

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
ИНСТИТУТ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ФИЗИКИ

На правах рукописи
УДК 539.165; 539.1.074.3

Ханбеков Никита Дмитриевич

**ИЗУЧЕНИЕ СВОЙСТВ МОНОКРИСТАЛЛОВ $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$
И ИЗГОТОВЛЕННЫХ НА ИХ ОСНОВЕ
СЦИНТИЛЯЦИОННЫХ ЭЛЕМЕНТОВ КРИОГЕННОГО
ДЕТЕКТОРА ДЛЯ ПОИСКА БЕЗНЕЙТРИННОГО ДВОЙНОГО
БЕТА-РАСПАДА ИЗОТОПА ^{100}Mo**

(01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики)

Диссертация на соискание
учёной степени кандидата
физико-математических наук

Научный руководитель
кандидат физико-математических наук
старший научный сотрудник НИЦ «КИ» ФГБУ «ГНЦ РФ ИТЭФ»
В.Н. Корноухов

Москва 2014 год

Оглавление

| | |
|--|-----------|
| Введение..... | 5 |
| Глава 1. Безнейтринный двойной бета распад..... | 12 |
| 1.1 Краткая история исследований $0\nu2\beta$ -распада..... | 12 |
| 1.2 Теоретические основания поисков $0\nu2\beta$ -распада..... | 14 |
| 1.2.1 Особенности процесса и его вероятность..... | 15 |
| 1.2.2 Иерархия масс нейтрино..... | 18 |
| 1.2.3 Чувствительность эксперимента по поиску $0\nu2\beta$ -распада..... | 21 |
| 1.3 Экспериментальные поиски двойного бета-распада..... | 23 |
| 1.3.1 Результаты поисков $2\nu2\beta$ -моды..... | 23 |
| 1.3.2 Современный статус поисков $0\nu2\beta$ -распада..... | 24 |
| 1.3.3 Действующие и планируемые эксперименты по поиску $0\nu2\beta$ -распада..... | 28 |
| 1.4 ^{100}Mo как рабочий изотоп для эксперимента по поиску $0\nu2\beta$ -распада..... | 34 |
| Глава 2. Монокристаллы $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для эксперимента по поиску $0\nu2\beta$-распада изотопа ^{100}Mo..... | 37 |
| 2.1 Свойства сцинтилляционных монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и преимущества их использования в эксперименте по поиску $0\nu2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo | 37 |
| 2.2 Механизм сцинтилляции в кристаллах CaMoO_4 | 38 |
| 2.3 AMoRE – эксперимент по поиску $0\nu2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo с криогенным детектором на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 43 |
| 2.3.1 Сцинтилляционный болометр..... | 43 |
| 2.3.2 Детектор AMoRe..... | 45 |
| 2.4 Фон в эксперименте по поиску $0\nu2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo | 47 |
| 2.4.1 Фон от естественных изотопов U/Th рядов..... | 48 |
| 2.4.2 Фон от $2\nu2\beta$ -распада изотопов ^{48}Ca и ^{100}Mo | 50 |
| 2.4.3 Фон от нейтронов, космических мюонов и космогенных изотопов...51 | 51 |

| | |
|--|-----------|
| 2.5 Производство и очистка исходных компонент и шихты для роста монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 53 |
| 2.5.1 Удаляемые изотопы и контроль их содержания..... | 53 |
| 2.5.2 Производство изотопов ^{100}Mo и ^{40}Ca | 54 |
| 2.5.3 Глубокая очистка соединений кальция CaCO_3 и $\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ | 57 |
| 2.5.4 Доочистка исходных компонент и синтез шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 58 |
| 2.6 Процесс производства монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и сцинтилляционных элементов на их основе..... | 60 |
| Глава 3. Характеризация образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$..... | 64 |
| 3.1 Измерения относительного световыхода образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ при комнатной температуре..... | 64 |
| 3.2 Измерение относительного световыхода $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в температурном диапазоне 8-295 К..... | 70 |
| 3.3 Измерение показателя ослабления (прозрачности) монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 72 |
| 3.4 Абсолютный световыход монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 74 |
| 3.4.1 Методика измерений..... | 74 |
| 3.4.2 Измерения и моделирование..... | 76 |
| 3.4.3 Определение абсолютного световыхода $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ | 79 |
| 3.4.4 Сравнение с другими измерениями..... | 82 |
| 3.5 Измерение удельной гамма-активности монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ на полупроводниковом детекторе..... | 83 |
| Глава 4. Исследование внутреннего фона сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и С35..... | 89 |
| 4.1 Установка для измерений внутреннего фона сцинтилляционных элементов в подземной лаборатории ЯнгЯнг..... | 89 |
| 4.2 Структура данных и их первичная обработка..... | 91 |
| 4.2.1 Сигналы от СЭ..... | 91 |
| 4.2.2 Некорректно записанные сигналы..... | 93 |
| 4.2.3 Сигналы кристаллов CsI..... | 95 |

| | |
|--|------------|
| 4.3 Калибровочные измерения СЭ..... | 96 |
| 4.4 Методы обработки данных измерений внутреннего фона СЭ СБ28, СБ29 и С35..... | 98 |
| 4.4.1 Альфа-бета разделение..... | 98 |
| 4.4.2 Время-амплитудный анализ..... | 101 |
| 4.4.3 Отбор сигналов с наложениями. | 103 |
| 4.5 Индекс фона СЭ С35 и СБ29, и чувствительность $0\nu 2\beta$ эксперимента... | 109 |
| 4.6 α/β отношение..... | 111 |
| Заключение..... | 114 |
| Литература..... | 117 |

Введение

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 необходимый шаг в этом направлении состоит в определении эффективной массы частицы, что может быть сделано в случае открытия безнейтринного двойного бета-распада. Кроме того, обнаружение данного процесса позволило бы установить, является ли нейтрино дираковской или майорановской частицей.

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 ^{100}Mo с использованием в качестве материала детектора сцинтилляционных монокристаллов молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, произведённых из изотопно-обогащённых материалов.

Выбор изотопа ^{100}Mo 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 $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, 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 $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ актуальной задачей в рамках подготовки полномасштабного эксперимента по поиску безнейтринного двойного бета-распада.

Степень научной разработанности темы

Первое сообщение об исследованиях монокристаллов молибдата кальция для использования в сцинтилляционном детекторе двойного бета-распада изотопа ^{100}Mo прозвучало на конференции «New Views in Particle Physics (VIETNAM'2004)» и было опубликовано в трудах конференции¹. Затем, в 2005 году, результаты изучения сцинтилляционных свойств образцов CaMoO_4 (и пути их улучшения) были представлены в статье S. Belogurov *et al.* « CaMoO_4 scintillation crystal for the search of ^{100}Mo 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; характеристика 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 первых больших монокристаллов CaMoO_4 (измерения прозрачности, световыхода, радиоактивной чистоты) была опубликована в работе M.V. Korzhic *et al.*, «Large Volume CaMoO_4 Scintillation Crystals» IEEE Trans. Nucl. Sci. 55, 1473 (2008). В другой работе 2008 года A. N. Annenkov *et al.*, «Development of CaMoO_4 crystal scintillators for a double beta decay experiment with ^{100}Mo » Nucl. Instrum. Methods A 584, 334 (2008) были опубликованы

¹ H. J. Kim *et al.*, «A search for the 0-neutrino double beta decay with the CaMoO_4 scintillator», Proceedings of New Views in Particle Physics (VIETNAM'2004), August 5–11, 2004, p. 449.

результаты по достигнутому энергетическому разрешению в установке с использованием различных образцов кристаллов CaMoO_4 , а также детальное исследование фона (и путей его снижения) в эксперименте с использованием CaMoO_4 . Дальнейшая характеристика имевшихся на тот момент образцов, включавшая измерение абсолютного световыхода молибдата кальция, была проведена в работе Н.Ж. Kim *et al.*, «Neutrino-Less Double Beta Decay Experiment Using $\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ Scintillation Crystals» IEEE Trans. Nucl. Sci. 57, 1475 (2010).

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

В 2009 году была защищена диссертация А. В. Вересниковой «Исследование параметров сцинтилляционных кристаллов CaMoO_4 для поиска двойного бета-распада изотопа ^{100}Mo » Дис. Канд. физ.-мат. наук 01.04.01, Москва, 2009, 102 с. в которой обобщались исследования автора по изучению оптических свойств монокристаллов молибдата кальция, их кинетики высвечивания и абсолютного световыхода, а также приводился расчет индекса фона сцинтилляционного детектора на основе CaMoO_4 .

Однако в работах выполнявшихся вплоть до 2009 года исследовались образцы молибдата кальция, произведённые из необогащённого (природного) сырья. Разработка технологии выращивания молибдата кальция из исходных компонент обогащённых изотопом ^{100}Mo и получение первых образцов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в 2009 году стало отправной точкой данной работы. Дальнейшее совершенствование процесса очистки исходных компонент и шихты, технологии выращивания монокристаллов и подготовка запуска

²V.B. Mikhailik, H. Kraus, D. Wahl, M.S. Mykhaylyk «Studies of electronic excitations in MgMoO_4 , CaMoO_4 and CdMoO_4 crystals using VUV synchrotron radiation» Phys. Status Solidi B Vol. 242, Issue 2, pp. 17-19 (2005); V.B. Mikhailik et al., «Luminescence of CaWO_4 , CaMoO_4 , and ZnWO_4 scintillating crystals under different excitations» Journal of applied physics 97, 083523 (2005); V.B. Mikhailik et al., «Radiative decay of self-trapped excitons on CaMoO_4 and MgMoO_4 crystals» J. Phys.: Condens. Matter 17, 7209-7218 (2005); V.B. Mikhailik 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 CaMoO_4 : Lattice dynamics and synchrotron powder diffraction studies» Physical Review B73, 014104 (2006); V.B. Mikhailik, S. Henry, H. Kraus, I. Solskii «Temperature dependence of CaMoO_4 scintillation properties», Nucl. Instrum. Methods A 583, 350-355 (2008); V.B. Mikhailik and H. Kraus «Performance of scintillation materials at cryogenic temperatures» Phys. Status Solidi B, 1-17 (2010).

полномасштабного эксперимента с молибдатом кальция потребовали проведения новой характеристики имеющихся изотопно-обогащённых кристаллов, а также разработки методов снижения их внутреннего фона.

Цели и задачи работы

- Получение первых монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для эксперимента АМоRE.
- Проведение комплексной характеристики имеющихся образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ 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 $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, поставляемых с завода-изготовителя.
- Разработка методов анализа сцинтилляционных сигналов с целью улучшить идентификацию фоновых событий в эксперименте по поиску безнейтринного двойного бета-распада.

Научная новизна работы

Ранее исследования монокристаллов молибдата кальция проводились только с использованием образцов произведённых из природного сырья. В представляемой диссертации описаны процессы производства (и очистки) исходных обогащённых компонент для роста кристаллов, синтеза шихты и выращивания изотопно-обогащённых монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и впервые дано всестороннее исследование их свойств. =Впервые проведены измерения удельной активности сцинтилляционных элементов 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}Mo . Впервые проведено определение

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

Практическая значимость работы

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

Разработана установка для измерения относительного световыхода образцов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, поставляемых с завода-изготовителя. На установке проводятся регулярные измерения с целью совершенствования процесса изготовления монокристаллов. Также установка будет применена для контроля качества сцинтилляционных элементов, которые будут поставляться для коллаборации AMoRE.

Результаты, выносимые на защиту

- 1) Результаты измерения относительного световыхода и времени высвечивания образца $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в широком диапазоне температур 8-295 К.
- 2) Значение абсолютного световыхода молибдата кальция при комнатной температуре.
- 3) Результаты измерения показателя ослабления (прозрачности) образцов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.
- 4) Результаты измерения α/β отношения для монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.
- 5) Результаты ИСП-МС измерений и измерений на ППД из высокочистого германия содержания примесей в исходных изотопнообогащенных материалах $^{40}\text{CaCO}_3$ и $^{100}\text{MoO}_3$, шихте $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и монокристаллах молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.
- 6) Методика анализа данных, позволяющая улучшить идентификацию фоновых событий, в том числе отобрать сигналы с наложениями от нескольких событий внутри детектора.

- 7) Результаты измерения удельной активности выращенных сцинтилляционных элементов в активном режиме.
- 8) Индекс фона и чувствительность низкофоновой установки со сцинтилляционными элементами на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.

Апробация работы и публикации

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.

Публикации по теме работы с участием автора:

- 1) И.Р.Барабанов и другие, Содержание радиоактивных изотопов в исходных материалах и в готовом сцинтилляционном кристалле CaMoO_4 по данным подземного низкофонового полупроводникового спектрометра. Препринт ИЯИ РАН №1237/2009.
- 2) V.V. Alenkov *et al.*, Growth and characterization of isotopically enriched $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ single crystals for rare event search experiments, *Cryst. Res. Technol.* 46, 1223 (2011).
- 3) S.J. Lee *et al.*, The development of a cryogenic detector with CaMoO_4 crystals for neutrinoless double beta decay search, *Astroparticle Physics* 34, 732 (2011).
- 4) H. Bhang *et al.*, AMoRE experiment: a search for neutrinoless double beta decay of ^{100}Mo isotope with $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ cryogenic scintillation detector, *Journal of Physics: Conference Series* **375**, 042023 (2012).
- 5) Н.Д. Ханбеков, AMoRE: коллаборация для поиска безнейтринного двойного бета-распада изотопа ^{100}Mo с помощью $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в качестве криогенного сцинтилляционного детектора, *Ядерная физика* 76, № 9 с. 1 (2013).

- 6) J. H. So *et al.*, Scintillation Properties and Internal Background Study of $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ 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 $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, Неорганические материалы 49, 1324 (2013).
- 9) N.D. Khanbekov *et al.*, DATA ANALYSIS OF THE INTERNAL BACKGROUND MEASUREMENTS OF $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ SCINTILLATION CRYSTALS, Nuclear Physics and Atomic Energy 14, 199 (2013).

Глава 1. Безнейтринный двойной бета-распад

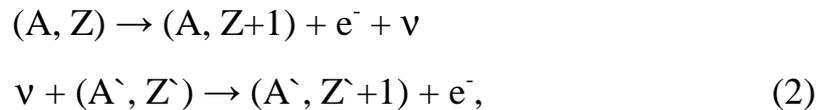
1.1 Краткая история исследований $0\nu 2\beta$ -распада

Теория бета-распада была построена Энрико Ферми в 1933 году [1]. Дальнейшее развитие эта теория получила в работе Марии Гепперт-Майер [2], которой данную тему подсказал Юджин Вигнер. В работе [2] указывалось, что из-за закона сохранения энергии для некоторых чётно-чётных ядер невозможен обычный бета-распад, но разрешён процесс, в котором заряд ядра изменяется на 2 единицы:



Таким образом, был предсказан процесс двойного бета-распада ($2\nu 2\beta$) и вычислен его период полураспада $T_{1/2} \approx 10^{17}$ лет при энергии около 10 МэВ.

В 1937 году Этторе Майорана создал теорию, в которой нейтрино тождественно антинейтрино [3], а Жюлио Рака для экспериментальной проверки теории Майорано предложил следующую цепочку реакций:



которая возможна только в случае если нейтрино является майорановской частицей [4].

В 1939 году на основе теории Майорана Вольфганг Фарри впервые рассмотрел процесс безнейтринного двойного бета-распада ($0\nu 2\beta$) [5]:



Для описания механизма этого процесса Фарри использовал реакции (2) предположив, что в них промежуточные ядра $(A, Z+1) \equiv (A', Z')$ и нейтрино могут быть виртуальными. При этом виртуальное нейтрино поглощается во второй реакции из цепочки (2) так что остаётся новое ядро $(A, Z+2)$ и две бета-частицы.

В 1952 году Генри Примакоф вычислил электрон-электронную угловую корреляцию и электронные энергетические спектры для обоих вариантов

двойного бета распада (безнейтринного и двунейтринного), что дало инструмент для экспериментального обнаружения этих процессов [6].

Изначально считалось, что из-за большего фазового пространства $0\nu 2\beta$ -процесс является более вероятным, чем $2\nu 2\beta$ [7]. Это подтолкнуло проведение первых экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада в 50-е годы, которые, однако, не дали результата и привели к выводу о дираковской природе нейтрино [8, 9]. Кроме того различие нейтрино и антинейтрино было экспериментально подтверждено Реймондом Дэвисом в 1955 году, хотя результат не исключал наличия примеси маорановского нейтрино на уровне 5-10 % [10].

Новый период в истории двойного бета-распада начался после открытия нарушения P-четности, которое было теоретически предсказано Ли и Янгом в 1956 году [11] и экспериментально обнаружено группой Ву в 1957-м [12]. В этом знаменитом эксперименте была установлена асимметрия в угловом распределении вылетающих β -частиц в зависимости от спина распадающихся поляризованных ядер $^{60}\text{Co} \rightarrow ^{60}\text{Ni}$.

В 1957 году была сформулирована теория двухкомпонентного нейтрино (Ландау, Ли, Янг, Салам), согласно которой существуют только левое нейтрино и правое антинейтрино. Это в свою очередь приводит к несохранению чётности, так как инверсия переводит нейтрино в несуществующее состояние [13]. Тогда же эта теория была подтверждена экспериментально [14].

В теории двухкомпонентного нейтрино $0\nu 2\beta$ -распад с помощью цепочки реакций (2) невозможен не только из-за нарушения закона сохранения лептонного числа, но и из-за проблемы спиральности. В первой реакции (2) возникает частица с правой спиральностью (антинейтрино), а во второй реакции участвует частица с левой спиральностью (нейтрино). Таким образом, для появления процесса требуется нарушение $\gamma 5$ -инвариантности слабых токов. Этот вывод из теории на время снизил интерес к экспериментальным поискам $0\nu 2\beta$ -распада [8]. Проблема сохранилась и в Стандартной модели, устанавливающей, что масса нейтрино строго равна нулю.

Однако существование $0\nu 2\beta$ -распада по-прежнему оставалось под вопросом. В 1959 году в работе [15] было показано, что безнейтринная мода двойного бета распада должна быть сильно подавлена относительно двунейтринной. Кроме того, указывалось, что наблюдение двунейтринной моды не является неопровержимым свидетельством дираковской природы нейтрино [16].

Возрождение интереса к поискам $0\nu 2\beta$ -распада в конце 70-х было связано с разработкой Теории Великого Объединения электрослабых и сильных взаимодействий, в некоторых вариантах которой возможно существование примеси правых токов в слабом взаимодействии и, следовательно, испускание/поглощение в одной из вершин процесса (2) нейтрино с «неправильной» поляризацией. Другой механизм $0\nu 2\beta$ -распада может быть связан с наличием массы майорановского нейтрино, что также рассматривается в ТВО и расширениях Стандартной модели на основе суперсимметрии [8, 17]. В случае ненулевой массы нейтрино, частицы, излучаемые в бета-распаде, являются суперпозицией состояний с левой и правой спиральностью. Таким образом, $0\nu 2\beta$ -распад даёт возможность не только экспериментально проверить закон сохранения лептонного числа, но также и подтвердить, что нейтрино является массивной майорановской частицей [18, 19].

Современный интерес к поискам $0\nu 2\beta$ -процесса связан с открытием нейтринных осцилляций, подтвердивших наличие у нейтрино массы (эксперименты SuperKamioKande [20], SNO [21], KamLAND [22], K2K [23], атмосферные нейтрино [24]). Данные эксперименты не позволяют установить значение эффективной массы нейтрино, но это может быть сделано в случае открытия безнейтринного двойного бета-распада [25].

1.2 Теоретические основания поисков $0\nu 2\beta$ -распада

Двунейтринный двойной бета-распад (1) является редким процессом второго порядка по константе слабого взаимодействия с периодом полураспада $\sim 10^{18}$ - 10^{21} лет. Этому процессу подвержены чётно-чётные ядра, для которых

обычный бета-распад энергетически запрещён (существует всего 35 ядер, для которых это условие выполняется). При этом ядро переходит в другое чётно-чётное ядро с тем же массовым числом, но зарядом отличным на две единицы.

Помимо экспериментально обнаруженной двунейтринной моды двойного бета-распада, теоретически рассматривается безнейтринная мода (3). Кроме того в калибровочных теориях предсказывается возможное существование третьей моды – безнейтринного двойного β -распада с майороном ($0\nu\chi 2\beta$).

Вероятность $2\nu 2\beta$ -моды распада пропорциональна 11 степени энергии перехода $Q_{\beta\beta}^{11}$, а вероятность $0\nu 2\beta$ -моды пропорциональна 5 степени энергии перехода $Q_{\beta\beta}^5$. Поэтому особый интерес представляют ядра с энергией $Q_{\beta\beta} > 2$ МэВ.

1.2.1 Особенности процесса и его вероятность. Существует несколько теоретических механизмов, по которым может идти $0\nu 2\beta$ -распад. Они подробно изложены, например в [26], так что не будем здесь на этом останавливаться. Рассмотрим только особенности процесса, наиболее важные с точки зрения эксперимента. Во-первых, лептоны переносят всю выделяющуюся энергию процесса, отдача ядра пренебрежимо мала. Во-вторых, в безнейтринной моде наиболее вероятен распад из состояния с наименьшей энергией со спином 0^+ исходного ядра в состояние с наименьшей энергией и спином 0^+ конечного ядра (рис. 1). Именно на нём сосредоточено внимание действующих и планирующихся экспериментов. Несколько энергетически разрешённых переходов в возбуждённое состояние ядра подавлены из-за малого фазового объёма. Однако существует мотивация для поисков $0\nu 2\beta$ -распада с переходом на возбуждённые состояния дочернего ядра, что связано с возможностью подавления фона за счет регистрации дополнительно вылетающего γ -кванта [27].

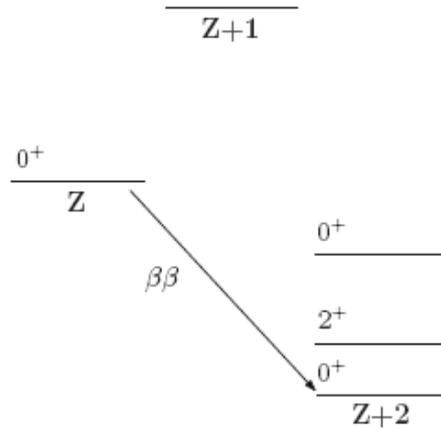


Рис. 1. Схема двойного бета-распада.

В $2\nu 2\beta$ -моду регистрируемая детектором суммарная кинетическая энергия электронов находится в диапазоне между 0 и $Q_{\beta\beta}$, причём пик лежит ниже значения $Q_{\beta\beta}/2$. В тоже время в безнейтринной моде суммарная энергия электронов равна $Q_{\beta\beta}$ и ширина пика определяется только энергетическим разрешением детектора. Таким образом, чем лучше разрешение детектора $0\nu 2\beta$ -распада, тем меньше фон от двунейтринной моды (рис. 2 [28]).

