-источника. Если облучать детектор α-источником с кинетической энергией α-частиц E_Q, то коэффициент тушения сцинтилляции может быть вычислен как отношение E_{ee} – энергии α-частицы в электрон-эквивалентной шкале к реальной энергии частицы E_Q:

$$QF = E_{ee}/E_O \tag{14}$$

Измерение α/β отношения с внешним источником ²⁴¹Am (5.64 МэВ) ранее проводилось с помощью образца 1x1x1 см³ кристалла C35. Полученное значение α/β отношения составило 0.2. Однако в измерениях присутствовала систематическая ошибка, связанная с разницей в геометрии светосбора при облучении α - и γ -источниками, а также наличием воздушного зазора между источником и кристаллом, особенностями обработки поверхности образца и т.д. Более точно α/β отношение было получено на основе данных измерений внутреннего фона кристалла. Кроме того, поскольку QF зависит от энергии, были использованы данные для нескольких α -частиц с разной энергией.

Для расчета использовались данные измерения внутреннего фона СЭ С35 (рис. 14) в которых были выделены события распада изотопов ²¹⁰Po, ²²⁰Rn, ²¹⁶Po и ²¹⁴Po. Значение QF даёт отношение энергии этих изотопов в электрон-эквивалентной шкале к их реальной энергии E₀. Результаты вычисления представлены в Таблице 5 и на Рисунке 19.

Изотоп	E _Q , МэВ	α/β отношение
²¹⁰ Po	5.41	0.21
²²⁰ Rn	6.41	0.22
²¹⁶ Po	6.91	0.23
²¹⁴ Po	7.83	0.25

Таблица 5. α/β отношение, полученное на основе измерений внутреннего фона СЭ С35 для разных изотопов.



Рис. 19. α/β отношение, полученное на основе измерений внутреннего фона СЭ С35 для разных изотопов.

Заключение

Основные результаты, полученные в диссертации следующие:

• Разработана и создана установка для измерения относительного световыхода образцов монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. На установке проводятся регулярные измерения световыхода образцов, поставляемых с завода-изготовителя ОАО «Фомос-Материалс».

• Создано программное обеспечение для обработки данных, полученных на установке по измерению относительного световыхода.

• Разработана и осуществлена на предприятиях $\Phi \Gamma Y \Pi$ «Комбинат «Электрохимприбор» и ЗАО Неохим программа глубокой очистки исходного компонента – изотопно-обогащенных материалов на основе изотопа ⁴⁰Ca (⁴⁰CaCO₃ и ⁴⁰Ca(HCOO)₂) от опасных радиоактивных примесей ²³²Th, ²³⁸U и ²²⁶Ra.

• Впервые получены сцинтилляционные элементы на основе монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ для создания детектора коллаборации AMoRE.

• На низкофоновой установке в подземной лаборатории ЯнгЯнг проведены измерения удельной активности сцинтилляционных элементов на основе монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄

• Разработана методика анализа данных измерений с сцинтилляционными элементами на установке лаборатории ЯнгЯнг. Применены подходы, позволяющие улучшить идентификацию фоновых событий и, таким образом, снизить индекс фона установки.

• Получены следующие физические результаты:

Измерены относительный световыход и время высвечивания образца
 ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в диапазоне температур от комнатной (295 К) до криогенной (8 К).

 Измерены показатели ослабления (прозрачность) образцов монокристаллов
 ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. Наилучшее значение показателя ослабления образца C35 для длин волн максимума высвечивания молибдата кальция составило 0.01 см⁻¹.

3) Измерен абсолютный световыход монокристаллов 40 Ca 100 MoO₄ при комнатной температуре, составивший (7.5 ± 1.2) фотон/кэВ.

4) На основе анализа спектра внутреннего фона сцинтилляционных элементов получено α/β отношение монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, составившее ~ 0.23.