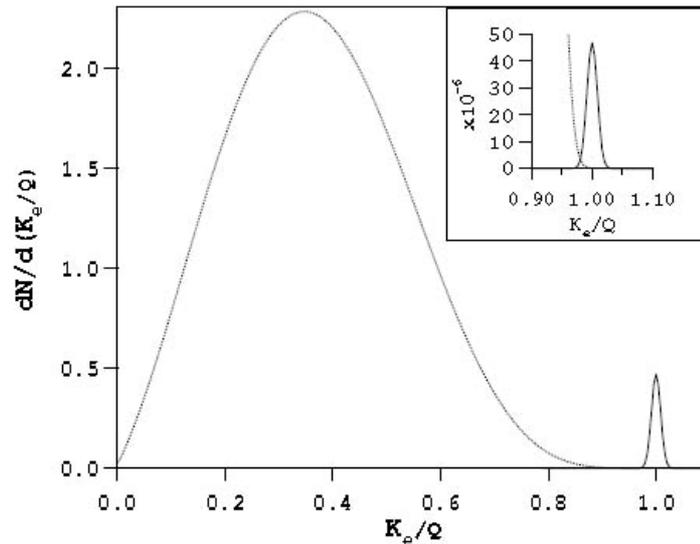


Рис. 2. Вид спектров суммарной энергии электронов, нормированной на энергию распада (K_e/Q), для 2ν и 0ν моды двойного бета-распада при 2 % энергетическом разрешении детектора. Также показано наложение спектров от различных мод при данном разрешении [28].

Наиболее общее выражение для вероятности $0\nu 2\beta$ -распада, индуцированного лёгким нейтрино с массой до нескольких МэВ и наличием примеси правых токов в слабых взаимодействиях, дается формулой [17]:

$$(T_{1/2})^{-1} = C_{mm}(\langle m_\nu \rangle / m_e)^2 + C_{m\lambda} \langle \lambda \rangle (\langle m_\nu \rangle / m_e) + C_{m\eta} \langle \eta \rangle (\langle m_\nu \rangle / m_e) + C_{\lambda\lambda} \langle \lambda \rangle^2 + C_{\eta\eta} \langle \eta \rangle^2 + C_{\lambda\eta} \langle \lambda \rangle \langle \eta \rangle, \quad (4)$$

где $\langle m_\nu \rangle$ - эффективная масса нейтрино, константа $\langle \lambda \rangle$ соответствует слабой связи между правым лептонным током и правым кварковым током, а $\langle \eta \rangle$ эффективной слабой связи между правым лептонным током и левым кварковым током, коэффициенты C_{mn} выражаются через ядерные матричные элементы и интегралы фазовых пространств $0\nu 2\beta$ -распада.

В случае, не учитывающем правые токи ($\langle \lambda \rangle = 0$, $\langle \eta \rangle = 0$), уравнение (4) может быть записано в виде [29]:

$$(T_{1/2})^{-1} = G_{0\nu} (\langle m_\nu \rangle / m_e)^2 |M_F - (g_A/g_V)^2 M_{GT}|^2, \quad (5)$$

где $G_{0\nu}$ - фазовый объём процесса, включающий константу связи, M_{GT} и M_F - соответственно, гамов-теллеровский и фермиевский матричные элементы; константы g_A и g_V - константы связи аксиального и векторного слабого взаимодействий; $|\langle m_\nu \rangle|$ - эффективная майорановская масса нейтрино, вычисляемая следующим образом [26]:

$$|\langle m_\nu \rangle| = \left| |U_{e1}^L|^2 m_1 + |U_{e2}^L|^2 m_2 e^{i\phi_2} + |U_{e3}^L|^2 m_3 e^{i\phi_3} \right| \quad (6)$$

Здесь U_{ei} - элементы матрицы смешивания нейтрино, $e^{i\phi_2}$, $e^{i\phi_3}$ - CP нарушающие майорановские фазы матрицы смешивания (± 1 для CP-сохранения) и m_i - собственные значения нейтринных масс. ϕ_2 - это фаза чистого майорановского нейтрино, а ϕ_3 - суперпозиция фаз дираковского и майорановского типов нейтрино.

Интерпретация экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада на основе выражений (4-6) требует вычисления ядерных матричных элементов, что является непростой и окончательно нерешённой задачей. Существует

несколько теоретических моделей, позволяющих это сделать с той или иной точностью. Обзор этих моделей и рассчитанных по ним ядерных матричных элементов дан в [26].

1.2.2 Иерархия масс нейтрино. Как видно из выражения (5) период полураспада $0\nu 2\beta$ -распада обратно пропорционален квадрату эффективной массы нейтрино. Следовательно, с учётом уравнения (6), оценка вероятности данного процесса непосредственно связана с иерархией собственных нейтринных масс.

Из экспериментов по осцилляциям известны квадраты разностей нейтринных масс для осцилляций солнечных и атмосферных нейтрино:

$$\Delta m_{\text{солн}}^2 = m_2^2 - m_1^2 = (7.65_{-0.20}^{+0.13}) \times 10^{-5} \text{ эВ}^2 \quad [30]; \quad (7)$$

$$\Delta m_{\text{атм}}^2 = |m_3^2 - m_2^2| = (2.43 \pm 0.13) \times 10^{-3} \text{ эВ}^2 \quad [31]. \quad (8)$$

При этом нам неизвестен знак второй разности квадратов и, следовательно, иерархия собственных нейтринных масс. Возможны три варианта такой иерархии: нормальная иерархия $m_1 < m_2 < m_3$, инвертированная иерархия $m_3 < m_1 < m_2$ и квази-вырожденная иерархия при которой все три массы имеют близкие значения $m_1 \simeq m_2 \simeq m_3$ (рис. 3)

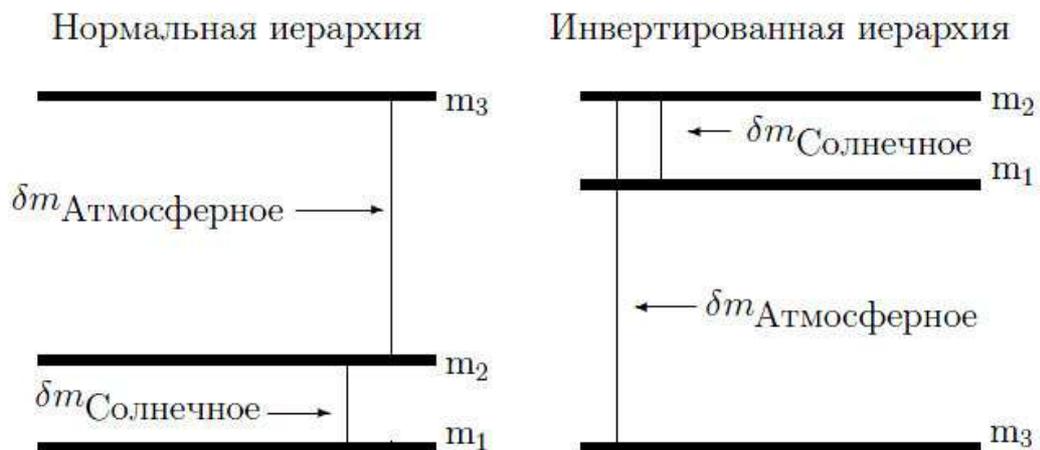


Рис. 3. Нормальная и инвертированная иерархии масс нейтрино.

В случае нормальной иерархии масс $\Delta m_{\text{солн}}^2 = m_2^2 - m_1^2$;
 $\Delta m_{\text{атм}}^2 = m_3^2 - m_1^2$, выразим массы m_2 и m_3 через наименьшую массу m_1

$$m_2 = \sqrt{\Delta m_{\text{солн}}^2 + m_1^2}, \quad m_3 = \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 + m_1^2} \quad (9)$$

Тогда выражение (6) примет вид:

$$|\langle m_\nu \rangle| = |c_{12}^2 c_{13}^2 m_1 + c_{13}^2 s_{12}^2 e^{i\phi_2} \sqrt{\Delta m_{\text{солн}}^2 + m_1^2} + s_{13}^2 e^{i\phi_3} \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 + m_1^2}| \quad (10)$$

где параметры c_{ij} и s_{ij} выражаются через углы смешивания как $c_{ij} = \cos \theta_{ij}$, а $s_{ij} = \sin \theta_{ij}$. Из экспериментов с осцилляциями известны углы θ_{12} и θ_{23} , а также верхний и нижний пределы для небольшого угла θ_{13} [26].

Считая, что $m_1 \ll \sqrt{\Delta m_{\text{солн}}^2}$, $m_2 \simeq \sqrt{\Delta m_{\text{солн}}^2}$ и $m_3 \simeq \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2}$, получаем:

$$|\langle m_\nu \rangle| \simeq |c_{13}^2 s_{12}^2 \sqrt{\Delta m_{\text{солн}}^2} + s_{13}^2 e^{-i\phi_3} \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2}| \leq 4 \cdot 10^{-3} \text{ эВ}. \quad (11)$$

В случае инвертированной иерархии масс $\Delta m_{\text{солн}}^2 = m_2^2 - m_1^2$; $\Delta m_{\text{атм}}^2 = m_2^2 - m_3^2$, выразим массы m_1 и m_2 через наименьшую массу m_3

$$m_2 = \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 + m_3^2}, \quad m_1 = \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 - \Delta m_{\text{солн}}^2 + m_3^2} \quad (12)$$

Тогда выражение (6) имеет вид:

$$|\langle m_\nu \rangle| = s_{13}^2 m_3 + c_{13}^2 s_{12}^2 e^{i\phi_2} \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 + m_3^2} + c_{12}^2 c_{13}^2 e^{i\phi_3} \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 - \Delta m_{\text{солн}}^2 + m_3^2} \quad (13)$$

Упростим полученное выражение, считая $\theta_{13} \equiv 0$ и $\Delta m_{\text{солн}}^2 \ll \Delta m_{\text{атм}}^2$:

$$|\langle m_\nu \rangle| = \sqrt{\Delta m_{\text{атм}}^2 + m_3^2} |c_{12}^2 e^{i\phi_2} + s_{12}^2 e^{i\phi_3}| \quad (14)$$

С численной оценкой $1.5 \cdot 10^{-2} \text{ эВ} \leq |\langle m_\nu \rangle| \leq 5.0 \cdot 10^{-2} \text{ эВ}$ [32].

В случае вырожденной иерархии $m_0 \simeq m_1 \simeq m_2 \simeq m_3$ эффективная масса майорановского нейтрино находится в пределах [26]:

$$m_0 |1 - 2c_{12}^2 c_{13}^2| \leq |\langle m_\nu \rangle| \leq m_0 \quad (15)$$

Численные предсказания для эффективной массы нейтрино в мЭВ для нормальной и инвертированной иерархии даны в Таблице 1 [29].

Таблица 1. Приближённые численные предсказания значений $|\langle m_\nu \rangle|$ (мэВ) для двух иерархий и различных отношений CP-фаз [29].

| Нормальная иерархия | | | | Инвертированная иерархия | | | |
|---------------------|---------------------------|--------------------|---------------------------|------------------------------|---------------------------|------------------------------|---------------------------|
| $e^{i\phi_2} = -1$ | | $e^{i\phi_2} = +1$ | | $e^{i\phi_2} = -e^{i\phi_3}$ | | $e^{i\phi_2} = +e^{i\phi_3}$ | |
| m_1 (eV) | $ \langle m_\nu \rangle $ | m_1 (eV) | $ \langle m_\nu \rangle $ | m_1 (eV) | $ \langle m_\nu \rangle $ | m_1 (eV) | $ \langle m_\nu \rangle $ |
| 0.02 | 10^{+3}_{-5} | 0.02 | 20 ± 4 | 0.00 | 30^{+18}_{-20} | 0.00 | 55 ± 29 |
| 0.04 | 20^{+6}_{-10} | 0.04 | 40 ± 8 | 0.02 | 32^{+18}_{-21} | 0.02 | 59 ± 29 |
| 0.06 | 32^{+7}_{-16} | 0.06 | 61 ± 11 | 0.05 | 40^{+18}_{-25} | 0.05 | 75 ± 29 |
| 0.08 | 41^{+10}_{-21} | 0.08 | 81 ± 16 | 0.075 | 48^{+19}_{-29} | 0.075 | 94 ± 30 |
| 0.10 | 51^{+13}_{-26} | 0.10 | 101 ± 20 | 0.10 | 60^{+19}_{-33} | 0.10 | 116 ± 31 |
| 0.20 | 102^{+26}_{-52} | 0.20 | 200 ± 40 | 0.20 | 106^{+30}_{-55} | | |
| 0.40 | 204^{+52}_{-102} | 0.40 | 400 ± 80 | | | | |

Исходя из анализа различных вариантов иерархии масс нейтрино, можно сделать выводы о необходимой чувствительности экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада для каждой из возможных иерархий. На Рисунке 4 показаны допустимые области поиска эффективной массы нейтрино (эВ) при различных иерархиях в зависимости от наименьшего из собственных значений нейтринных масс (эВ), а также пределы, установленные в уже осуществлённых экспериментах и заявленные для некоторых будущих экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада [26].

Как видно из рисунка нынешние и планируемые эксперименты лежат в области инвертированной иерархии нейтринных масс или выше, в области вырожденной иерархии. В этом случае „идеальный“ эксперимент по поиску $0\nu 2\beta$ -распада должен обладать следующими характеристиками: максимальное подавление фона ($\sim 10^{-3}$ событий/кг в год), высокое энергетическое разрешение ($\sim 3-5\%$), огромная масса материала детектора (500-1000 кг) и высокое содержание в нём рабочего изотопа, эффективность регистрации близкая к 100 %. Однако при нормальной иерархии масс нейтрино, соответствующей значениям эффективной массы нейтрино $\leq 4 \times 10^{-3}$ эВ для регистрации $0\nu 2\beta$ -

распада потребуется уже 50-100 тонн материала и уровень фона $\sim 10^5$ событий/кг в год [26], что пока трудно себе представить. Подробнее о статусе экспериментальных поисков $0\nu 2\beta$ -распада см. параграф 1.3.

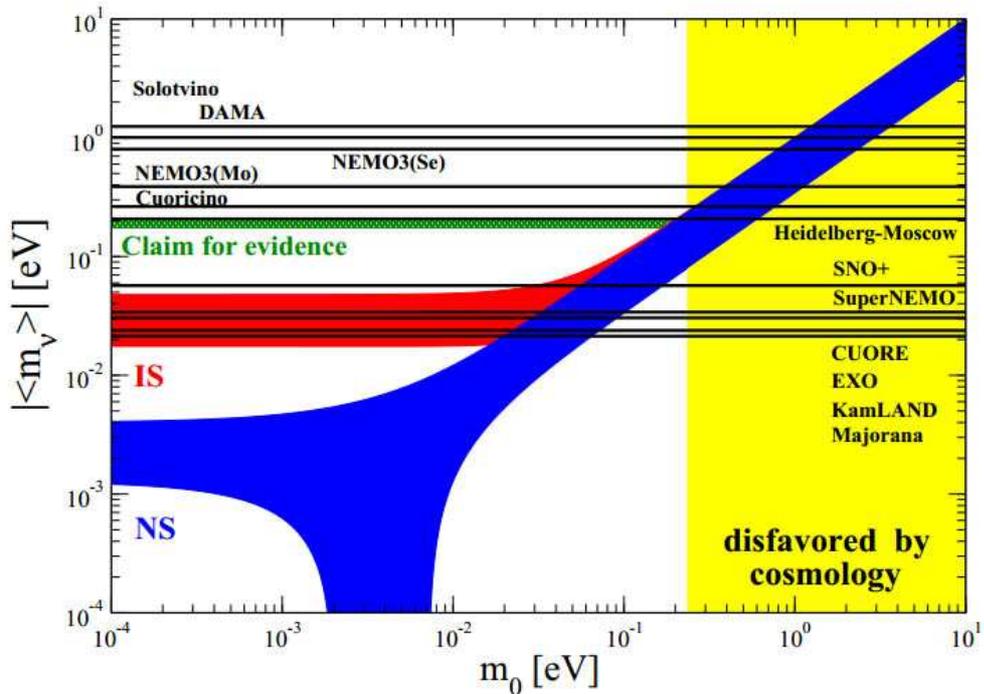


Рис. 4. Возможные значения эффективной майорановской массы нейтрино $\langle m_\nu \rangle$ (эВ) в зависимости от наименьшего из собственных значений нейтринных масс m_0 (эВ). Красным выделены значения, соответствующие инвертированной иерархии нейтринных масс, синим – соответствующие нормальной иерархии. Также показаны пределы на значение эффективной массы нейтрино, установленные в уже осуществлённых экспериментах и заявленные для некоторых будущих экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада [26].

1.2.3 Чувствительность эксперимента по поиску $0\nu 2\beta$ -распада. Основная проблема, ограничивающая чувствительность экспериментов по поиску $0\nu 2\beta$ -распада – внешний и внутренний фон в области энергии искомого процесса. Следуя [29] оценим чувствительность эксперимента в зависимости от уровня фона в интересующей энергетической области, которая определяется энергетическим разрешением детектора (см. п. 1.2.1).

Количество фоновых событий B может быть записано в виде:

$$B = b \cdot M \cdot t \cdot \delta E, \quad (16)$$

где b – индекс фона ($\text{кЭВ}^{-1} \cdot \text{кг}^{-1} \cdot \text{лет}^{-1}$), M масса источника в кг, t время набора данных в эксперименте (годы), δE рассматриваемая энергетическая область (кЭВ). Будем считать, что фон одинаков во всей этой области, не учитывая фон от $2\nu 2\beta$ -распада.

Число событий $0\nu 2\beta$ -распада $C_{\beta\beta}$ выражается через скорость распада $\lambda_{\beta\beta}$ как:

$$C_{\beta\beta} = \lambda_{\beta\beta} N t \varepsilon = \lambda_{\beta\beta} (A_0 \times 10^3 / W) a \varepsilon M t. \quad (17)$$

A_0 здесь это число Авогадро, W молекулярный вес материала источника, a массовая доля рабочего изотопа и ε эффективность регистрации детектора.

Общий критерий регистрации $0\nu 2\beta$ -распада в эксперименте записывается в виде: $C_{\beta\beta} = C_1 \sqrt{B + C_{\beta\beta}}$, где C_1 доверительная вероятность, выраженная в среднеквадратичном отклонении σ Пуассоновского распределения. Полагая, что уровень выделения искомого пика над фоном составляет $C_{\beta\beta}/B \simeq 1$, требуемая величина $C_{\beta\beta} = \sqrt{2} C_1 \sqrt{B}$. Тогда

$$\lambda_{\beta\beta} \cdot (A_0 \times 10^3 / W) \cdot a \cdot \varepsilon \cdot M \cdot t = \sqrt{b \cdot M \cdot t \cdot \delta E}, \quad (18)$$

что даёт следующее выражение для чувствительности эксперимента:

$$T_{1/2}^{0\nu} = \alpha \left(\frac{a \varepsilon}{W} \right) \sqrt{\frac{M t}{b \cdot \delta E}}. \quad (19)$$

Для случая $C_{\beta\beta} \simeq B$ в (19) $\alpha = 7.3 \times 10^{25}$ лет [29]. Также уравнение (19) может быть записано в виде предела на величину периода полураспада $0\nu 2\beta$ -процесса с доверительной вероятностью 90 % следующим образом [33]:

$$T_{1/2}^{0\nu} > \frac{\ln 2}{1.64} \cdot \frac{A_0}{m_A} \cdot \varepsilon \cdot a \cdot \sqrt{\frac{M t}{b \cdot \delta E}}, \quad (20)$$

где m_A – молярная масса вещества источника.

Из уравнения (19) следует важность содержания рабочего изотопа в материале источника, от которого чувствительность эксперимента зависит линейно, в то время как масса материала входит в уравнение в

степени $\frac{1}{2}$. Ещё одним критически важным с точки зрения чувствительности эксперимента параметром является энергетическое разрешение детектора, которое, помимо всего прочего, влияет на уровень фона от $2\nu 2\beta$ моды распада.

1.3 Экспериментальные поиски двойного бета-распада

Существует три вида экспериментов для поиска 2β -распада: лабораторные, геохимические и радиохимические. В геохимических экспериментах измеряется содержание дочерних ядер, накопленных за геологическое время (10^6 - 10^7 лет) в минералах, содержащих $\beta\beta$ -активные элементы. В радиохимических экспериментах регистрируются радиоактивные распады дочерних ядер в искусственно приготовленных образцах. Однако точно определить моду распада можно только по энергетическому и угловому распределению электронов в прямых лабораторных измерениях.

1.3.1 Результаты поисков $2\nu 2\beta$ -моды. Впервые 2β -распад был установлен в геохимическом эксперименте с изотопом ^{130}Te (измерялось содержание дочернего изотопа ^{130}Xe) в 1950 году [34]. Первое наблюдение процесса в лабораторном эксперименте произошло в 1987 году. Тогда $2\nu 2\beta$ -распад изотопа ^{82}Se был обнаружен с помощью время-проекционной камеры [35]. Подробнее об истории экспериментальных поисков двойного бета-распада можно прочитать в обзоре [36].

В настоящий момент зарегистрирован $2\nu 2\beta$ -распад 10 изотопов (^{48}Ca , ^{76}Ge , ^{82}Se , ^{96}Zr , ^{100}Mo , ^{116}Cd , ^{128}Te , ^{130}Te , ^{136}Xe и ^{150}Nd). Кроме того в геохимическом эксперименте обнаружен двойной бета-распад изотопа ^{130}Ba , а в радиохимическом 2β -распад ^{238}U , которые, очевидно, также относятся к $2\nu 2\beta$ -моды. Два результата относятся к переходу на возбуждённые энергетические уровни дочернего ядра ($^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{100}\text{Ru}(0_1^+)$ и $^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{150}\text{Sm}(0_1^+)$). Периоды полураспада для различных ядер представлены в Таблице 2, взятой из [37] и дополненной последними результатами по ^{136}Xe [38].

Таблица 2. Периоды полураспада $2\nu 2\beta$ -распада различных изотопов [37] с дополнением из [38].

| Изотоп | $T_{1/2}^{2\nu}$, лет |
|--|---------------------------------------|
| ^{48}Ca | $4.4_{-0.5}^{+0.6} \times 10^{19}$ |
| ^{76}Ge | $(1.5 \pm 0.1) \times 10^{21}$ (*) |
| ^{82}Se | $(0.92 \pm 0.07) \times 10^{20}$ |
| ^{96}Zr | $(2.3 \pm 0.2) \times 10^{19}$ |
| ^{100}Mo | $(7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$ |
| $^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{100}\text{Ru}(0_1^+)$ | $5.9_{-0.6}^{+0.8} \times 10^{20}$ |
| ^{116}Cd | $(2.8 \pm 0.2) \times 10^{19}$ |
| ^{128}Te | $(1.9 \pm 0.4) \times 10^{24}$ |
| ^{130}Te | $6.8_{-1.1}^{+1.2} \times 10^{20}$ |
| ^{136}Xe | $(2.11 \pm 0.25) \times 10^{21}$ [38] |
| ^{150}Nd | $(8.2 \pm 0.9) \times 10^{18}$ |
| $^{150}\text{Nd} - ^{150}\text{Sm}(0_1^+)$ | $1.33_{-0.26}^{+0.45} \times 10^{20}$ |
| ^{238}U (радиохимический эксперимент) | $(2.0 \pm 0.6) \times 10^{21}$ |
| ^{130}Ba (геохимический эксперимент) | $(2.2 \pm 0.5) \times 10^{21}$ |

(*) Последний результат по ^{76}Ge , не учтённый в [37], получен коллаборацией GERDA: $T_{1/2}^{2\nu} = 1.84_{-0.10}^{+0.14} \times 10^{21}$ [39].

1.3.2 Современный статус поисков $0\nu 2\beta$ -распада.

Heidelberg-Moscow. Эксперимент Heidelberg-Moscow [40] проводился с 1990 по 2003 год. Использовались 5 детекторов из высокочистого изотопно-обогащённого германия (86% содержание изотопа ^{76}Ge ($Q_{\beta\beta} = 2039$ кэВ)) общим весом 10.96 кг (125.5 моль ^{76}Ge). Детекторы находились в медном криостате с медной, свинцовой и полиэтиленовой защитой. Установка располагалась в подземной лаборатории Гран-Сассо (Италия). Полная экспозиция составила 71.7 кг-год, средний уровень счёта в области 2-2.1 МэВ оказался равен 0.17

событий·кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹ (за период 1995-2003 гг.). Энергетическое разрешение FWHM = 3.5 кэВ в области Q_{ββ}, что является лучшим результатом для 0ν2β-экспериментов. Измеренный предел на период полураспада безнейтринной моды составил T_{1/2} > 1.9×10²⁵ лет [41]. Часть коллаборации сделала заявление об обнаружении 0ν2β-распада на уровне T_{1/2} = 2.23×10²⁵ лет [42], однако этот результат был подвергнут активной критике [43] и не является общепризнанным.

IGEX. Другой эксперимент с обогащённым германием (86% изотопа ⁷⁶Ge), IGEX [44], проводился в подземной лаборатории Канфранк (Испания). Использовались 3 германиевых детектора общим весом 6 кг (117 моль ⁷⁶Ge). Энергетическое разрешение составило FWHM = 4 кэВ при энергии 2038.56 кэВ. Достигнутый предел на период полураспада безнейтринной моды был ниже чем в эксперименте Heidelberg-Moscow T_{1/2} > 1.6×10²⁵ лет [44].

Cuoricino. Эксперимент Cuoricino [45] проводился с 2003 по 2008 год. Использовались 62 кристалла TeO₂ полной массой 40.7 кг (11.3 кг рабочего изотопа ¹³⁰Te, Q_{ββ} = 2529 кэВ). Кристаллы были собраны в вертикальный массив из 13 уровней (рис. 5). Измерения проводились в болометрическом режиме при криогенной температуре ≤ 10 мК, что благодаря низкой тепловой ёмкости, позволяло повысить энерговыделение внутри кристалла в пропорции 1 МэВ/мК. Съём сигнала проводился с помощью допированных германиевых термисторов с сопротивлением ~100 МОм, которое зависит от выделившейся энергии как 3 МОм/МэВ. Достигнутое энергетическое разрешение составило 6-10 кэВ при энергии 2.6 МэВ. Полная экспозиция составила 19.75 кг·год, средний уровень счёта в области Q_{ββ} 0.17 событий·кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹, установленный предел на период полураспада 0ν2β-моды T_{1/2} > 2.8×10²⁴ лет [46].

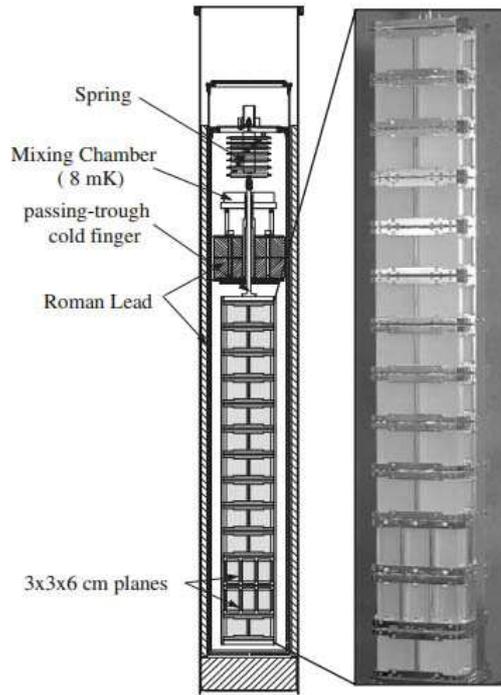


Рис. 5. Схема эксперимента SuoGicino.

NEMO-3. Эксперимент NEMO-3 [47] проводился с 2003 по 2008 год. Изучались 7 различных $\beta\beta$ -изотопов общей массой 10 кг (^{100}Mo , ^{82}Se , ^{48}Ca , ^{96}Zr , ^{116}Cd , ^{130}Te и ^{150}Nd). Источник в виде тонкой фольги располагался в дрейфовой камере с приложенным магнитным полем. Зона дрейфа окружалась пластиковыми сцинтилляторами и низкорadioактивными ФЭУ (энергетическое разрешение для электронов $\text{FWHM} = 15\% / \sqrt{E[\text{МэВ}]}$), что позволяло реконструировать угловое распределение электронов (рис. 6). Однако при этом эффективность регистрации для $0\nu 2\beta$ -моды составляла только $\sim 8\%$. Благодаря пространственной реконструкции событий удалось значительно подавить как внешний так и внутренний α - и γ -фон. Индекс фона в эксперименте составлял $\approx 1.2 \times 10^{-3}$ событий $\cdot \text{кэВ}^{-1} \cdot \text{кг}^{-1} \cdot \text{год}^{-1}$ при энергии 3 МэВ. Для $0\nu 2\beta$ -моды были получены пределы на период полураспада для изотопа ^{100}Mo ($Q_{\beta\beta} = 3034$ кэВ) $T_{1/2} > 1.1 \times 10^{24}$ лет и для изотопа ^{82}Se ($Q_{\beta\beta} = 2995$ кэВ) $T_{1/2} > 3.6 \times 10^{23}$ лет.

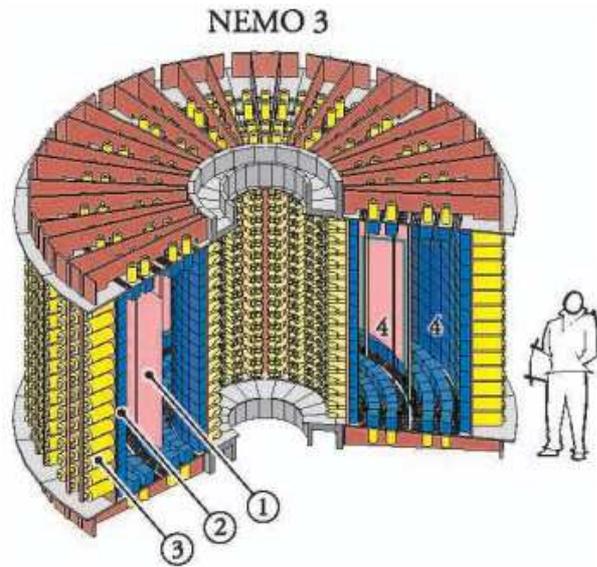


Рис. 6. Схема детектора NEMO-3. 1 – источник в виде тонкой фольги, 2 – пластиковый сцинтиллятор, 3 – низкорadioактивные ФЭУ, 4 – дрейфовая камера.

DAMA. Эксперимент DAMA [48] посвящен поиску тёмной материи в подземной лаборатории Гран Сассо (Италия). Однако данные собранные на установке позволили также установить предел на период полураспада $0\nu 2\beta$ -моды для изотопов ^{136}Xe ($Q_{\beta\beta} = 2467$ кэВ) и ^{134}Xe ($Q_{\beta\beta} = 830$ кэВ). Установка была наполнена газом с содержанием изотопа ^{136}Xe 68.8 % (экспозиция 4.5 кг·год) и изотопа ^{134}Xe 17.1 % (экспозиция 1.1 кг·год). Нижний предел на период полураспада $0\nu 2\beta$ -моды составил $T_{1/2} > 5.8 \times 10^{22}$ лет для изотопа ^{134}Xe и $T_{1/2} > 1.2 \times 10^{24}$ лет для изотопа ^{136}Xe .

Более высокий предел $T_{1/2} > 1.9 \times 10^{25}$ для изотопа ^{136}Xe был недавно достигнут в действующем эксперименте Kamland-Zen (см. п. 1.3.3).

SOLOTVINO. Эксперимент SOLOTVINO [49] проводился в Солотвинской подземной лаборатории с 1988 по 2002 год. В качестве детектора использовались 4 сцинтилляционных кристалла вольфрамата кадмия CdWO_4 , обогащенные изотопом ^{116}Cd ($Q_{\beta\beta} = 2805$ кэВ) до 83%. Общая масса кристаллов составляла 0.33 кг. Уровень фона в области $Q_{\beta\beta}$ составлял 0.04 событий·кэВ $^{-1}$ ·кг $^{-1}$.

$^1\text{год}^{-1}$. Был получен нижний предел на период полураспада $0\nu 2\beta$ -моды изотопа ^{116}Cd , равный $T_{1/2} > 1.7 \times 10^{23}$ лет.

Наилучшие на данный момент пределы на период полураспада $0\nu 2\beta$ -распада для различных изотопов сведены в Таблицу 3.

Таблица 3. Наилучшие пределы на период полураспада $0\nu 2\beta$ -распада для различных изотопов (С.Л. 90 %). Соответствующие пределы на эффективную массу нейтрино рассчитаны по модели QRPA [26].

| Изотоп ($Q_{\beta\beta}$, кэВ) | $T_{1/2}$, лет | $ \langle m_\nu \rangle $, эВ | Эксперимент |
|----------------------------------|-------------------------|--------------------------------|-------------------------|
| ^{76}Ge (2039) | $> 1.9 \times 10^{25}$ | 0.32 | Heidelberg-Moscow |
| | $= 2.23 \times 10^{25}$ | 0.30 | Часть Heidelberg-Moscow |
| | $> 1.6 \times 10^{25}$ | 0.35 | IGEX |
| ^{130}Te (2529) | $> 2.8 \times 10^{24}$ | 0.43 | Cuoricino |
| ^{100}Mo (3034) | $> 1.1 \times 10^{24}$ | 0.73 | NEMO-3 |
| ^{82}Se (2995) | $> 3.6 \times 10^{23}$ | 1.28 | NEMO-3 |
| ^{134}Xe (830) | $> 5.8 \times 10^{22}$ | - | DAMA |
| ^{136}Xe (2467) | $> 1.2 \times 10^{24}$ | - | DAMA |
| | $> 1.9 \times 10^{25}$ | - | Kamland-Zen |
| ^{116}Cd (2805) | $> 1.7 \times 10^{23}$ | 2.16 | SOLOTVINO |

1.3.3 Действующие и планируемые эксперименты по поиску $0\nu 2\beta$ -распада.

GERDA. Эксперимент GERDA [50] является преемником эксперимента Heidelberg-Moscow. В первой фазе GERDA использует германиевые детекторы экспериментов Heidelberg-Moscow и IGEX, а для второй фазы планируется использовать новые. Установка находится в подземной лаборатории Гран Сассо (Италия). Данные набираются с ноября 2011 года. Общий дизайн установки показан на Рисунке 7.

Отличительная особенность схемы эксперимента состоит в том, что детекторы находятся не в вакууме, а в криостате, наполненном сверхчистым жидким аргоном. Аргон используется и как охлаждающее вещество, и как защита установки от внешнего радиоактивного излучения.



Рис. 7. Модель установки GERDA. 1 – массив детекторов, 2 – криостат с жидким аргоном, 3 – медная защита, 4 – водный бак с черенковской системой мюонного вето, 5 – лабораторные комнаты, 6 – запорный механизм.

Первая фаза эксперимента планирует набор данных до достижения экспозиции 15 кг·год с индексом фона 10^{-2} событий·кэВ $^{-1}$ кг $^{-1}$ год $^{-1}$. Во второй фазе планируется достижение экспозиции 100 кг·год с индексом фона 10^{-3} событий·кэВ $^{-1}$ кг $^{-1}$ год $^{-1}$, что соответствует $T_{1/2}^{0\nu} \sim 2 \times 10^{26}$ лет. Также существует проект расширения эксперимента до общей массы детекторов в 1 тонну германия с обогащением изотопом ^{76}Ge 87 %.

В настоящий момент в эксперименте достигнута экспозиция 5 кг·лет и получено уточнённое значение периода полураспада $2\nu 2\beta$ -моды для ^{76}Ge $T_{1/2}^{2\nu} = 1.84_{-0.10}^{+0.14} \times 10^{21}$ [39].

Kamland-Zen. Эксперимент Kamland-Zen [51] базируется в обсерватории Камиока (Япония). Набор данных начался в октябре 2011 года. Схема установки показана на Рисунке 8.

Основная идея эксперимента заключается в использовании смеси ксенона (с изотопным обогащением до 90.93 % ^{136}Xe) и жидкого сцинтиллятора. Жидкость заключена в нейлоновый баллон со стенками толщиной 25 мкм, который, в свою очередь, помещён в центр ещё большего баллона, наполненного жидким сцинтиллятором массой 1000 тонн. Внешний сцинтиллятор одновременно выполняет роли защиты от внешних γ -квантов и детектора излучения от малого баллона.

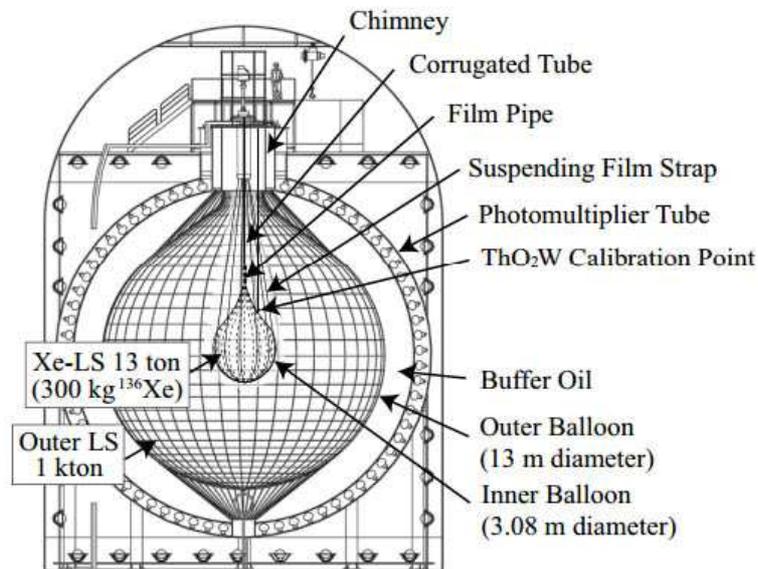


Рис. 8. Схема установки эксперимента Kamland-Zen.

Энергетическое разрешение детектора невысоко и составляет $\approx 10\%$ при энергии $Q_{\beta\beta}$. Однако преимуществами установки являются большая масса

рабочего изотопа (планируется довести до 1 т на 2 фазе эксперимента) и низкий уровень фона, благодаря использованию высокочистого сцинтиллятора.

После начала набора данных в эксперименте появился неожиданный фоновый пик в районе энергии 2.6 МэВ, предположительно от метастабильного $^{110\text{m}}\text{Ag}$, который планируется устранить путём доочистки сцинтиллятора на второй фазе эксперимента. В настоящий момент достигнута экспозиция 89.5 кг·год и установлен новый предел на период полураспада $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{136}Xe $T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25}$ лет [52].

EXO-200. Эксперимент EXO-200 (США) [53] набирает данные с мая 2011 года. Дизайн установки представлен на Рисунке 9.

Общая масса жидкого ксенона в эксперименте составляет 110 кг, обогащение по изотопу ^{136}Xe 80.6 %. Ксеноновая время-проекционная камера имеет цилиндрическую форму с диаметром 40 см и длиной 40 см, температура 167 К. Записываются одновременно ионизационный и сцинтилляционный сигналы. Энергетическое разрешение (FWHM) в области энергии $Q_{\beta\beta} \sim 3.9\%$.

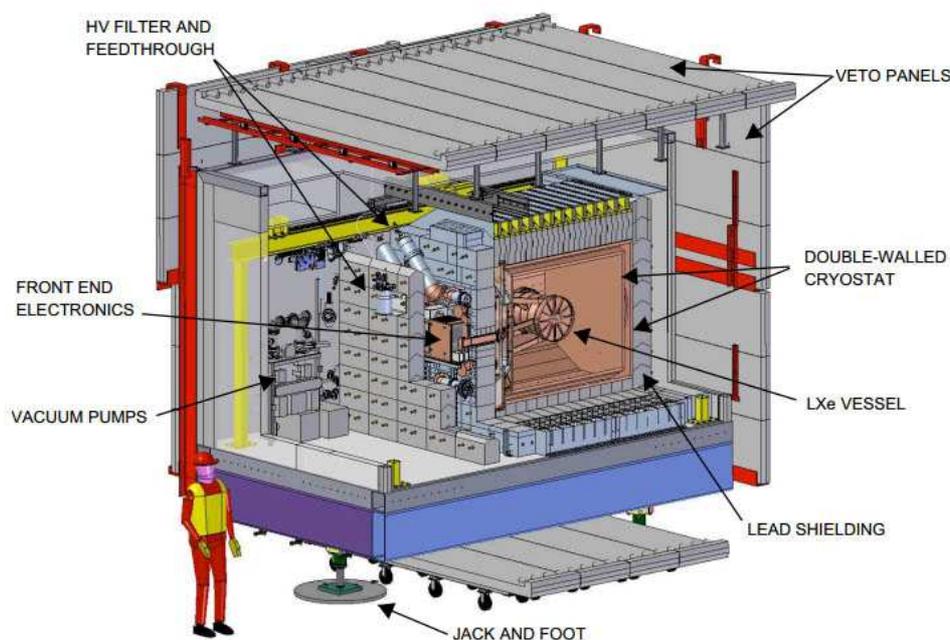


Рис. 9. Установка эксперимента EXO-200.

В настоящий момент в эксперименте достигнута экспозиция 32.5 кг·лет с индексом фона $1.5 \cdot 10^{-3}$ событий·кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹ и установлен предел на период полураспада $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{136}Xe 1.6×10^{25} лет [54]. В дальнейшем планируется расширение эксперимента до 5 т обогащенного ксенона (проект nExo).

Больше действующих экспериментов нет, так что кратко опишем наиболее проработанные из планируемых экспериментов.

CUORE. Боллометрический эксперимент CUORE [55] является преемником эксперимента Cuoricino. В эксперименте планируется использовать кристаллы TeO₂ обогащённые по изотопу ^{130}Te до 34.2 % (масса изотопа ~206 кг). Ожидаемое энергетическое разрешение FWHM = 5% при энергии Q_{ββ}. Расчётный индекс фона 0.01 событий·кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹. Начало набора данных планируется на 2014 год, продолжительность проведения эксперимента – 5 лет. Планируемая чувствительность эксперимента $T_{1/2}^{0\nu} > 9.5 \times 10^{25}$ лет.

MAJORANA. Ещё один эксперимент с изотопом ^{76}Ge [56]. Место проведения Sanford Underground Research Facility (США). Начальная фаза эксперимента (MAJORANA Demonstrator) предполагает проведение измерений с 40 кг обогащенного германия (обогащение до 86 %). Дизайн эксперимента предполагает масштабирование с помощью детекторов с индивидуальным криостатом, сделанным из сверхчистой меди. Планируется снизить уровень фона до 10^{-3} событий·кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹. Ожидаемая чувствительность эксперимента после одного года набора данных $T_{1/2}^{0\nu} > 4 \times 10^{25}$ лет. Начало набора данных 2013 год. В дальнейшем планируется проведение эксперимента с массой детектора 1000 кг и чувствительностью на период полураспада 0ν -моды $T_{1/2}^{0\nu} > 6 \times 10^{27}$ лет.

SuperNEMO. Эксперимент является преемником NEMO-3, но с акцентом на изучение двойного бета-распада изотопа ^{82}Se [57]. Место проведения Frejus Underground Laboratory (Франция). Используемая масса изотопа составит 100-200 кг. Планируется реализовать плоскую геометрию установки, вместо

цилиндрической геометрии NEMO-3. Детектор будет в состоянии записывать отдельные треки электронов, вершины, энергию и время пролёта с полной реконструкцией кинематики и топологии события. Ожидаемое энергетическое разрешение при энергии 3 МэВ равно 4%. Чувствительность на период полураспада 0ν -моды $T_{1/2}^{0\nu} \sim (1-2) \times 10^{26}$ лет. Запуск первого модуля с 5-7 кг изотопа ^{82}Se (SuperNEMO Demonstrator) ожидается во второй половине 2013 года.

SNO+. Эксперимент является преемником эксперимента SNO по поиску нейтринных осцилляций. Место проведения лаборатория SNOLAB (Канада). Будет использован детектор с жидким сцинтиллятором для исследования $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{150}Nd (масса изотопа ~500 кг) [58]. На первой фазе эксперимента задействуется 0.78 тонны неодима с содержанием изотопа ^{150}Nd 43.7 кг. Начало набора данных планируется на 2013 год. Ожидаемая чувствительность после 3 лет набора данных $\sim 6 \times 10^{24}$ лет. Ожидаемая чувствительность полномасштабного эксперимента $\sim 3 \times 10^{25}$ лет.

AMoRE. Боллометрический эксперимент AMoRE ставит целью поиск $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo с помощью сцинтилляционных монокристаллов CaMoO_4 , обогащённых изотопом ^{100}Mo до 96-97 %. Эксперимент будет проходить в подземной лаборатории ЯнгЯнг (Республика Корея). С целью анализа формы импульса для подавления фона будут сниматься одновременно боллометрический и сцинтилляционный сигналы. Общая масса кристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ составит 200 кг, ожидаемый уровень фона в области $Q_{\beta\beta}$ ниже 3×10^{-4} событий·кэВ⁻¹·кг⁻¹·год⁻¹, энергетическое разрешение 5 кэВ. Ожидаемая чувствительность эксперимента за 5 лет набора данных $T_{1/2}^{0\nu} > 10^{27}$ лет. Подробнее об эксперименте AMoRE будет рассказано в п. 2.3.

Сводные данные по вышеописанным экспериментам представлены в Таблице 4. Кроме них в настоящий момент в разработке находится ряд других проектов [33].

Таблица 4. Действующие и планируемые эксперименты по поиску $0\nu 2\beta$ -распада.

| Название | Изотоп | Масса, кг | Чувствительность $T_{1/2}$, лет | $\langle m_\nu \rangle$, мэВ |
|-------------|-------------------|--------------------|-------------------------------------|----------------------------------|
| GERDA | ^{76}Ge | 18 (1 фаза) | 2×10^{25} | |
| | | 40 (2 фаза) | 2×10^{26} | 70-200 |
| | | 1000 (full-scale) | 6×10^{27} | 10-40 |
| Kamland-Zen | ^{136}Xe | 125-179 | 1.9×10^{25} (*) | 120-250 |
| | | 1000 (2 фаза) | 10^{27} | 25-50 |
| EXO-200 | ^{136}Xe | 110 | 1.6×10^{25} (*) | |
| | | 5000 (nExo) | 8×10^{26} | 30-60 |
| CUORE | ^{130}Te | 206 | 10^{26} | 40-90 |
| MAJORANA | ^{76}Ge | ~30 (Demonstrator) | 4×10^{25} | |
| | | 1000 | 6×10^{27} | 10-40 |
| SuperNEMO | ^{82}Se | 100-200 | $(1-2) \times 10^{26}$ | 40-100 |
| SNO+ | ^{150}Nd | 44 (1 фаза) | 6×10^{24} | 100-300 |
| | | 500 | 3×10^{25} | 40-120 |
| AMoRE | ^{100}Mo | 98 | 10^{27} | 30-50 |

(*) Достигнутая чувствительность.