5) Измерена удельная гамма-активность исходных изотопнообогащенных материалов ⁴⁰CaCO₃ и ¹⁰⁰MoO₃ (удельная активность ²²⁶Ra и его дочернего изотопа ²¹⁴Bi (8.1 ± 1.2) мБк/кг и \leq 2.3 мБк/кг соответственно), шихты ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ и монокристаллов молибдата кальция ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ (см. Таблицу 4).

6) Измерено содержание примесей в исходных изотопнообогащенных материалах 40 CaCO₃ и 100 MoO₃ (концентрация 238 U и 232 Th не превышает 0.2×10^{-7} и 0.7×10^{-7} мас.%), шихте 40 Ca 100 MoO₄ и монокристаллах молибдата кальция 40 Ca 100 MoO₄ с помощью атомно-эмиссионного и масс-спектрального анализа на основе индукционно-связанной плазмы. Получены данные по результатам глубокой очистки исходных компонентов и выращенных кристаллов от радиоактивного загрязнения.

7) Получены значения удельной активности изотопов ²²⁸Th и ²²⁶Ra (0.07 и 0.17 мБк/кг соответственно) в сцинтилляционных элементах СБ29 и C35 на основе монокристаллов ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, измеренные в активном (сцинтилляционном) режиме.

8) На основании применения нескольких методов анализа данных получены значения индекса фона низкофоновой установки со сцинтилляционными элементами C35 и CБ29 (3.3 и 0.7 событий кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹ соответственно) в энергетической области двойного безнейтринного бета-распада изотопа ¹⁰⁰Mo. В случае использования сцинтилляционных элементов, аналогичных СБ29, в количестве 5 кг в сцинтилляционном режиме в течение 5 лет измерений можно достичь предела на время жизни 0v2β-распада изотопа ¹⁰⁰Mo T_{1/2} \geq 2.9·10²³ лет (90 % у.д.).

29

Публикации автора по теме диссертации

- И.Р.Барабанов и другие, Содержание радиоактивных изотопов в исходных материалах и в готовом сцинтилляционном кристалле CaMoO₄ по данным подземного низкофонового полупроводникового спектрометра. Препринт ИЯИ РАН №1237/2009.
- V.V. Alenkov *et al.*, Growth and characterization of isotopically enriched ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ single crystals for rare event search experiments, Cryst. Res. Technol. 46, 1223 (2011).
- S.J. Lee *et al.*, The development of a cryogenic detector with CaMoO₄ crystals for neutrinoless double beta decay search, Astroparticle Physics 34, 732 (2011).
- H. Bhang *et al.*, AMoRE experiment: a search for neutrinoless double beta decay of ¹⁰⁰Mo isotope with ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ cryogenic scintillation detector, Journal of Physics: Conference Series **375**, 042023 (2012).
- 5) Н.Д. Ханбеков, AMoRE: коллаборация для поиска безнейтринного двойного бетараспада изотопа ¹⁰⁰Mo с помощью ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ в качестве криогенного сцинтилляционного детектора, Ядерная физика 76, № 9 с. 1 (2013).
- J. H. So *et al.*, Scintillation Properties and Internal Background Study of ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ Crystal Scintillators for Neutrino-Less Double Beta Decay Search, IEEE Trans. Nucl. Sci. 59, 2214 (2012).
- 7) V. Alenkov *et al.*, Application of the Monte-Carlo refractive index matching (MCRIM) technique to the determination of the absolute light yield of a calcium molybdate scintillator, JINST 8, P06002 (2013).
- 8) В.В. Аленков и другие, ГЛУБОКАЯ ОЧИСТКА ИЗОТОПНО-ОБОГАЩЁННЫХ МАТЕРИАЛОВ И СИНТЕЗ ШИХТЫ ДЛЯ ВЫРАЩИВАНИЯ МОНОКРИСТАЛЛОВ МОЛИБДАТА КАЛЬЦИЯ ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄, Неорганические материалы 49, 1324 (2013).
- 9) N.D. Khanbekov *et al.*, DATA ANALYSIS OF THE INTERNAL BACKGROUND MEASUREMENTS OF ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄ SCINTILLATION CRYSTALS, Nuclear Physics and Atomic Energy 14, 199 (2013).