1.4 ^{100}Mo как рабочий изотоп для эксперимента по поиску $0\nu 2\beta$ -распада

^{100}Mo является одним из изотопов для которых запрещён процесс простого β -распада и возможен процесс двойного β -распада (рис. 10):



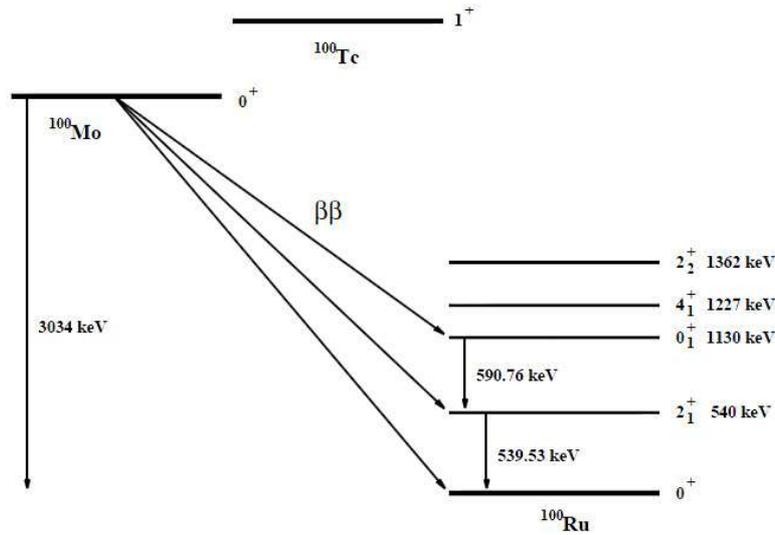


Рис. 10. Схема двойного β -распада изотопа ^{100}Mo .

Одним из важнейших преимуществ ^{100}Mo с точки зрения эксперимента по поиску $0\nu 2\beta$ -распада является высокая энергия $\beta\beta$ -перехода, равная 3034.4 кэВ [59]. Чем выше энергия, тем больше вероятность процесса, поскольку интеграл фазового пространства $G_{0\nu}$ $0\nu 2\beta$ -распада в формуле (5) пропорционален $Q_{\beta\beta}^5$. Для изотопа ^{100}Mo значение $G_{0\nu}$ одно из наибольших среди 35 изотопов 2β -распадчиков [17, 60]. Расчётные значения периода полураспада $0\nu 2\beta$ -моды в зависимости от возможных значений эффективной массы нейтрино можно найти на рисунке 5 работы [59]. Кроме того, с точки зрения эксперимента, высокое значение $Q_{\beta\beta}$ снижает проблему фона, поскольку естественный радиоактивный фон резко падает при энергии выше 2615 кэВ (энергия γ -квантов от распада ^{208}Tl из цепочки ^{232}Th).

Естественное содержание изотопа ^{100}Mo в молибдене составляет 9.82(5)% [61], однако ещё одним важным преимуществом ^{100}Mo является возможность обогащения им молибдена до уровня выше 95% с помощью центрифужного метода. Кроме того возможно производство изотопа в количестве сотен килограмм, необходимых для эксперимента.

Недостатком изотопа является относительно низкое значение периода полураспада $2\nu 2\beta$ -распада $T_{1/2}^{2\nu} = (7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$ лет [37], что означает

повышенный неустраняемый фон от $2\nu 2\beta$ -моды. Это делает критически важным максимизацию энергетического разрешения детектора при поиске $0\nu 2\beta$ -распада.

В данной диссертации изучаются свойства изотопно-обогащённых монокристаллов молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, которые могут служить рабочим веществом детектора в эксперименте по поиску $0\nu 2\beta$ -распада, проводимого по схеме «источник \equiv детектор». О преимуществах этих кристаллов и процессе их производства речь пойдёт в следующей главе.

Глава 2. Монокристаллы $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для эксперимента по поиску $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo

2.1 Свойства сцинтилляционных монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и преимущества их использования в эксперименте по поиску $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo

Свойства монокристаллов молибдата кальция представлены в Таблице 5.

Таблица 5. Некоторые свойства монокристаллов CaMoO_4 .

| | |
|--|--|
| Тип кристаллической решётки | Шеелит, пространственная группа $I4_1/a$ |
| Плоскость спайности | Слабая (0 0 1) |
| Молярная масса | 200.02 г/моль |
| Химический состав | 28.48% CaO, 71.52% MoO ₃ |
| Плотность | 4.2-4.3 г/см ³ |
| Твёрдость по шкале Мооса | 3.5 |
| Растворимость в воде | 0.0041 г/100 г воды (нерастворим) |
| Температура плавления | 1445 °C |
| Коэффициент преломления | 2.1 при $\lambda = 520\text{-}650$ нм [62] |
| Время высвечивания (при комнатной температуре) | ~16.5 мкс |
| Максимум высвечивания | 540-570 нм [62] |
| Температура Дебая | 438 К |

Монокристаллы $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ обладают рядом преимуществ в качестве материала детектора для регистрации $0\nu 2\beta$ -распада:

1) Высокая эффективность регистрации (90-100 %) в эксперименте по поиску $0\nu 2\beta$ -распада достигается в случае реализации схемы «источник≡детектор». Для эксперимента с изотопом ^{100}Mo источником и

детектором могут служить сцинтилляционные кристаллы молибдата кальция CaMoO_4 .

2) Как указывалось в пункте 1.2.3 для повышения чувствительности эксперимента по поиску $0\nu 2\beta$ -распада важно высокое содержание рабочего изотопа в материале источника. Молибдат кальция произведённый из изотопно-обогащённого сырья отвечает этому условию. Содержание в кристалле молибдена по массе 49%. Обогащение молибдена изотопом ^{100}Mo в исходном сырье > 96%.

3) Технология производства кристаллов (выращивание методом Чохральского) позволяет добиться высокой чистоты от радиоактивных примесей.

4) Энергетическое разрешение при использовании монокристаллов молибдата кальция в фоновом режиме сравнимо с разрешением ППД (3-6 кэВ), что даёт возможность подавить фон от двунейтринной моды распада.

5) Среди неорганических молибденосодержащих материалов молибдат кальция имеет относительно высокий световыход при комнатной температуре (~ 7500 фотон/МэВ), который растёт с понижением температуры [63, 64].

6) Существует возможность идентификации и отбора событий с целью подавления фона при помощи анализа сигнала.

7) Существует возможность увеличения масштаба эксперимента, путём добавления новых монокристаллов в установку.

2.2 Механизм сцинтилляции в кристаллах CaMoO_4

Молибдат кальция относится к неорганическим самоактивированным кристаллическим сцинтилляторам. В кристаллических материалах процесс высвечивания люминесценции, возбуждённой ионизирующим излучением (сцинтилляция), связан с наличием зонной энергетической структуры. Электроны в атомах расположены на своих энергетических уровнях в валентной зоне, а дырки расположены в зоне проводимости. Зона

проводимости и валентная зона разделены запрещённой зоной, шириной в несколько электрон-вольт. Ширина запрещённой зоны достаточно велика, чтобы электроны не могли преодолеть её с помощью энергии теплового движения. Внутри запрещённой зоны могут быть дискретные разрешённые уровни, связанные с наличием примесей или дефектов кристаллической решётки.

При прохождении ионизирующей частицы электроны получают энергию достаточную для перехода в зону проводимости. При этом в валентной зоне появляется дырка, которая, как и электрон, может свободно перемещаться по кристаллу, создавая электрическую проводимость. В другом случае электрон с дыркой могут быть локализованы в дефекте кристаллической решётки, оставаясь электростатически связанными друг с другом. Такая пара электрон-дырка называется экситоном. Экситон может перемещаться в кристалле, не создавая электрической проводимости.

В результате радиационных и безизлучательных переходов экситоны, электроны и дырки захватываются на дискретные уровни запрещённой зоны. Дальнейший переход электрона в валентную зону сопровождается излучением фотонов, энергия которых меньше чем ширина запрещённой зоны. Таким образом, спектр излучаемых фотонов смещён относительно спектра поглощения кристалла, что и приводит к появлению люминесценции. Соответствующие энергетические уровни внутри запрещённой зоны называются уровнями люминесценции.

Особенностью монокристалла CaMoO_4 является наличие формируемой e-орбиталью обособленной подзоны, которая лежит ниже дна зоны проводимости на величину 0.5 эВ. Это приводит к возникновению эффективных сцинтилляций, не смотря на относительно узкую ширину запрещённой зоны [65].

Таким образом, сцинтилляция возникает благодаря последовательному развитию нескольких процессов (рис. 11) [65]:

1. Первичное энерговыделение с образованием „горячих“ электронов и дырок.
2. Неупругие процессы взаимодействия „горячих“ электронов и дырок и их термализация.
3. Образование экситонных состояний и ансамбля возбуждённых люминисцентных центров.
4. Высвечивание сцинтилляций.

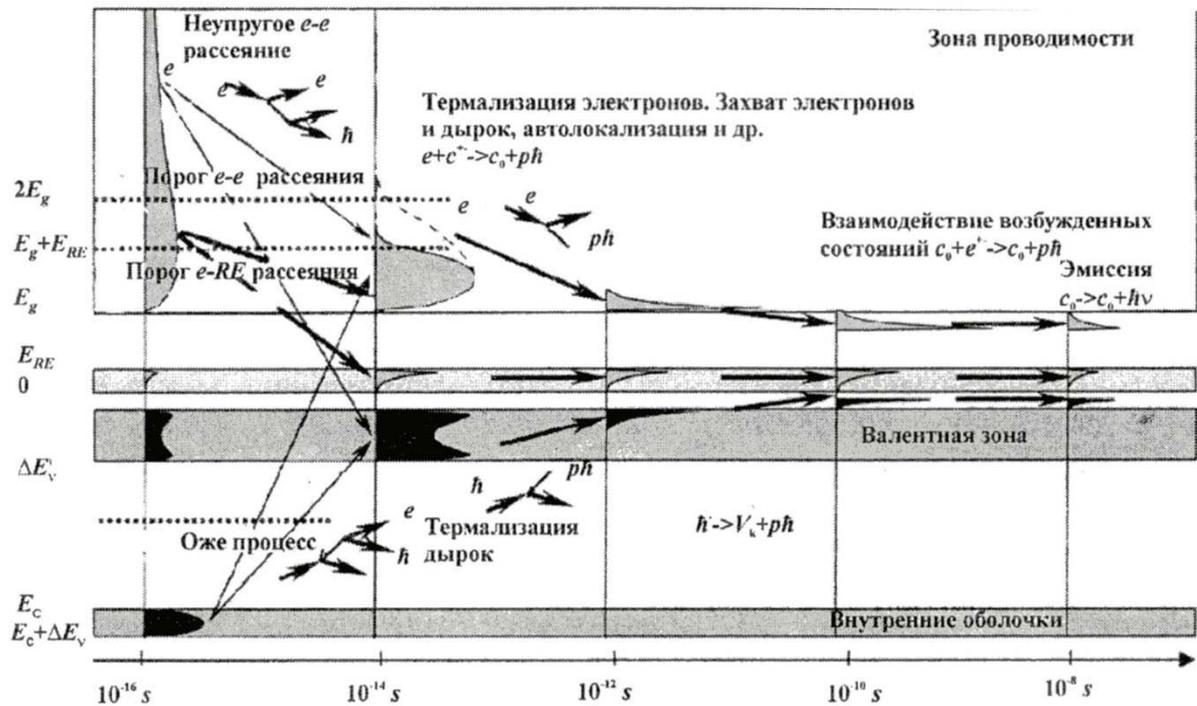


Рис. 11 Общая схема развития процессов релаксации возбуждения в люминесцентной среде, приводящих к сцинтилляциям при возбуждении ионизирующим излучением [66].

Первичное формирование пар электрон-дырка в среде происходит в широком интервале времени (10^{-18} – 10^{-9} с). Затем энергия электронов становится меньше порога ионизации, во второй фазе происходят неупругие процессы рассеяния „горячих“ электронов и снятие возбуждения посредством электрон-фононного взаимодействия пока дырки не достигают верха валентной зоны, а электроны низа зоны проводимости. Этот процесс ограничен по времени в

узком диапазоне 10^{-16} - 10^{-12} с, что связано с плотной упаковкой кристаллических соединений [65].

На третьем этапе электроны и дырки мигрируют к центрам люминисценции в течение 10^{-12} - 10^{-8} с. При этом электрон-дырочные пары могут ионизовать кристаллическую решётку и быть захваченными в появившейся потенциальной яме, образуя автолокализованные электронные пары. В процессе термализации после достижения верха валентной зоны, дырки могут связываться с определёнными молекулярными группами в кристалле, образуя автолокализованные экситоны. Автолокализованные дырки и экситоны также являются центрами люминисценции, снятие возбуждения которых приводит к высвечиванию сцинтилляции.

Сцинтилляции молибдата кальция с максимумом в зелёной области имеют многокомпонентный характер, детальное исследование которого можно найти в работах [62, 67]. Наличие нескольких компонент высвечивания связано с различным происхождением центров люминесценции в кристалле. Основными механизмами высвечивания монокристаллов CaMoO_4 являются распад триплетных автолокализованных экситонов, захватываемых в окси-анионных комплексах молибдена $(\text{MoO}_4)^{2-}$, излучающая рекомбинация электрон-дырочных пар в комплексе $(\text{MoO}_4)^{2-}$ (коротковолновая люминесценция) и излучение связанное с наличием внутренних дефектов кристалла в кислороднообеднённом комплексе MoO_3 , приводящих к излучательной рекомбинации автолокализованных дырок (длинноволновая люминесценция). Быстрая компонента также связана с распадом синглетных автолокализованных экситонов из энергетического состояния ${}^1T_{1,2} \rightarrow {}^1A_1$ (рис. 12) [67].

Образование триплетных и синглетных состояний, а также переходы между ними, зависят от температуры в связи с наличием энергетического барьера между триплетными и синглетными адиабатическими потенциалами энергетических поверхностей (рис. 12). Кроме того образование триплетных состояний связано с неизлучающими фоннными переходами между

различными адиабатическими потенциалами энергетических поверхностей. Количество неизлучающих переходов является функцией температуры и энергетической разделённости уровней [67]. Данные факторы приводят к изменению начальной популяции триплетных состояний и, следовательно, кинетики высвечивания при изменении температуры.

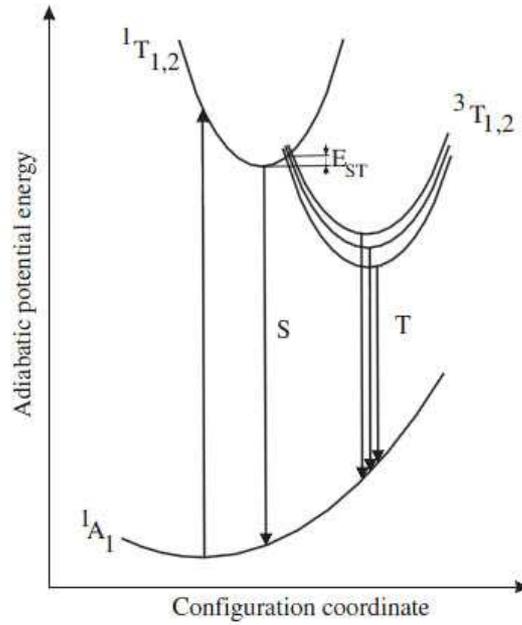


Рис. 12. Схема излучающих энергетических переходов в CaMoO_4 . E_{ST} означает энергетический барьер между синглетными (S) и триплетными (T) состояниями [67].

Следует также сказать о связи сцинтилляции с обработкой поверхности монокристалла. Низкоэнергетическая часть люминесцентного спектра увеличивается при уменьшении энергии ионизирующей частицы. Это объясняется тем, что дефекты в комплексе MoO_3 , ответственные за образование низкоэнергетической компоненты высвечивания, лежат в тонком приповерхностном слое кристалла (~ 100 нм) [68].

Полировка поверхности изменяет конфигурацию дефектов и примесей, влияя на интенсивность высвечивания молибдата кальция. Количество дефектов в приповерхностном слое у необработанного кристалла значительно меньше, чем у обработанного и вклад внутренней полосы испускания такого

кристалла выше, что приводит к смещению высокоэнергетической части излучения необработанного кристалла [68].

2.3 AMoRE – эксперимент по поиску $0\nu2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo с криогенным детектором на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$

Коллаборация AMoRE (Advanced Mo based Rare process Experiment) планирует использовать монокристаллы $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в качестве криогенного сцинтилляционного болометра для исследования процесса $0\nu2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo [69].

2.3.1 Сцинтилляционный болометр. Преимуществом сцинтилляционного болометра на основе монокристалла молибдата кальция являются высокое энергетическое разрешение для фоновых сигналов. При этом существует возможность подавления фона с помощью совместного анализа сцинтилляционных и фоновых сигналов. Это оказывается возможным благодаря разнице коэффициентов преобразования энергии частиц (для α -частиц и γ/β) в тепло и в люминесценцию. Физическая модель, объясняющая возможность идентификации частиц на основе временного анализа двух сигналов, изложена в [70]. Кроме того, для молибдата кальция существует возможность идентификации частиц на основе анализа только теплового сигнала [71].

Принципиальная схема болометра представлена на Рисунке 13. Энерговыделение частицы повышает температуру абсорбера. Это повышение измеряется термометром и устраняется с помощью теплоотвода. Изменение температуры абсорбера равно отношению энергии частицы к тепловой ёмкости материала $\Delta T = E/C$. Время возвращения абсорбера к изначальной температуре равно $\tau = C/G$, где G – теплопроводность теплоотвода. Рабочая температура болометра < 100 мК.

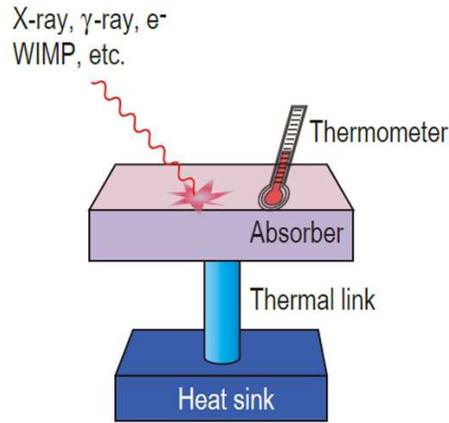


Рис. 13. Принципиальная схема болометра.

Для съема фонованого сигнала в эксперименте планируется применять ММС-сенсоры (Metallic Magnetic Calorimeter) [72]. ММС использует в качестве температурного сенсора парамагнитный материал, находящийся в слабом магнитном поле. Изменение температуры детектора приводит к изменению намагниченности материала M и изменению магнитного потока $\Delta\Phi$ в катушке магнетометра (рис. 14а) [72]:

$$\Delta\Phi \propto \frac{\partial M}{\partial T} \Delta T = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C} = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C_a + C_s} \quad (21)$$

где C_a – ёмкость абсорбера, а C_s ёмкость сенсора.

В качестве магнетометра в ММС используется SQUID - superconducting quantum interference device (сверхпроводящий квантовый интерферометр). Схема ММС-сенсора на основе золота с добавлением эрбия (Au:Er), использовавшегося в тестах AMoRE, представлена на рисунке 14б.

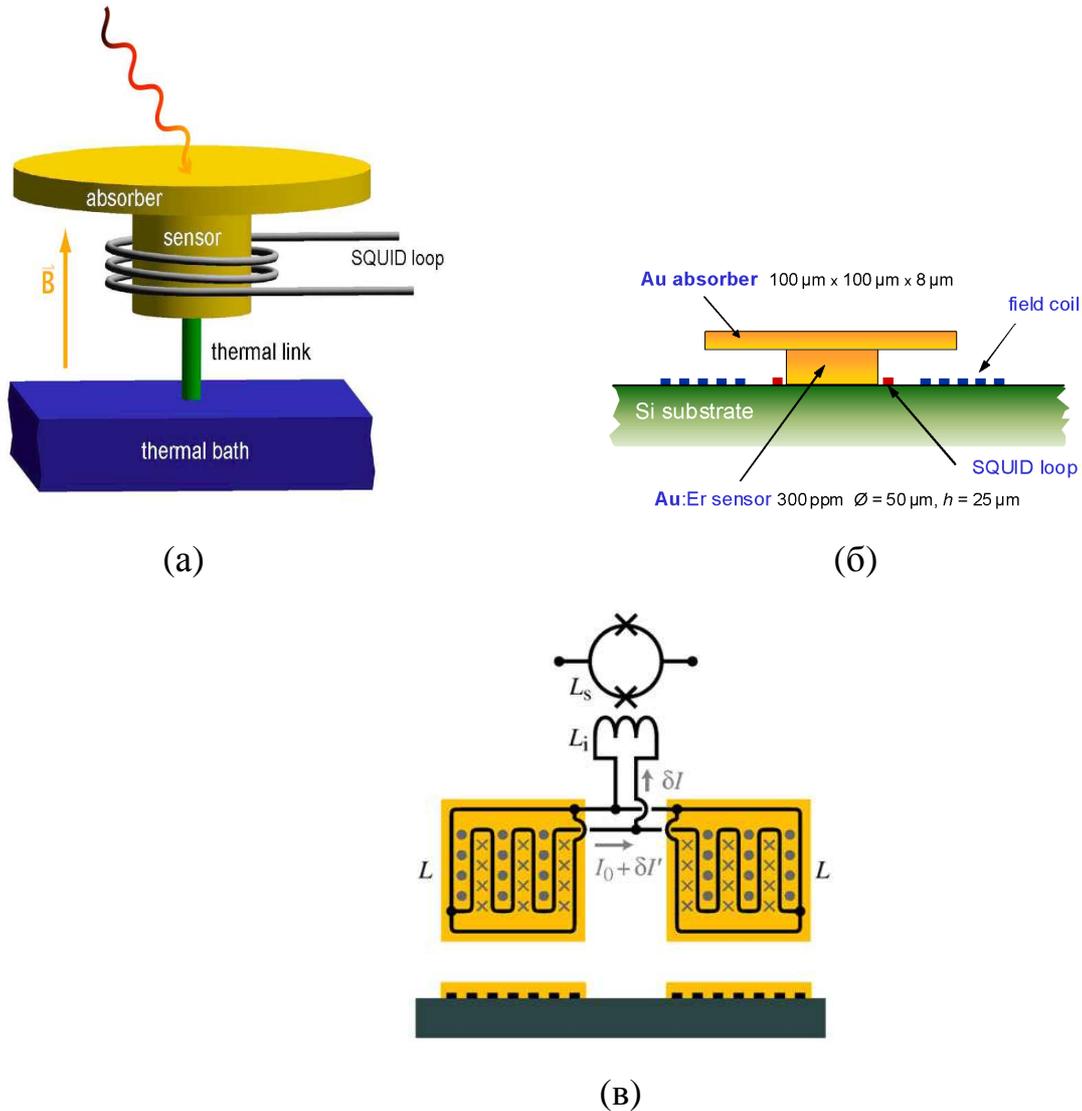


Рис. 14. Принципиальная схема ММС-сенсора (а), схема ММС-сенсора первого поколения (б), схема меандрового ММС-сенсора (в)

Коллаборацией проведены первые криогенные измерения при мК-температуре с образцом $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ размерами 1 см x 0.7 см x 0.6 см и весом 2.5 г в качестве абсорбера. Радиоактивный источник ^{241}Am ; снятие сигнала проводилось с помощью ММС-сенсора на основе золота с добавлением 800 ppm эрбия. Было достигнуто энергетическое разрешение $\text{FWHM} = 1.7$ кэВ для γ -квантов (энергия 59.5 кэВ) и $\text{FWHM} = 11.2$ кэВ для α -частиц (энергия 5.5 МэВ) [73].

2.3.2 Детектор АМоРе. В настоящий момент коллаборацией рассматривается модель детектора с использованием цилиндрических

кристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ диаметром 50 мм и высотой 50 мм, массой около 300 г. Каждый кристалл помещен в индивидуальный медный крепёж с покрытыми тефлоном фосфорно-бронзовыми держателями (рис. 15а). Диаметр крепежа 70 мм, высота 80 мм. На поверхность кристалла наносится золотая плёнка, толщиной 200 нм, которая золотыми проводами соединяется с ММС-сенсором. Рабочая температура детектора ~ 40 мК. Сцинтилляционный сигнал также снимается с помощью ММС, соединённого с пластиной на основе кремния или германия (рис. 15б). Планируется использовать ММС меандровой структуры (рис. 14в) [74].

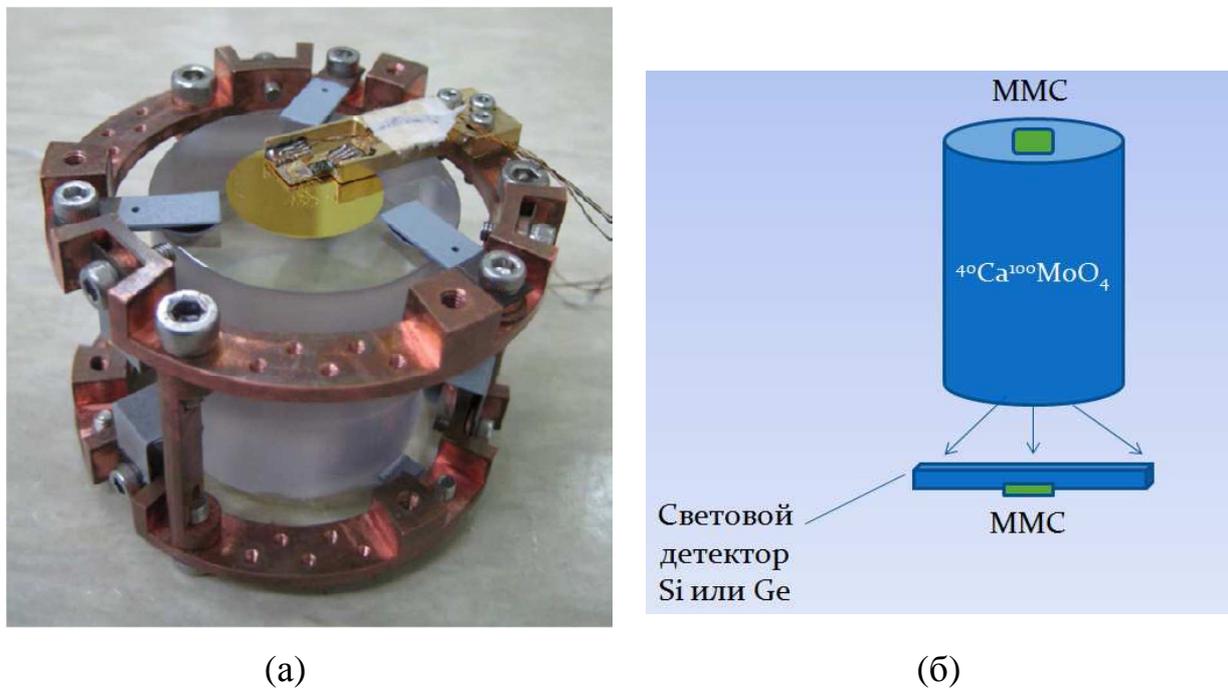


Рис. 15. Кристалл $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ с меандровым ММС-сенсором для снятия теплового сигнала в крепеже (а), схема снятия сцинтилляционного и фоновых сигналов в эксперименте АМоРЕ (б).

Проведены тестовые измерения с кристаллом CaMoO_4 (из природного сырья) массой 216 г, который был помещён в описанный крепёж и соединён с ММС-сенсором. Энергетический спектр фоновых сигналов после 194 часов измерений показан на Рисунке 16. В Таблице 6 представлены значения

энергетического разрешения для различных энергий. Испытания также продемонстрировали возможность разделения α - и β/γ -событий по их среднему времени нарастания при анализе только теплового сигнала.

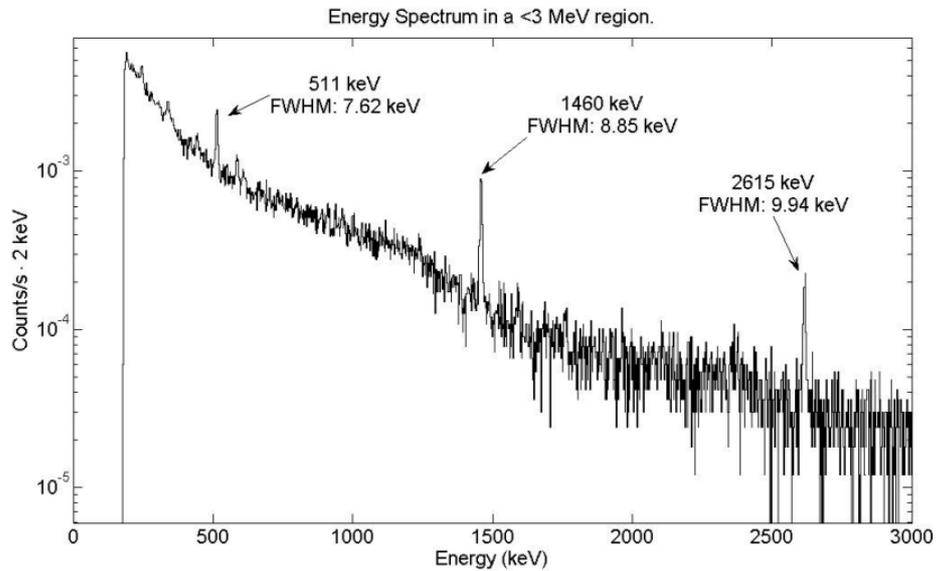


Рис. 16. Фоновый спектр кристалла CaMoO_4 массой 216 г при болометрических измерениях с использованием ММС в течение 194 часов.

Таблица 6. Энергетическое разрешение болометрической установки с кристаллом CaMoO_4 для некоторых γ -линий.

| Е, кэВ | 511 | 1461 | 2615 |
|-----------|----------------|----------------|---------------|
| FWHM, кэВ | 7.6 ± 0.91 | 8.9 ± 0.62 | 9.9 ± 1.3 |

Разрешение детектора АМоRE в области $Q_{\beta\beta}$ будет составлять 5 кэВ. Планируется проведение эксперимента с общей массой молибдата кальция 200 кг, что потребует около 666 кристаллов массой ~ 300 г. Планируемая чувствительность эксперимента за 5 лет набора данных $T_{1/2}^{0\nu} > 10^{27}$ лет.

2.4 Фон в эксперименте по поиску $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo

Минимизация фона является главным вызовом в экспериментах по поиску $0\nu 2\beta$ -распада. Чувствительность эксперимента обратно пропорциональна

корню из числа фоновых событий в энергетической области $Q_{\beta\beta}$. Поскольку число фоновых событий линейно увеличивается со временем, чувствительность эксперимента растёт только как квадратный корень из времени (см. уравнение (19)).

2.4.1 Фон от естественных изотопов U/Th рядов. Естественные долгоживущие изотопы ^{232}Th и ^{238}U с дочерними изотопами от их распада присутствуют в качестве примеси во всех материалах. Их ряды представлены на Рисунках 17 и 18 [75]. При этом ряды могут не находиться в равновесии, если в результате очистки материала было уменьшено содержание части изотопов. В этом случае активность данных изотопов будет меньше чем их активность в равновесном состоянии.

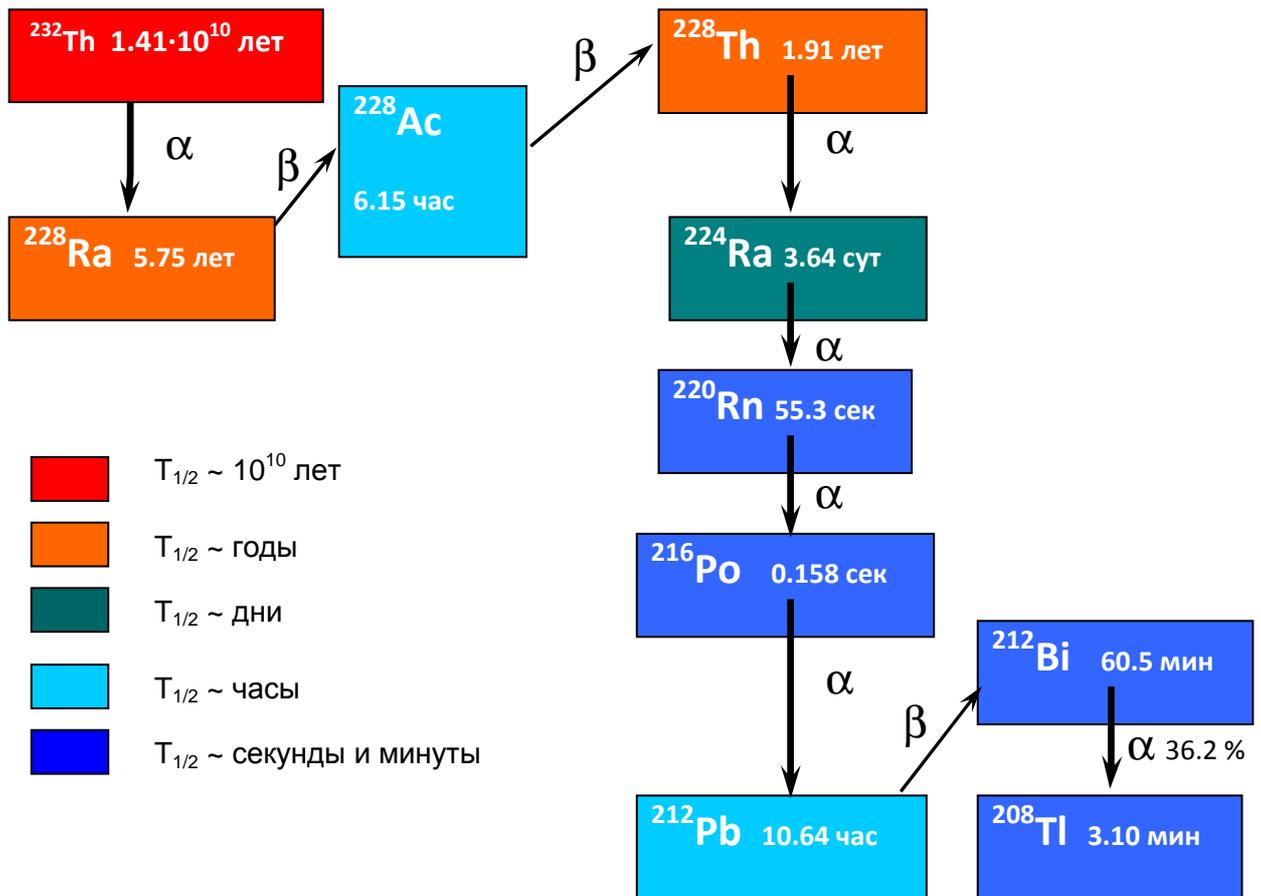


Рис. 17. Радиоактивный ряд ^{232}Th .

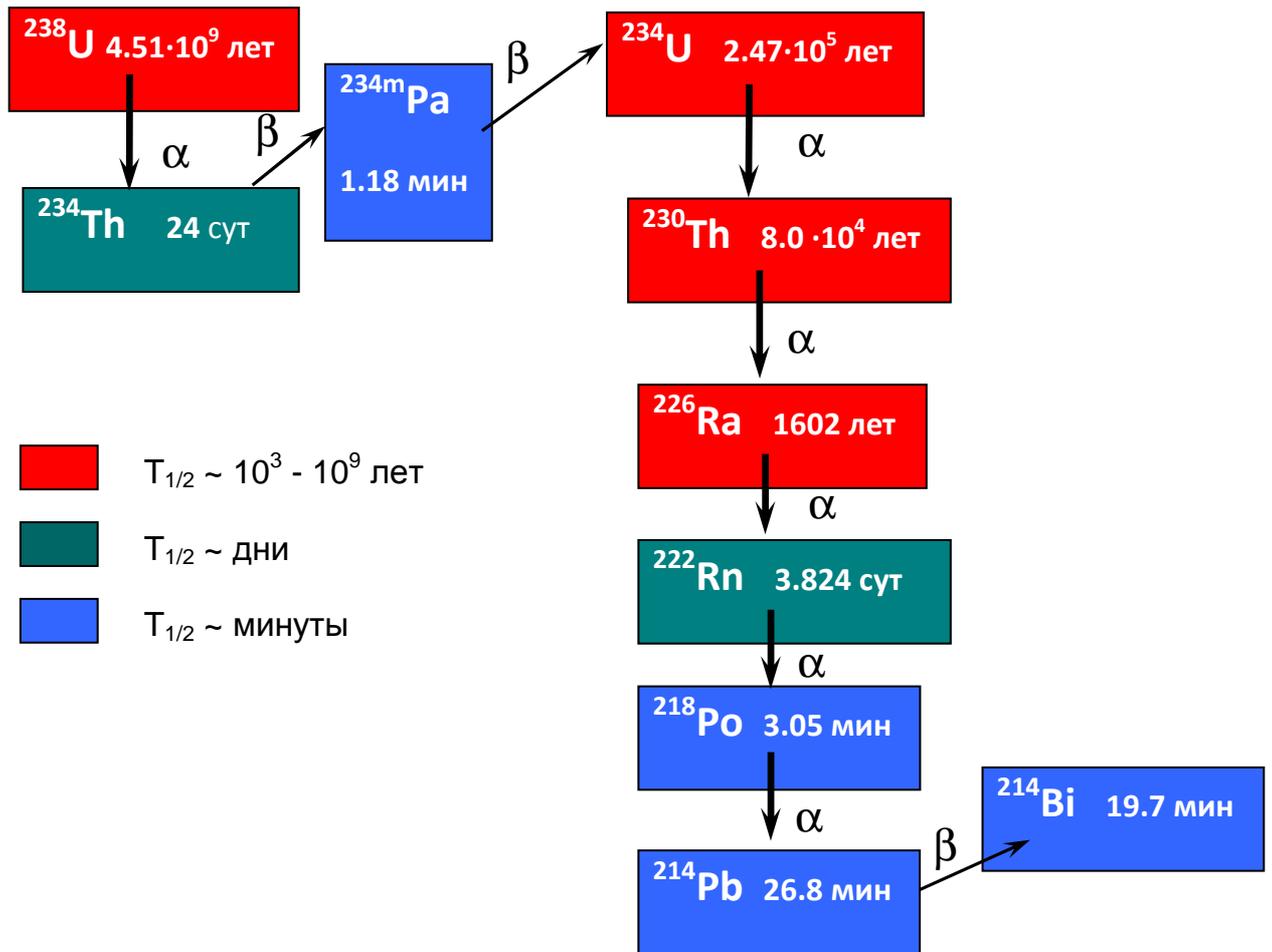


Рис. 18. Радиоактивный ряд ^{238}U .

Только два изотопа в представленных рядах ^{232}Th и ^{238}U имеют энергию β -перехода, превышающую энергию $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo . Это ^{208}Tl ($Q_\beta = 5001$ кэВ) и ^{214}Bi ($Q_\beta = 3272$ кэВ)³. ^{208}Tl обладает также максимальной энергией γ -квантов (2615 кэВ) среди естественных долгоживущих изотопов. Данные изотопы представляют наибольшую опасность не только потому что спектры их распада перекрывают энергию $0\nu 2\beta$ -распада, но и потому что сигналы от их β -распада аналогичны сигналам от искомого $0\nu 2\beta$ -распада, что затрудняет идентификацию фоновых событий на основе анализа импульса.

Одним из необходимых методов решения данной проблемы является правильный выбор используемых в эксперименте материалов и их тщательная

³ ^{210}Tl из ряда ^{238}U также обладает высокой энергией $Q_\beta = 5489$ кэВ, но его выход составляет только 0.021%, что не существенно влияет на фон экспериментов.

очистка (см. п. 2.5). В работе [76] было показано, что при активности изотопов ^{208}Tl и ^{214}Bi на уровне 0.1 мкБк/кг вклад их β -частиц в область пика $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo ($\pm 1.18\sigma$) при разрешении сцинтилляционного детектора 4% может быть снижен до величины $\sim 0.3 \text{ кг}^{-1}\text{год}^{-1}$. Это снижение достигается применением дополнительных методов дискриминации по сопутствующим γ -квантам и задержанным α -частицам, обеспечивающих коэффициент подавления не хуже 10. Так, например, фон ^{208}Tl можно подавить с помощью антисовпадений с α -частицами с энергией 6207 кэВ от распада $^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$. Более подробно проблемы снижения фона от U/Th рядов с помощью анализа данных будут освещены в 4-й главе.

Кроме фона создаваемого непосредственно распадами ^{208}Tl и ^{214}Bi следует учитывать фон от наложения сигналов последовательных распадов в цепочке, например при распаде $^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$ и $^{212}\text{Bi} \rightarrow ^{212}\text{Po}$, с общей энергией получившегося события на уровне 3 МэВ. Количество таких событий зависит от длительности записываемого сигнала. Методы идентификации наложений будут рассмотрены в п. 4.4.3.

Внутренние α -частицы не дают вклада в рабочую область, поскольку кристаллы CaMoO_4 имеют α/β отношение ~ 0.25 (см. п. 4.6). Максимальная энергия α -частиц в рядах урана и тория составляет 9.7 МэВ и таким образом с учетом α/β -отношения, такие события на спектре будут находиться ниже $0\nu 2\beta$ -распада ^{100}Mo .

Цель коллаборации AMoRE снижение фона от распада в U/Th-цепочках как внутри кристаллов молибдата кальция, так и в материалах детектора, до уровня $0.7 \times 10^{-4} \text{ кэВ}^{-1}\text{кг}^{-1}\text{год}^{-1}$.

2.4.2 Фон от $2\nu 2\beta$ -распада изотопов ^{48}Ca и ^{100}Mo . В природном кальции содержится 0.148% изотопа ^{48}Ca [77], являющегося двойным бета-распадчиком с энергией распада 4.27 МэВ и периодом полураспада $T_{1/2}^{2\nu} = 4.4 \times 10^{19}$ лет (см. Таблицу 2). $2\nu 2\beta$ -распад ^{48}Ca даёт вклад в энергетическую область $0\nu 2\beta$ -распада ^{100}Mo на уровне $1.4 \text{ кг}^{-1}\text{год}^{-1}$. В случае применения сцинтилляционного

болометра с энергетическим разрешением в области $Q_{\beta\beta}$ на уровне 5 кэВ, чувствительность эксперимента будет ограничена на уровне 4.2×10^{25} лет при экспозиции 200 кг·год [76]. Дальнейшее улучшение этого результата можно достичь при использовании для роста кристаллов кальциевой компоненты шихты, обеднённой по изотопу ^{48}Ca .

Фон от $2\nu 2\beta$ -распада ^{100}Mo с периодом полураспада $T_{1/2}^{2\nu} = 7.1 \times 10^{18}$ лет может быть снижен только при уменьшении энергетического разрешения детектора. Спектр данного процесса располагается в области энергий от 0 до $Q_{\beta\beta}$ с пиком на уровне примерно $Q_{\beta\beta}/3$, а непосредственно перед энергией $Q_{\beta\beta}$ выходит на плато (рис. 2) [78]. Как показывает Монте-Карло моделирование, при энергетическом разрешении $\text{FWHM} = 4\%$ фон от $2\nu 2\beta$ -распада ^{100}Mo в области $Q_{\beta\beta}$ составит $0.06 \text{ кэВ}^{-1}\text{кг}^{-1}\text{год}^{-1}$ [76].

Также существует возможность наложения сигналов от нескольких $2\nu 2\beta$ -распадов (pile-up events) с общей энергией в области 3 МэВ [79], которые, однако, могут быть идентифицированы с помощью методов временного анализа, изложенных в 4-й главе. Итоговый фон таких событий в болометрическом эксперименте может быть подавлен до уровня $0.6 \times 10^{-4} \text{ кэВ}^{-1}\text{кг}^{-1}\text{год}^{-1}$.

2.4.3 Фон от нейтронов, космических мюонов и космогенных изотопов.

Короткоживущие изотопы в материалах детектора могут появляться под воздействием космического излучения. Некоторые из них, с энергией на уровне или выше $Q_{\beta\beta}$ ^{100}Mo , представлены в Таблице 7 [76]. Вычисление активности изотопов проводилось при условии активационного времени 30 дней на поверхности земли и деактивационного времени 1 год в условиях подземной лаборатории. При условии хорошего разрешения детектора существенный вклад в фон вносят два космогенных изотопа: ^{56}Co и ^{88}Y . Последний также может быть дочерним изотопом от распада космогенного ^{88}Zr ($T_{1/2} = 83.4$ дня) [79].

Таблица 7. Космогенная радиоактивность кристаллов CaMoO_4 при условии активационного времени 30 дней на поверхности земли и деактивационного времени 1 год в условиях подземной лаборатории [76].

| Изотоп | $T_{1/2}$ | Мода распада | Q, кэВ | Число распадов за 5 лет на 1 кг CaMoO_4 |
|---|-----------|--------------|---------------------------|--|
| $^{42}\text{Ar} \rightarrow ^{42}\text{K}$ | 32.9 лет | β^- | 3525 (^{42}K) | 0.80 |
| ^{56}Co | 77.3 дня | EC | 4565 | 0.01 |
| $^{68}\text{Ge} \rightarrow ^{68}\text{Ga}$ | 270.8 дня | EC | 2921 (^{68}Ga) | 0.90 |
| ^{88}Y | 106.7 | EC | 3623 | 20.69 |

Ещё одним источником фона являются потоки космических мюонов с энергией до 200 ГэВ. Неупругое рассеяние мюонов и μ^- захват дают задержанные события внутри детектора уже после мюонного сигнала. В случае если разница во времени достаточно велика такой фон трудно подавить на основе антисовпадений. Для материалов с высоким Z μ^- захват доминирует по сравнению с распадом мюонов [80] и появляются вторичные нейтроны с энергетическим спектром, простирающимся до десятков мегаэлектронвольт [81].

На поверхности земли нейтронный поток возрастает, прежде всего, благодаря адронной компоненте космического излучения. В глубоких подземных лабораториях основным источником нейтронов становятся (α, n) -реакции и нейтроны от спонтанного распада изотопов в окружающей лаборатории породе (^{238}U). Снижение этого фона можно достичь при помощи нейтронной защиты детектора.

С целью снижения фона от вторичных нейтронов и космических мюонов эксперимент AMoRE планируется проводить в подземной лаборатории ЯнгЯнг (Республика Корея), характеристики которой даны в п. 4.1. Будет использована многослойная защита от мюонов, включающая систему активной защиты на основе жидкого сцинтиллятора. Таким образом, мюонный и мюон-

индуцированный фон, согласно Монте-Карло моделированию, будет снижен до уровня 1×10^{-4} кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹. Общий фон эксперимента планируется снизить до уровня ниже 3×10^{-4} кэВ⁻¹кг⁻¹год⁻¹.

2.5 Производство и очистка исходных компонент и шихты для роста монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$

Общая схема производства сцинтилляционных элементов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ включает в себя три основных этапа: а) получение исходных материалов, содержащих молибден (обогащённый по изотопу ^{100}Mo) и кальций (обеднённый по изотопу ^{48}Ca), и их химическая очистка; б) дополнительная очистка исходных материалов и синтез шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$; в) выращивание монокристаллов и их последующая механическая обработка (резка, полировка). В данном параграфе мы рассмотрим первые два этапа, в то время как выращиванию монокристаллов будет посвящён параграф 2.6

2.5.1 Удаляемые изотопы и контроль их содержания.

Исходя из схем распада долгоживущих изотопов ^{238}U и ^{232}Th (рис. 17 и 18) очистка от изотопов ^{208}Tl и ^{214}Bi обеспечивается удалением примеси трех химических элементов: урана, тория и радия. Для очистки от примеси радионуклида ^{208}Tl надо удалять ^{232}Th , ^{228}Th и ^{228}Ra ; а для очистки от радионуклида ^{214}Bi надо удалять изотоп ^{226}Ra . Особое внимание следует уделять очистке от радия кальцийсодержащей компоненты шихты, т.к. кальций и радий принадлежат к одной и той же подгруппе химических элементов. Содержание радиоактивных изотопов ^{228}Ra и ^{226}Ra не может быть измерено с помощью методов масс-спектрометрии и определяется с помощью гамма-спектрометрии на основе низкофоновых детекторов, размещаемых в подземных лабораториях [82].

⁴ Данный параграф написан на основе статьи В.В. Аленков, О.А. Бузанов, А.Е. Досовицкий, В.Н. Корноухов, А.Л. Михлин, П.С. Мосеев, Н.Д. Ханбеков «Глубокая очистка изотопно-обогащенных материалов для выращивания монокристаллов молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ », Неорганические материалы т. 49, с. 1324-1328 (2013). В ней могут быть найдены исчерпывающие результаты измерений примесей в исходных компонентах и шихте, а также подробности технологии производства.

Поскольку в процессе химической очистки компонентов исходного сырья от радиоактивных примесей может происходить избирательное удаление отдельных химических элементов, равновесие в рядах ^{232}Th и ^{238}U может нарушаться. Для контроля возможного нарушения равновесия в ряду ^{232}Th требуется одновременно отслеживается активность ^{228}Ac (начальная часть ряда) и ^{208}Tl (конечная часть ряда). Начальная часть ряда ^{232}Th включает следующие элементы: ^{232}Th ($T_{1/2} = 1.4 \cdot 10^{10}$ лет, α) \rightarrow ^{228}Ra ($T_{1/2} = 5.75$ лет, β^-) \rightarrow ^{228}Ac ($T_{1/2} = 6.15$ час, β^-) \rightarrow ^{228}Th ($T_{1/2} = 1.91$ лет, α) \rightarrow ^{224}Ra ($T_{1/2} = 3.66$ сут, α) $\rightarrow \dots$.

Периоды полураспада радиоактивных изотопов остальной части ряда не превышают 11 часов. Поэтому сравнение значений активности ^{232}Th , определённых из активности ^{228}Ac и ^{208}Tl , позволяет определить относительную эффективность процесса химической очистки от тория и радия.

Содержание контролируемых примесей в исходных материалах и шихте на всех стадиях процесса производства представлены в Таблице 8. Измерения проводились методом низкофоновой гамма-спектрометрии (Баксанская нейтринная обсерватория ИЯИ РАН). Пояснения этих данных дано ниже.

Ещё одним источником фона является $2\nu 2\beta$ -распад изотопа ^{48}Ca (см. п. 2.4.2), что делает необходимым обеднение кальция по ^{48}Ca не менее чем в 30 раз.

2.5.2 Производство изотопов ^{100}Mo и ^{40}Ca . Молибден, обогащенный по изотопу ^{100}Mo до уровня $>96\%$, производится ОАО «Электрохимический завод» (г. Зеленогорск) центрифужным методом и поставляется в виде порошка оксида молибдена $^{100}\text{MoO}_3$.

Процесс производства изотопа ^{100}Mo состоит из следующих этапов:

а) Синтез гексафторида молибдена MoF_6 в токе газообразного фтора (при этом также синтезируется UF_6 , если в молибдене есть примесь урана). Одновременно происходит очистка MoF_6 от химических элементов, не образующих летучих фторидов (или фторидов с незначительной упругостью пара при комнатной температуре).

б) Обогащение природного MoF_6 по изотопу ^{100}Mo с помощью центрифужной технологии. В процессе центрифугирования происходит также очистка продукта от примесного урана путем отделения самой тяжелой фракции рабочего газа $^{100}\text{MoF}_6$, содержащей UF_6 [83].

в) Гидролиз $^{100}\text{MoF}_6$ и получение оксида $^{100}\text{MoO}_3$ после прокалки.

Таблица 8. Содержание радиоактивных примесей в различных образцах исходных материалов и шихте $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. Измерения методом низкофоновой гамма-спектрометрии БНО ИЯИ РАН.

| Изотоп | Активность, Бк/кг | | | |
|--|--|---|---|---|
| | Оксид молибдена, $^{100}\text{MoO}_3$ | Формиат кальция $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ | Формиат кальция $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ Доп. очистка ЗАО «НеоХим» | Шихта, $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ |
| ^{40}K | $(5.3 \pm 0.8) \cdot 10^{-2}$ | $(3.6 \pm 2.7) \cdot 10^{-3}$ | $\leq 8.6 \cdot 10^{-3}$ | $\leq 9.4 \cdot 10^{-3}$ |
| ^{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 (^{232}Th) | $\leq 1.0 \cdot 10^{-3}$ [$\leq 2.8 \cdot 10^{-3}$] | $\leq 5.2 \cdot 10^{-4}$ | $\leq 1.3 \cdot 10^{-3}$ | $\leq 1.1 \cdot 10^{-3}$ |
| ^{214}Bi (^{226}Ra) | $\leq 2.3 \cdot 10^{-3}$ | $(5.1 \pm 0.2) \cdot 10^{-2}$ | $(1.4 \pm 0.9) \cdot 10^{-3}$ | $\leq 1.6 \cdot 10^{-3}$ |

Результаты измерений образцов $^{100}\text{MoO}_3$ по методу масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ИСП-МС) показывают, что обогащённый материал имеет химическую чистоту 99.99%, а концентрация ^{238}U и ^{232}Th в оксиде не превышают 0.2×10^{-7} и 0.7×10^{-7} мас.% соответственно. Чтобы повысить чувствительность измерений по этим примесям были разработаны специальные методики [84].

Кроме того, гамма-спектрометрические измерения, выполненные с использованием низкофонового полупроводникового детектора в Баксанской нейтринной обсерватории показали, что активность ^{226}Ra и его дочернего изотопа ^{214}Bi менее 2.3 мБк/кг [85] (Таблица 8, 1-й столбец), что делает приемлемым дальнейшее использование этого материала для синтеза шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ (при подготовке и в процессе синтеза проводится дополнительная очистка).

Карбонат кальция $^{40}\text{CaCO}_3$, обогащенный по изотопу ^{40}Ca (99.964 – 99.988 ат.%) и обедненный по изотопу ^{48}Ca (содержание ≤ 0.001 ат.%) производится ФГУП «Комбинат „Электрохимприбор“» (г. Лесной) методом электромагнитной сепарации. Получение кальция, обедненного по изотопу ^{48}Ca , состоит из двух этапов: а) разделение и захват изотопов в приемные блоки на электромагнитной установке; б) съем изотопов с приемных блоков и химическая переработка до готовой продукции.

На втором этапе растворы полуфабриката проходят несколько процессов очистки от примесей. В результате переработки получают изотопнообогащенный кальций в виде карбоната кальция с суммой примесей (по 70 элементам) не более 0.05 вес.%, в том числе бария – 35 мкг/г, стронция – 33 мкг/г.

Концентрация ^{238}U и ^{232}Th в обогащенном материале, измеренная методом ИСП-МС, ниже чем 0.2×10^{-7} мас.% и 0.8×10^{-7} мас.% соответственно (Таблица 9). Однако, гамма-спектрометрические измерения, выполненные в Баксанской нейтринной обсерватории показали, что активность ^{226}Ra и его дочернего изотопа ^{214}Bi была на уровне сотен мБк/кг [85]. По этой причине исходный материал был подвергнут дополнительной очистке.

Таблица 9. Содержание примесей некоторых элементов в исходных материалах и шихте $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, измеренных методом ИСП-МС (измерения АСИЦ ИПТМ РАН). ПО - «предел определения».

| Элемент | $^{100}\text{MoO}_3$, мкг/г | $^{40}\text{CaCO}_3$, мкг/г | Шихта, мкг/г |
|---------|------------------------------|------------------------------|---------------|
| Sr | < ПО (0.05) | 24-27 | 3.0 |
| Ba | < ПО (0.3) | 24-28 | 8.4 |
| Th | < ПО (0.0007) | < ПО (0.0008) | < ПО (0.0009) |
| U | < ПО (0.0002) | < ПО (0.0002) | < ПО (0.0003) |

2.5.3 Глубокая очистка соединений кальция CaCO_3 и $\text{Ca}(\text{HCOO})_2$.

Методика глубокой очистки соединений кальция в виде органической соли формиата кальция $\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ была разработана и выполнена ФГУП «Комбинат „Электрохимприбор“». Наилучших результатов удалось добиться, применив метод двойной перекристаллизации формиата кальция. При этом были подобраны оптимальные условия растворения, перекристаллизации и термообработки осадка с целью достижения требуемой химической чистоты при минимальных потерях изотопнообогащенного кальция на всех стадиях химической переработки.

Как видно из Таблицы 10, новая технология очистки кальция в виде формиат кальция позволяет снизить содержание примесей ^{40}K , ^{208}Tl , ^{228}Ac и ^{226}Ra (^{214}Bi) в 20, более чем в 8, 160 и 5 раз, соответственно, по сравнению со стандартной процедурой очистки.

Для косвенного контроля содержания радия в образцах измерялось (методом ИСП-МС) содержание примесей стронция и бария после различных стадий очистки, и, по результатам, делался вывод о предполагаемом снижении концентрации радия (Sr, Ba и Ra принадлежат к одной и той же подгруппе таблицы Менделеева, и, следовательно, в процессе химического передела их поведение также одно и то же). Содержание стронция и бария снизилось с 24-25 мкг/г (стандартная технология очистки карбоната кальция) до ≤ 1 мкг/г (технология очистки в виде формиата кальция).

Таблица 10. Содержание радиоактивных примесей в карбонате кальция $^{40}\text{CaCO}_3$ (образец №1) и формиат кальция $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ (образец №2). Измерения методом низкофоновой гамма-спектрометрии (БНО ИЯИ РАН).

| Изотоп | Активность, Бк/кг | |
|--|--|--|
| | Образец №1 CaCO_3 Ноябрь 2009 | Образец №2 $\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ Октябрь 2011 |
| ^{40}K | $(7.3 \pm 3.1) \cdot 10^{-2}$ | $(3.6 \pm 2.7) \cdot 10^{-3}$ |
| ^{208}Tl [^{228}Th] | $(4.4 \pm 3.6) \cdot 10^{-3}$ [$(1.2 \pm 1.0) \cdot 10^{-2}$] | $\leq 5.2 \cdot 10^{-4}$ |
| ^{214}Bi | $(2.6 \pm 0.2) \cdot 10^{-1}$ | $(5.1 \pm 0.2) \cdot 10^{-2}$ |
| ^{228}Ac [^{228}Th] | $(1.6 \pm 0.2) \cdot 10^{-1}$ | $(1.0 \pm 0.8) \cdot 10^{-3}$ |

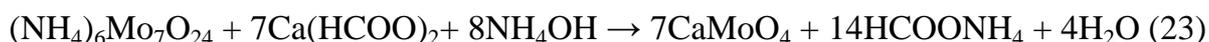
2.5.4 Доочистка исходных компонент и синтез шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.

Синтез шихты с доочисткой исходных компонент производился на предприятии ЗАО «НЕОХИМ» (Москва).

Два метода широко используются для синтеза шихты CaMoO_4 : твердофазный синтез непосредственно из оксидов кальция и молибдена, смешанных в стехиометрическом соотношении:



и реакция соосаждения из раствора, которая может быть записана следующим образом:



Использовался способ осаждения из раствора, который является предпочтительным в нескольких отношениях: во-первых, мы гарантировано получаем стехиометрический состав, во-вторых, при кристаллизации из

раствора возможно проведение дополнительной очистки как парамолибдата аммония $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}$, так и формиата кальция $\text{Ca}(\text{HCOO})_2$.

В результате дополнительной очистки содержание радия (^{226}Ra) в формиате кальция, согласно измерениям в БНО ИЯИ РАН, снизилось с 51 мБк/кг до 1.4 мБк/кг (дополнительное снижение в 3.6 раза по сравнению чистотой формиата кальция от производителя, см. Таблицу 8 2-й и 3-й столбец).

Достигнута высокая степень очистки практически от всех примесей стронция и бария. Причем содержание урана и тория, измеренное с использованием более чувствительной методики ИСП-МС [84], оказалось на уровне 0.3×10^{-7} мас.% и 0.9×10^{-7} мас.% соответственно (Таблица 9), что удовлетворяет необходимым требованиям, предъявляемым к чистоте шихты по этим примесям.

Из данных Таблицы 8 следует, что на уровне чувствительности установки содержание радиоактивных примесей для формиата кальция $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ и шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ совпадает. За исключением ^{226}Ra , измеренное содержание которого в образце $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$ составляет 1.4 мБк/кг. Однако с учетом дополнительной очистки по ^{226}Ra (коэффициент очистки ≥ 40) в процессе двойной перекристаллизации при росте монокристалла (см. п. 2.6) следует что, содержание изотопа ^{226}Ra в последнем ожидается на уровне 0.04 мБк/кг.

Таким образом, оксид молибдена, изготовленный на предприятии ОАО «Электрохимический завод» и формиат кальция, изготовленный по технологии предприятия ФГУП «Комбинат „Электрохимприбор“» (с последующей доочисткой на предприятии ЗАО «НЕОХИМ»), и шихта $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, удовлетворяют требованиям на содержание долгоживущих изотопов ^{238}U , ^{232}Th и ^{226}Ra для создания детектора коллаборации AMORE (с учетом доочистки по ^{226}Ra в процессе двойной перекристаллизации при росте монокристаллов).

2.6 Процесс производства монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и сцинтилляционных элементов на их основе

Монокристаллы молибдата кальция выращиваются из шихты методом Чохральского (метод вытягивания из расплава) на предприятии ОАО «Фомос-Материалс» (Москва). Схема метода представлена на Рисунке 19.



Рис. 19. Схема выращивания кристаллов методом Чохральского.

Температура плавления молибдата кальция ($1445\text{ }^{\circ}\text{C}$) позволяет выращивать монокристаллы в кислородной атмосфере с использованием платинового тигля (температура плавления платины $1769\text{ }^{\circ}\text{C}$), либо в безкислородной атмосфере с использованием иридиевого тигля (температура плавления $2454\text{ }^{\circ}\text{C}$). Оба подхода были использованы в рамках разработки технологии выращивания молибдата кальция для эксперимента по поиску безнейтринного двойного бета-распада. После анализа полученных результатов

было решено выращивать кристаллы в кислородной атмосфере из платинового тигля диаметром 90 мм и высотой 70 мм. Данные опыты также позволили оптимизировать направление роста кристаллов относительно их кристаллографических осей. Подробнее об этом рассказано в [86]. Был разработан метод двойной перекристаллизации, позволяющий снизить содержание примесей в конечном монокристалле.

Окончательную технологию производства монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ можно представить как последовательность следующих шагов. Исходный материал (компактизованную шихту в форме «сплавленных» таблеток), загружают в платиновый тигель и нагревают до температуры плавления. Затем в расплав погружают затравочный кристалл размером в несколько миллиметров, установленный в охлаждаемый кристаллодержатель и ориентированный в нужном кристаллографическом направлении. После частичного оплавления конца затравки и достижения определенного температурного режима начинается вертикальное вытягивание с высокой скоростью 3-5 мм/час. При этом затравка вращается с угловой скоростью 5-12 мин⁻¹.

Таким образом, выращивается так называемый „сырьевой кристалл“, который затем вновь загружают в тигель и расплавляют с добавлением дополнительной шихты. Далее процесс повторяется вновь, при этом скорость выращивания конечного кристалла составляет 2-3 мм/ч. Процесс выращивания кристалла завершается отрывом его от расплава. Перед отрывом диаметр кристалла плавно уменьшают, создавая обратный конус, чтобы предотвратить тепловой удар, приводящий к размножению дислокаций в конечной части кристалла. Охлаждение выращенного кристалла (були) внутри ростовой установки производят в течение 12 часов для предотвращения образования в нем термических напряжений и дислокаций.

Выращенная буля имеет голубоватый оттенок, связанный со снижением числа ионов Mo^{6+} (рис. 20). Для обесцвечивания и достижения высокой

прозрачности кристалла применяется отжиг в течение нескольких часов в окислительной (кислородной) атмосфере при температуре 1250 °С.



Рис. 20. Выращенная буля до отжига (слева) и после отжига (справа).

Для получения сцинтилляционных элементов конусные части полученных буль отрезаются и затем их торцы оптически полируются. В результате сцинтилляционные элементы имеют цилиндрическую форму с эллиптическим основанием, неполированную боковую поверхность и оптически полированные торцы.

Первые сцинтилляционных элементы (СЭ) на основе монокристаллов молибдата кальция из изотопно-обогащённого исходного сырья были выращены по описанному методу и использованы для проведения настоящей работы. При производстве СЭ СБ28 и СБ29 была использована процедура двойной перекристаллизации, а СЭ С35 был получен напрямую из исходной шихты, что значительно повлияло на содержание в нём радиоактивных примесей. Подробное исследование удельной активности данных СЭ дано в Главе 4. Их изображения приведены на Рисунке 21, а свойства в Таблице 11.



СБ28

СБ29

С35

Рис. 21. Сцинтилляционные элементы СБ28, СБ29 и С35.

Таблица 11. Свойства сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и С35.

| | СБ28 | СБ29 | С35 |
|------------------------|-------------|-------------|------------|
| 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 |

Глава 3. Характеризация образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$

Целью проведённых работ по характеризации образцов монокристаллов являлось изучение возможности использования сцинтилляционных элементов на основе молибдата кальция из изотопно-обогащённого сырья в сцинтилляционной фазе эксперимента АМоRE. Исследуемые характеристики образцов включали в себя: относительный световыход при комнатной и криогенной температурах, абсолютный световыход, прозрачность и удельную активность радиоактивных примесей.

3.1 Измерения относительного световыхода образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ при комнатной температуре

С целью совершенствования технологии выращивания монокристаллов и текущего контроля качества получаемых сцинтилляционных элементов была разработана и произведена установка для измерения относительного световыхода образцов буль молибдата кальция при комнатной температуре. На установке проводятся регулярные измерения. Образцы, мерные кубики размерами $1 \times 1 \times 1 \text{ см}^3$ (рис. 21 - С35), получают из отрезаемых конических частей выращенных буль. Все стороны кубиков отполированы до состояния оптической прозрачности.

Схема установки представлена на Рисунке 22. 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 ET Enterprises 9124B (с максимальной чувствительностью в зелёной области спектра) с использованием оптической смазки РАТЕ 7. Держатель с мерным кубиком, радиоактивный источник и ФЭУ помещаются внутрь тёмного ящика. Напряжение питания ФЭУ составляет -1900 В. 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.

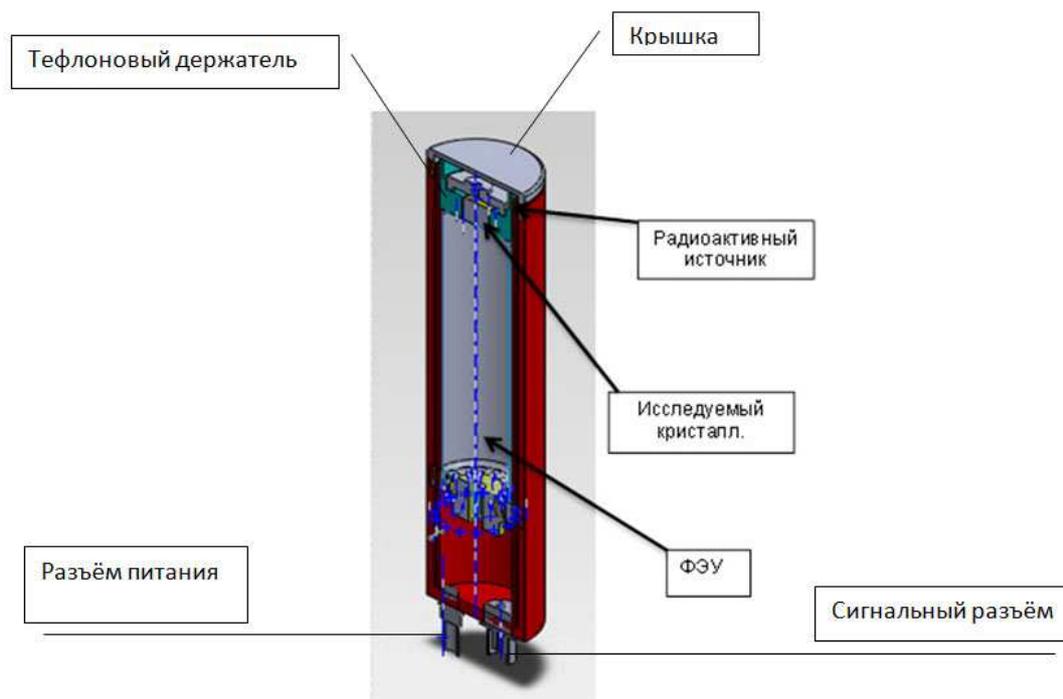
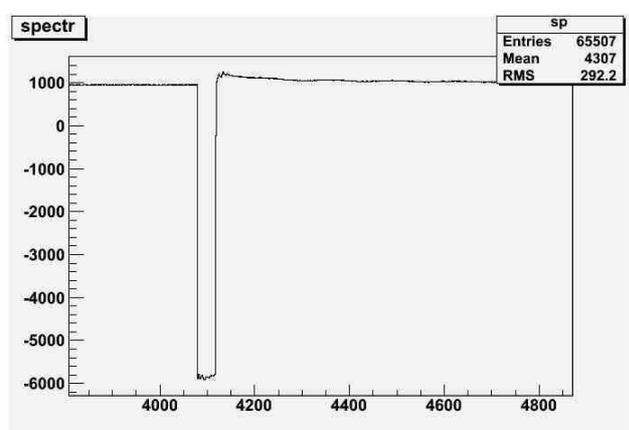


Рис. 22. Схема установки для измерения относительного световыхода образцов молибдата кальция при комнатной температуре.

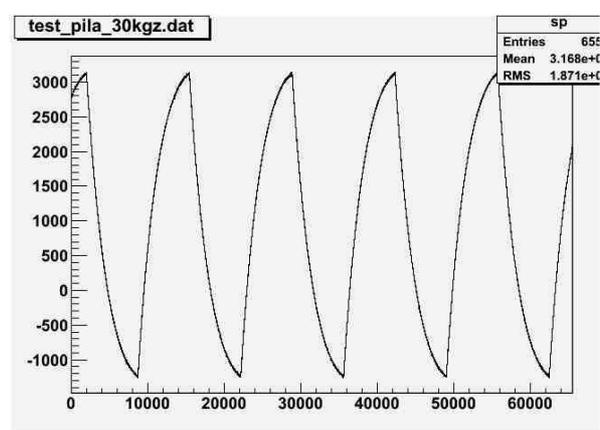
Аналоговый сигнал в диапазоне ± 1 В и полосой до 400 МГц, постоянно оцифровывается в буфер (FIFO) с фиксированным размером 4 килобайта. Частота оцифровки составляет 400 МГц, разрешение АЦП составляет 14 бит. При превышении, в каком либо из двух каналов, установленной величины порога (триггер) запись в буфер прекращается и продолжается запись в память платы. Глубина записи составляет 64 килобайта для каждого канала. Одновременно с этим при наступлении события «триггер» начинается передача уже оцифрованной информации по каналу USB2 в компьютер. После заполнения памяти непрерывное преобразование заканчивается и плата ожидает окончания передачи данных, после чего вся память очищается и начинается новый цикл заполнения буфера.

В результате время анализа одного события составляет 164 микросекунды. Длина слова для одного канала составляет 16 бит, причем старшие 14 разрядов используются для записи величины оцифровываемого сигнала, а младшие два бита будут использованы в дальнейшем для записи состояния двух дискриминаторов уровня. Для работы с платой используется программа AdcLab. Программа обеспечивает установку параметров необходимых для работы платы и сохранение в файл записанных данных (в отсчётах АЦП). В этом случае, формат данных знаковый 16 бит.

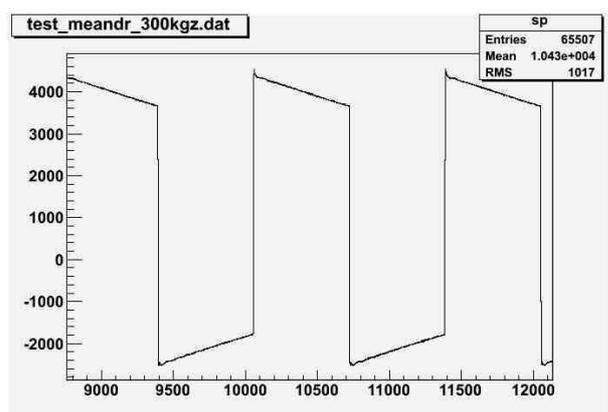
На Рисунке 23 приведены примеры оцифровки сигналов от генератора.



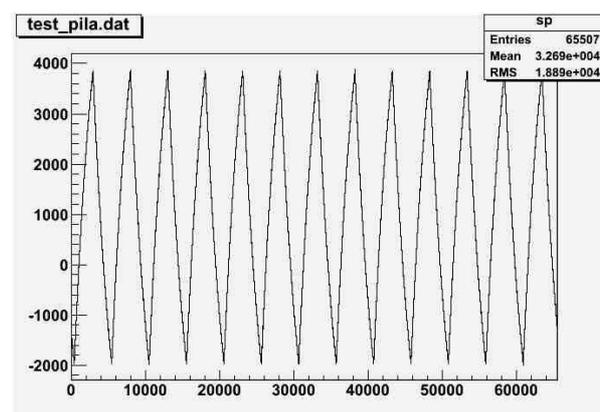
а) Импульс 100 наносекунд



б) Треугольный сигнал 30 КГц



в) Сигнал меандр 300 килогерц.



г) Треугольный сигнал

Рис. 23. Примеры оцифровки сигналов от генератора.

Из Рисунка 23 видно, что на входе присутствует фильтр высокой частоты первого порядка с параметрами 0.1 мкф и 50 Ом, что необходимо учитывать при обработке сигналов.

В измерениях используется альфа-источник ^{238}Pu ($E_\alpha = 5.6$ МэВ) и гамма-источник ^{137}Cs ($E_\gamma = 662$ кэВ). Для обработки данных и построения спектров источников была написана программа в среде ROOT [87]. Из сигнала вычитается подложка, вычисляемая функцией «background» ROOT. Форма сцинтилляционного сигнала после вычитания подложки показана на Рисунке 24.

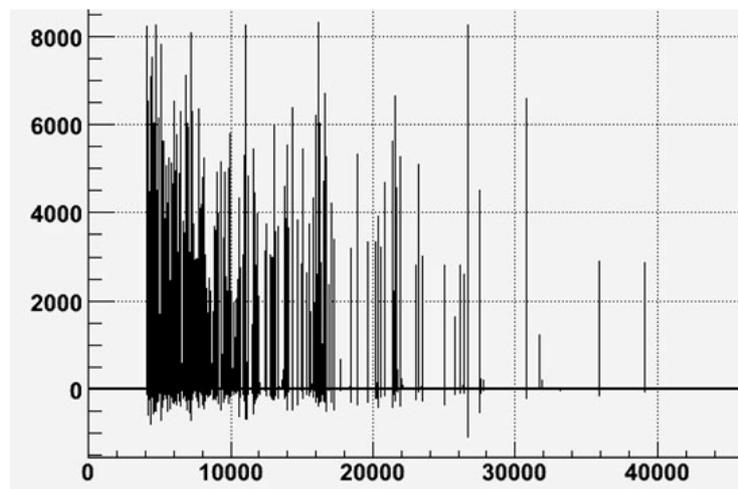
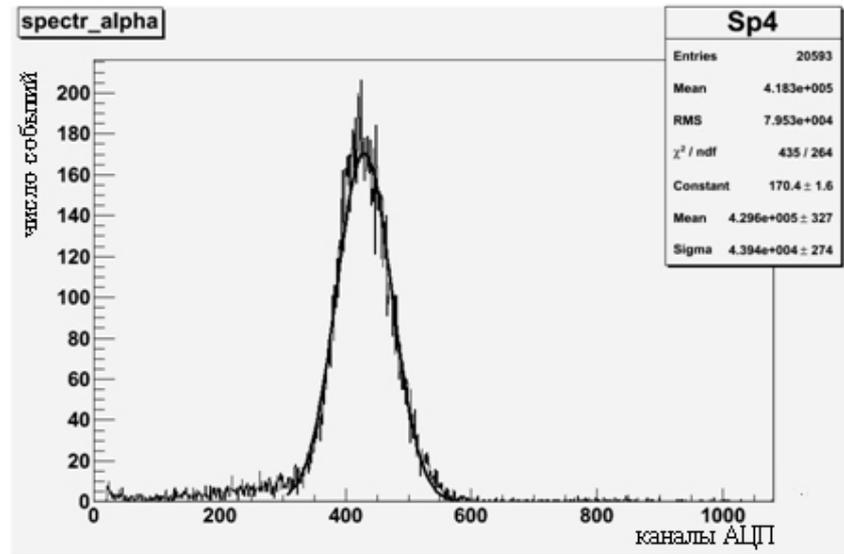
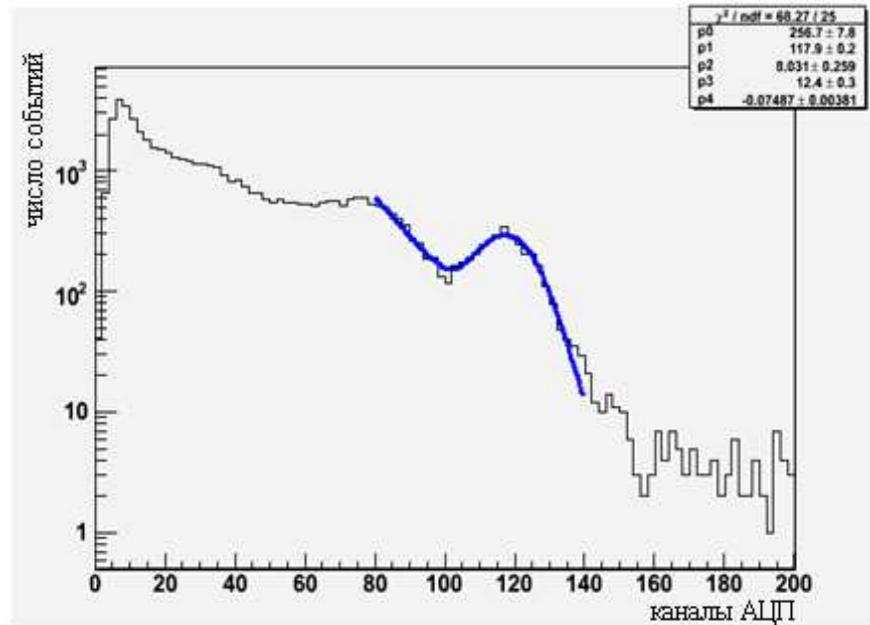


Рис. 24. Вид сцинтилляционного сигнала $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ полученного на установке для измерения относительного световыхода.

В программе обработки применяется алгоритм, позволяющий исключать сигналы, записанные не от начала (в случае если триггер ошибочно срабатывал в середине сцинтилляционного сигнала, и его начало оказывалось не записанным в файл). Примеры полученных спектров приведены на Рисунке 25. Величина относительного световыхода измеряемого образца определяется по положению пика излучения на спектре, относительно положения пика образца сравнения.



(a)

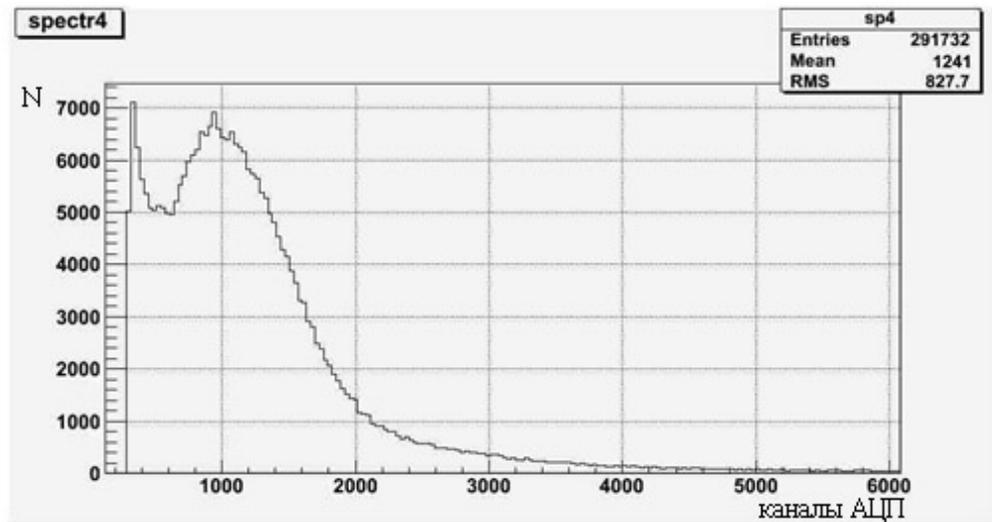


(б)

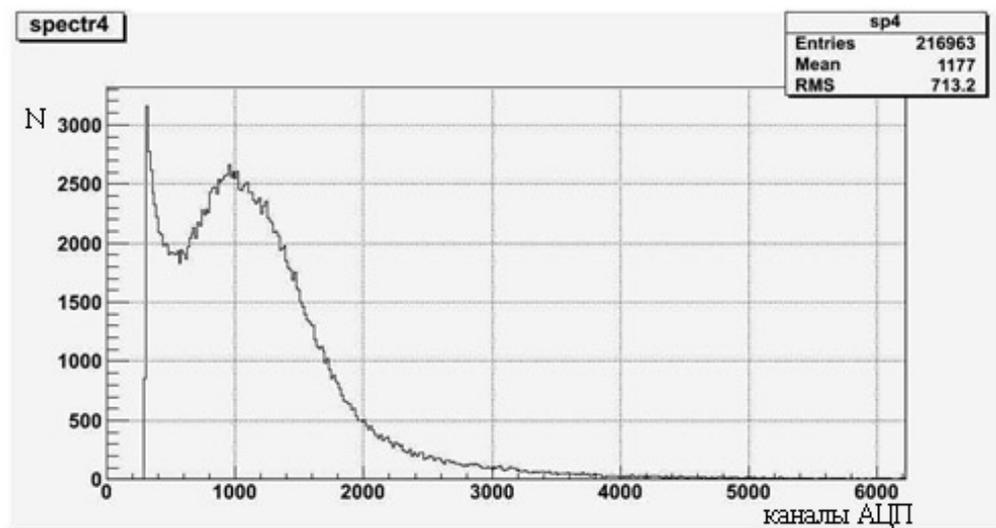
Рис. 25. Спектры источников ^{238}Pu (а) и ^{137}Cs (б) при измерениях с мерным кубиком $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. По оси абсцисс отсчёты АЦП.

Для проверки стабильности работы установки были построены распределения площадей отдельных однофотоэлектронных импульсов в сцинтилляционных сигналах. Выделение импульсов происходило по разработанному алгоритму в программе обработки данных. На Рисунке 26

представлены распределения площадей однофотозлектронных импульсов для сигналов от двух образцов с источником ^{238}Pu .



(a)



(б)

Рис. 26. Распределение площадей однофотозлектронных импульсов в сигналах для двух образцов. По оси абсцисс отсчёты АЦП.

Как видно из Рисунка 26 положение однофотозлектронного пика не изменяется, следовательно, изменение положение пика на спектре связано только со световыходом от разных образцов монокристаллов.

3.2 Измерение относительного световыхода $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в температурном диапазоне 8-295 К

Относительный световыход измерялся на образцах размерами 5 x 5 x 1 мм³. В качестве образца сравнения использовался кристалл, произведённый из необогащённых материалов на предприятии «КАРАТ» (Львов, Украина). Первые результаты измерений с этим кристаллом были опубликованы в [88].

Второй образец, произведёнными из изотопно-обогащённых материалов, был взят из булы С35 (см. п. 2.6). Измерения проводились на той же установке, что и в [88], с использованием методики многофотонного счёта (multi-photon counting) [89]. Данный метод позволяет измерять световыход и кривые высвечивания сцинтилляционных кристаллов в широком диапазоне температур. Для этого регистрируются отдельные фотоны в каждой сцинтилляционной вспышке. Распределение времени появления фотонов позволяет установить характеристики высвечивания сцинтиллятора. Так, например, количество импульсов во вспышке (соответствующих одному фотону) пропорционально световыходу сцинтиллятора. Для получения значений времени высвечивания и световыхода требуется обработка большого числа сцинтилляционных вспышек (10^3 - 10^4) [89].

В измерениях использовался гелиевый криостат с оптическим окном для прохождения света сцинтилляции, фотоумножитель 9124А (Electron Tubes) с повышенной чувствительностью в зелёной области спектра и альфа-источник ^{241}Am ($E_\alpha = 5.5$ МэВ).

Изменение главной компоненты постоянной высвечивания сцинтилляций $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в зависимости температуры показано на Рисунке 27а. Эта зависимость соответствует результатам измерений с образцом из природного сырья [88]. Возрастание времени высвечивания при уменьшении температуры связано с процессом температурного гашения. Однако при очень низких температурах (<20 К) основной причиной увеличения времени высвечивания является захват электронов на метастабильных уровнях эмиссионных центров [86].

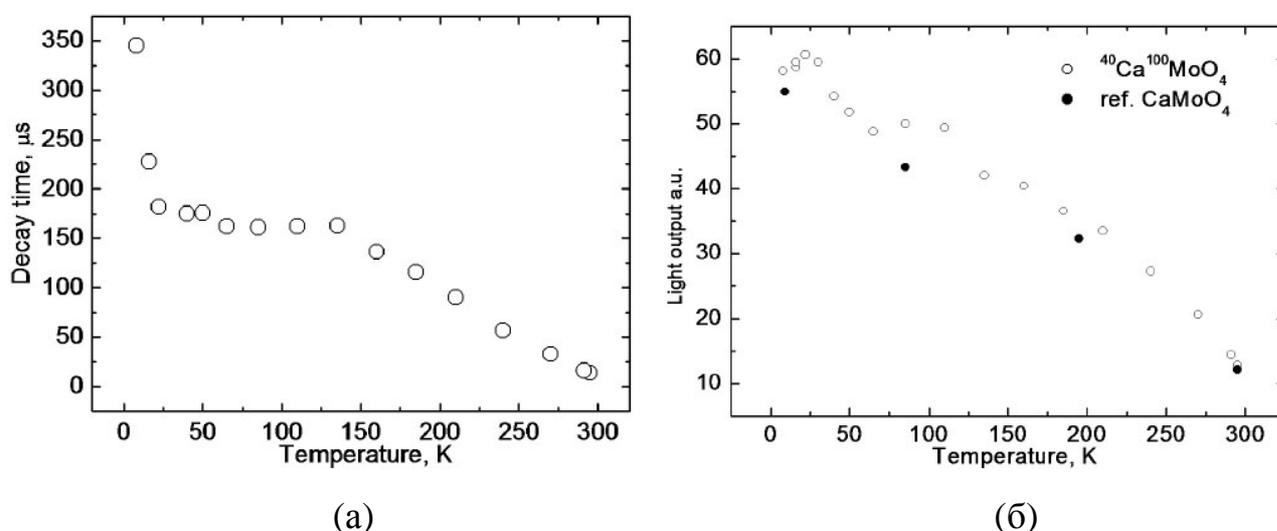


Рис. 27. Температурная зависимость постоянной высвечивания монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ (а) и температурная зависимость световыхода образца $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и референсного CaMoO_4 (б).

На Рисунке 27б показана температурная зависимость световыхода для образца $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и образца сравнения CaMoO_4 . Значения постоянной высвечивания и относительного световыхода при температурах 8 и 295 К представлено в Таблице 12. Как видно из Таблицы 12 и Рисунка 27б световыход монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ из изотопно-обогащённого сырья находится на уровне световыхода CaMoO_4 .

Таблица 12. Сцинтилляционные свойства кристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ при температурах 8 К и 295 К.

| Температура, К | 295 | 8 |
|---|----------------|--------------|
| Постоянная высвечивания, мкс | 16.5 ± 0.3 | 345 ± 25 |
| Световыход (относительно референсного CaMoO_4), % | 105 ± 39 | 106 ± 32 |

3.3 Измерение показателя ослабления (прозрачности) монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$

Измерялась прозрачность двух образцов монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ размерами $10 \times 10 \times 10 \text{ мм}^3$, полученных из буль С35 и СБ28 (рис. 21). Измерения проводились на спектрофотометре Cary-5000 UV-VIS-NIR в диапазоне длин волн $\lambda = 250\text{-}3300 \text{ нм}$ в трех различных направлениях, показанных на Рисунке 28 (направление 3 соответствует кристаллографической оси образца).

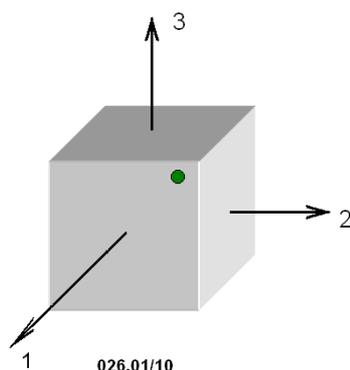


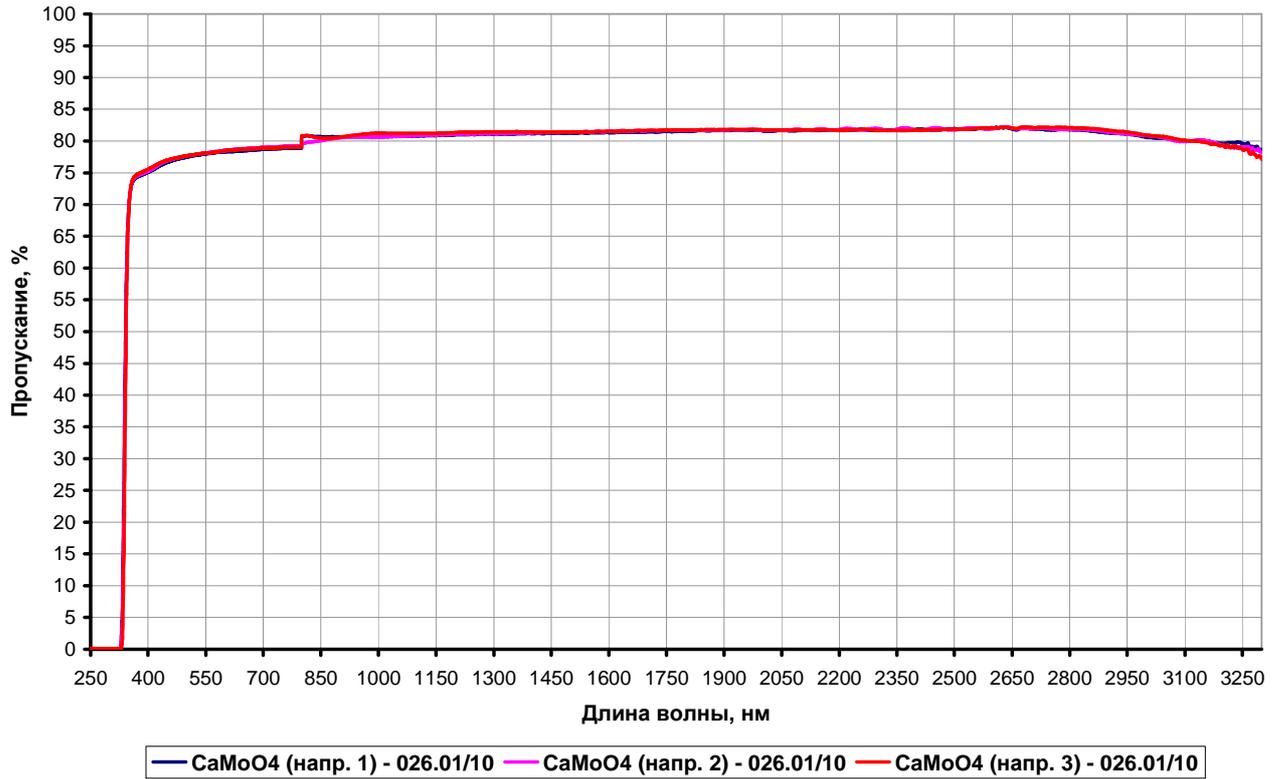
Рис. 28. Направления измерений прозрачности в образце.

Спектр пропускания образца С35 представлен на Рисунке 29а. Граница полосы поглощения кристалла находится в районе длины волны 330 нм (рис. 29б). В диапазоне 540-570 нм, соответствующему максимуму высвечивания молибдата кальция [62], прозрачность достигает 78%.

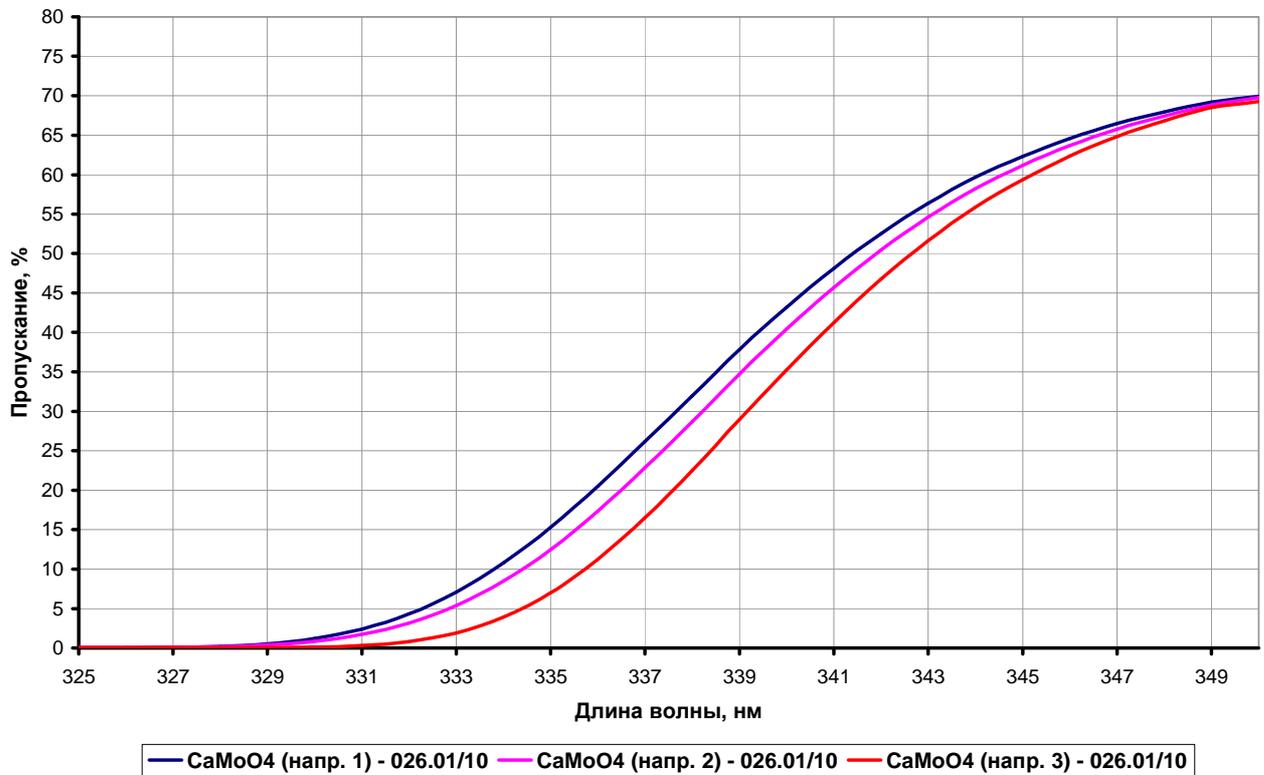
Показатель ослабления $\mu(\lambda)$ рассчитывался по формуле:

$$\mu(\lambda) = -\frac{1}{s} \ln \tau_i(\lambda), \quad (24)$$

где s – толщина образца; τ_i – коэффициент внутреннего пропускания в данном направлении. Значения показателя ослабления образца С35 для длин волн в максимуме высвечивания молибдата кальция составляет $\sim 0.01 \text{ см}^{-1}$ (Таблица 13). Образец СБ28, отличающийся меньшей прозрачностью из-за остаточной голубизны, имеет показатель ослабления $\sim 0.07 \text{ см}^{-1}$ в диапазоне 540-570 нм.



(а)



(б)

Рис. 29. Спектр пропускания образца С35 монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.

Таблица 13. Показатель ослабления $\mu(\lambda)$ образца C35 $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для трёх направлений (рис. 28). Погрешность измерения $\pm 0.001 \text{ см}^{-1}$.

| Длина волны λ , нм | $\mu_1(\lambda), \text{ см}^{-1}$ | $\mu_2(\lambda), \text{ см}^{-1}$ | $\mu_3(\lambda), \text{ см}^{-1}$ |
|----------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 470 | 0.014 | 0.012 | 0.012 |
| 480 | 0.013 | 0.012 | 0.012 |
| 490 | 0.013 | 0.012 | 0.011 |
| 500 | 0.012 | 0.011 | 0.011 |
| 510 | 0.012 | 0.011 | 0.011 |
| 520 | 0.012 | 0.011 | 0.011 |
| 530 | 0.012 | 0.011 | 0.011 |
| 540 | 0.011 | 0.010 | 0.011 |
| 550 | 0.011 | 0.010 | 0.011 |
| 560 | 0.011 | 0.010 | 0.010 |
| 570 | 0.011 | 0.010 | 0.010 |

3.4 Абсолютный световыход монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ ⁵

3.4.1 Методика измерений. Абсолютный световыход Y определяется как отношение числа фотонов, появившихся в сцинтилляторе N_0 , к энергии E , выделившейся при прохождении γ -кванта:

$$Y = N_0 / E \quad (25)$$

Измеренное число фотонов N связано с N_0 через эффективность светосбора η и эмиссионно-взвешенную эффективность регистрации ε_λ как:

$$N = N_0 \eta \varepsilon_\lambda \quad (26)$$

Эмиссионно-взвешенная эффективность детектора учитывает изменения квантовой эффективности детектора при различных длинах волн высвечивания:

$$\varepsilon_\lambda = \frac{\int \varepsilon(\lambda) s(\lambda) d\lambda}{\int s(\lambda) d\lambda}, \quad (27)$$

где $\varepsilon = \varepsilon(\lambda)$ и $s(\lambda)$ это квантовая эффективность и эмиссионная интенсивность, соответственно.

⁵ Данный параграф написан на основе статьи V. Alenkov, O.A. Buzanov, N. Khanbekov, V.N. Kornoukhov, H. Kraus, V.B. Mikhailik and V.A. Shuvaeva «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).

Основная проблема измерений абсолютного световыхода заключается в точном определении значения η . Эффективность светосбора является комплексной свёрткой оптических свойств кристалла (поглощение, рассеяние, отражение, обработка поверхности) и геометрии эксперимента (форма кристалла, размеры, соединение с детектором и т.д.). Для снижения неопределённости, связанной со значением η , лучше всего, чтобы этот параметр был близок к единице. Существует несколько практических приёмов, позволяющих существенно увеличить светосбор за счёт уменьшения световых потерь и самопоглощения. В частности, уменьшить потери света можно используя смазку и оборачивая поверхность кристалла диффузным отражателем (тефлоновой лентой). Поглощение света в кристалле может быть уменьшено при использовании в измерениях тонких образцов (~ 1 мм) [90-93]. Для таких экспериментов считается, что потери света пренебрежимо малы, а в конечные результаты вносятся только поправка на отражающую способность тефлона (0.95-0.98). Однако для неорганических сцинтилляторов с высоким коэффициентом преломления существует выраженная зависимость между световыходом и толщиной образца [92, 94]. Кроме того расхождения между различными измерениями оказываются выше ожидаемых [93], что с большой вероятностью связано с недоучётом потерь света.

Для характеристики сцинтилляторов с высоким коэффициентом преломления необходимо точно определять эффективность светосбора η . При этом Монте-Карло моделирование затрудняется недостатком информации об исходных параметрах [63]. Для решения этой проблемы была разработана методика MCRIM (Monte Carlo refractive index matching) [95], позволяющая исключить трудноопределяемые параметры из моделирования. 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 .

Для упрощения моделирования, прежде всего, следует исключить неопределённость, связанную с обработкой поверхности кристалла (требуются

одинаковая полировка всех сторон кристалла и отсутствие отражателей). В таком случае функция, описывающая эффективность светосбора, включает в себя только два неизвестных параметра: коэффициенты поглощения α_{abs} и рассеяния α_{scat} . Другие параметры, например, длина волн в максимуме высвечивания кристалла, коэффициент преломления и размеры кристалла, известны.

Коэффициент поглощения можно получить измерением прозрачности кристаллов T , которая связана с α_{abs} через закон Бера:

$$T = \exp(-\alpha_{\text{abs}}d), \quad (28)$$

где d – толщина слоя вещества, через которое проходит свет.

Таким образом, для определения η в уравнении (26) остаётся неизвестным только коэффициент рассеяния α_{scat} . Постоянная N_0 может быть исключена из анализа, если взять отношение двух различных измерений значения N :

$$R_{1/2} = \frac{N_0 \eta_1 \varepsilon_\lambda}{N_0 \eta_2 \varepsilon_\lambda} = \frac{\eta_1}{\eta_2}. \quad (29)$$

Следовательно, необходимы такие измерения, которые давали бы информацию о значении α_{scat} и могли бы быть рассчитаны в Монте-Карло моделировании. Для этого в эксперименте небольшой зазор между сцинтиллятором и окном ФЭУ заполняется веществами с различным коэффициентом преломления n_{gap} . Изменение эффективности светосбора вследствие изменения n_{gap} влечёт соответствующее изменение числа фотонов, вышедших из кристалла, без влияния на коэффициент рассеяния. Тогда меняя в моделировании значение α_{scat} можно подобрать значение $R_{1/2}$, соответствующее полученному в измерениях. Когда значение α_{scat} определено становится возможным получить значение η для любого будущего эксперимента и, в конечном счёте, рассчитать N_0 из уравнения (26).

3.4.2 Измерения и моделирование. В измерениях использовался образец $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, размерами $10 \times 10 \times 10 \text{ мм}^3$, взятый из були С35. Все поверхности

образца были отполированы с дефектами не более 50 нм. Пропускание света на длине волны 540 нм составляло 78% (рис. 29а), что с учётом многократного рассеяния даёт значение прозрачности $T = 96\%$ и коэффициент поглощения $\alpha_{\text{abs}} = 0.039 \text{ см}^{-1}$. Для вычислений использовалось значение коэффициента преломления молибдата кальция $n = 2.01$.

Установка располагалась в светонепроницаемом ящике, использовался ФЭУ 9124А (ET Enterprise), радиоактивный гамма-источник ^{241}Am (59.5 кэВ). Для определения количества фотонов применялась техника многофотонного счёта [89]. Зависимость квантовой эффективности ФЭУ от длины волны была взята из данных предоставляемых изготовителем. Эмиссионный спектр CaMoO_4 был получен в [64]. Полная ошибка вычисления эмиссионно-взвешенной эффективности детектора ϵ_λ (включающая ошибку определения квантовой эффективности ФЭУ и ошибку спектроскопических измерений) составляла $\pm 10\%$ [91].

Зазор толщиной 0.05 мм создавался двумя проводами находящимися между кристаллом и окном ФЭУ (рис. 30). Были проведены измерения с пустым зазором ($n_{\text{gap}} = n_{\text{air}} = 1.00$) и с заполнением зазора оптическим гелем Cargille 0607 ($n_{\text{gap}} = n_{\text{gel}} = 1.46$). Длительность измерений составляла 10 минут для каждого случая. Перед каждым измерением установка разбиралась и собиралась заново для исключения влияния систематической ошибки. Ошибка измерений была получена из нескольких независимых измерений с одной и той же конфигурацией установки.

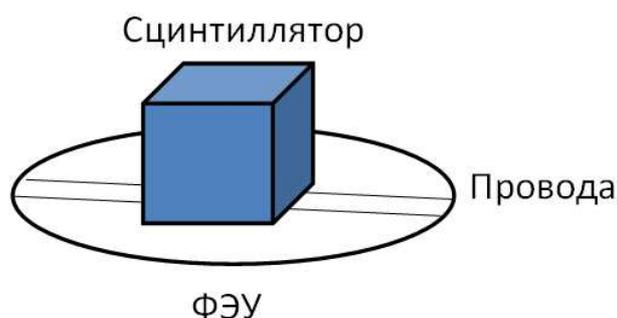


Рис. 30. Схема установки кристалла и ФЭУ с зазором толщиной 0.05 мм, создаваемым двумя проводами.

Для моделирования прохождения световых лучей использовалась программа ZEMAX [96]. Преимуществом этой программы является возможность добавления в модель поляризационных эффектов и расщепления световых лучей. Модель воспроизводила геометрию установки (рис. 30) и учитывала возможность полного внутреннего отражения световых лучей внутри кристалла. Окно ФЭУ в модели имело размеры 28 мм x 28 мм x 1 мм с круговой апертурой 28 мм, материал окна - борсиликатное стекло BK7 с коэффициентом преломления 1.52.

Для каждого значения коэффициента преломления зазора разыгрывалось 100000 лучей случайно распределённых в объёме кристалла. Результатом моделирования являлась доля энергии достигшей детектора, из полной энергии, выделившийся 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.

Для проверки адекватности модели на основе программы ZEMAX было проведено моделирование простой геометрии, для которой может быть получено аналитическое выражение для вычисления светосбора.

Энергия, выделившаяся на одной из плоскостей прямоугольного параллелепипеда с идеально полированной поверхностью равна [97]:

$$\eta = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\sqrt{n^2 - 1}}{n} \right), \quad (30)$$

где $n = n_{\text{кристалла}}/n_{\text{среды}}$ – отношение коэффициента преломления кристалла к коэффициенту преломления среды. Используя для $n_{\text{среды}}$ значения коэффициентов преломления воздуха (2.01) и оптического геля (1.38) соответственно, получаем эффективности светосбора для двух геометрий равные 6.6 % и 15.6 % соответственно. Моделирование в программе ZEMAX для случая 100% прозрачности (без поглощения и рассеяния) даёт такие же значения в пределах ошибки менее 1 %.

3.4.3 Определение абсолютного световыхода $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. На Рисунке 31 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. Значения световыхода получены из позиции пика на гистограмме, фитированного гауссианом в сериях из 4 независимых измерений. Световыход равен $N_{\text{air}} = 14.3 \pm 0.2$ и $N_{\text{gel}} = 24.5 \pm 0.4$ фотонов соответственно для воздушного зазора и зазора с оптическим гелем. Ошибки в результатах связаны с неопределённостью определения позиции пика, но не с шириной распределения.

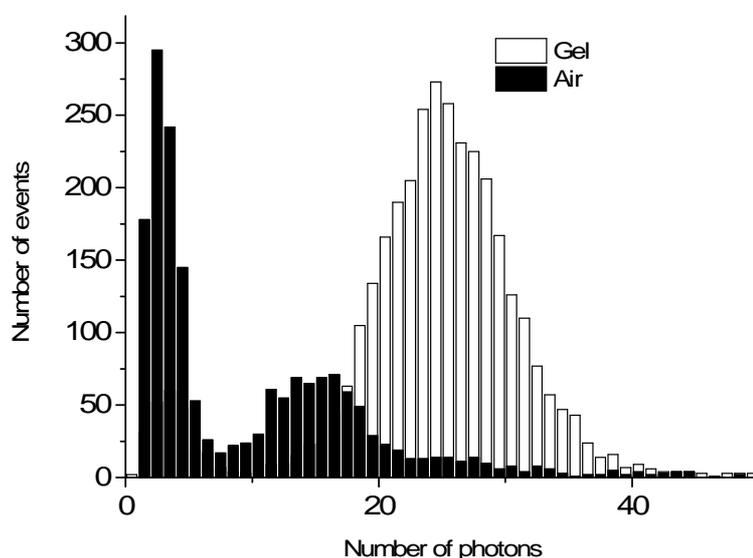


Рис. 31. Гистограмма распределений числа фотонов на одну сцинтилляционную вспышку в кристалле $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ от прохождения γ -кванта с энергией 59.5 кэВ для случаев с использованием оптического геля и без.

Отношение измеренных значений световыхода равно $R_{\text{air/gel}} = 0.583 \pm 0.012$. Как было сказано выше, 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 cm^{-1} (рис. 32).

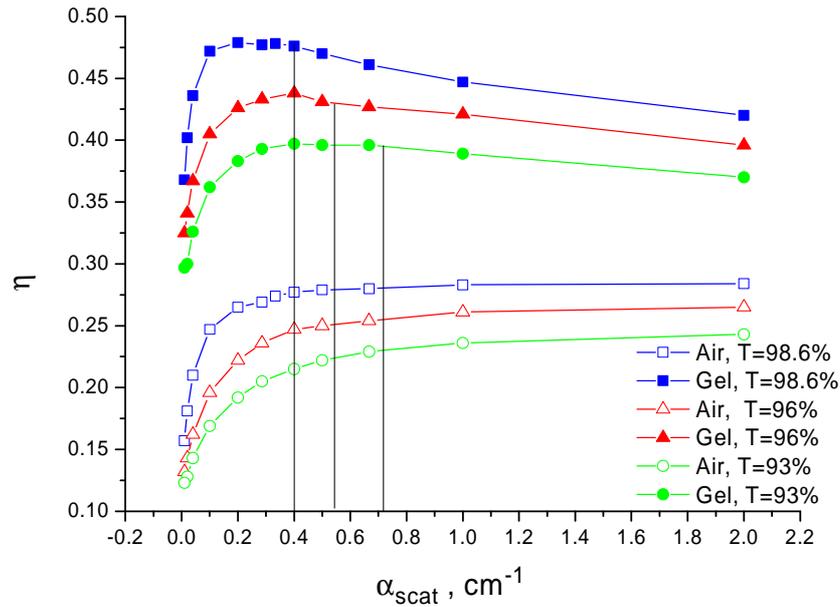


Рис. 32. Результаты Монте-Карло моделирования зависимости эффективности светосбора от коэффициента рассеяния для двух схем измерений (с использованием оптического геля и без) и трёх значений прозрачности кристалла.

Для оценки влияния прозрачности T на η моделирование проводилось для трёх значений T : номинальной 96.0%, а также 93.0 % и 98.6%. Два последних значения соответствуют пределам прозрачности в диапазоне длин волн 400-650 нм при измерениях с различной ориентацией кристалла (см. п. 3.3). Как видно из кривых на Рисунке 32 эффективность светосбора растёт с увеличением прозрачности и объёмного рассеяния, которые увеличивают вероятность выхода фотона из кристалла. Однако влияние рассеяния на η более сложно. Для схемы с воздушным зазором, когда α_{scat} достигает 0.5 см^{-1} , значения η начинают располагаться на плато. Для случая схемы измерений с гелем эффективность светосбора достигает максимума при значениях α_{scat} в районе $0.3\text{-}0.4 \text{ см}^{-1}$, и затем начинает медленно снижаться.

Зависимость отношения $R_{\text{air/gel}} = \eta_{\text{air}}/\eta_{\text{gel}}$ от α_{scat} представлена на Рисунке 33. Из сравнения результатов моделирования и экспериментальных данных

получается значение коэффициента рассеяния равное $\alpha_{\text{scat}} = 0.54 \pm 0.10 \text{ см}^{-1}$. С учётом этого значения из зависимостей на рисунке 32 получаем эффективность светосбора равную 25 % и 43% для схем измерений с воздушным зазором и оптическим гелем между кристаллом и ФЭУ соответственно.

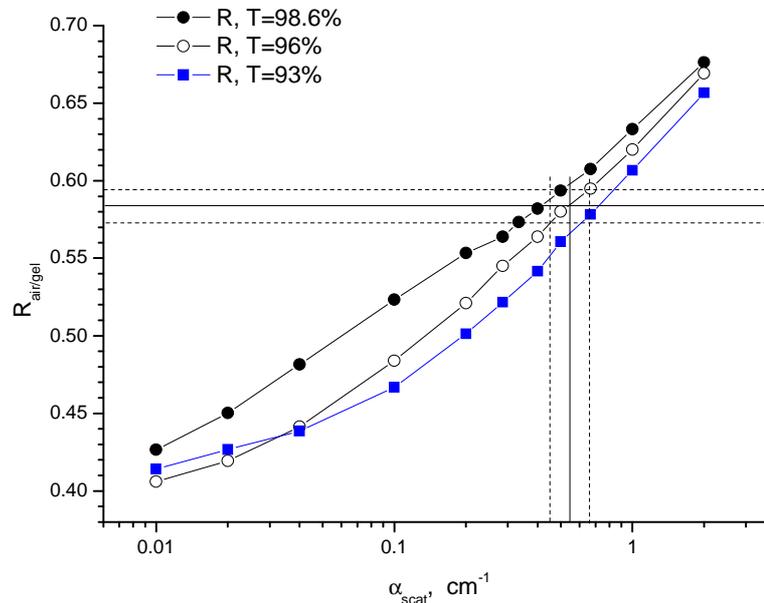


Рис. 33. Зависимость отношения $R_{\text{air/gel}}$ от коэффициента рассеяния. Экспериментальное значение $R_{\text{air/gel}} = 0.583 \pm 0.012$, с учётом ошибок, отмечено горизонтальными линиями.

Зная эффективность светосбора, мы можем вычислить световыход для обеих схем измерений по формулам (25, 26):

$$Y_1 = \frac{N_{\text{air}}}{\varepsilon_{\lambda} \eta_{\text{air}} E} = \frac{14.3}{0.127 \times 0.25 \times 59.5} = 7.5 \text{ фотон/кэВ}$$

$$Y_2 = \frac{N_{\text{gel}}}{\varepsilon_{\lambda} \eta_{\text{gel}} E} = \frac{24.5}{0.127 \times 0.43 \times 59.5} = 7.5 \text{ фотон/кэВ}$$

Как было отмечено, η существенно зависит от прозрачности кристаллов (рис. 32). Для определения ошибок из-за неопределённости в измерениях прозрачности эффективность светосбора была рассчитана для предельных значений прозрачности 98.6 и 93.0 % (Таблица 14).

Таблица 14. Эффективность светосбора $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для разных значений прозрачности.

| T, % | $\alpha_{\text{abs}}, \text{cm}^{-1}$ | $\alpha_{\text{scat}}, \text{cm}^{-1}$ | $\eta_{\text{air}}, \%$ | $\eta_{\text{gel}}, \%$ |
|------|---------------------------------------|--|-------------------------|-------------------------|
| 98.6 | 0.014 | 0.42 | 28 | 48 |
| 96.0 | 0.039 | 0.54 | 25 | 43 |
| 93.0 | 0.072 | 0.73 | 23 | 40 |

Данные Таблицы 14 позволяют сделать консервативную оценку погрешностей определения η на уровне $\pm 12\%$. Принимая во внимание ошибки вычисления эмиссионно-взвешенной эффективности детектора ($\pm 10\%$) и ошибку измерений числа фотонов ($\pm 1.6\%$), полная ошибка определённого значения световыхода оставляет $\pm 16\%$. Таким образом, световыход монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ при комнатной температуре равен 7.5 ± 1.2 фотон/кэВ. Данное значение находится в хорошем согласии с величиной световыхода $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, рассчитанного относительно световыхода кристалла CaWO_4 с учётом известных значений эмиссионно-взвешенной эффективности и эффективности светосбора $Y = 7.1 \pm 1.7$ фотон/кэВ [63].

3.4.4 Сравнение с другими измерениями. Результаты измерений абсолютного световыхода кристаллов CaMoO_4 ранее были опубликованы в нескольких работах разных авторов. В статье [98] измерения проводились с использованием лавинных светодиодов, что позволило провести точную калибровку детектора. Однако авторами была использована достаточно оптимистическая эмпирическая поправка для расчета эффективности светосбора (90%). Как было сказано ранее, такой расчёт может быть применён для материалов с относительно низким коэффициентом преломления (< 1.9) и к тонким образцам с достаточно низким самопоглощением света. Моделирование измерений [98] с использованием оптических параметров полученных в настоящем исследовании даёт значение $\eta = 56\%$ (для

кубического образца покрытого светоотражающей плёнкой и соединённого с ФЭУ с использованием оптической смазки). Тогда коррекция полученной в [98] величины световыхода 3.5 фотон/кэВ при эффективности детектора 80% даёт новое значение 7.8 фотон/кэВ. По-видимому, тоже можно сказать про величину световыхода 2.6 фотон/кэВ из работы [62].

В работе [99] абсолютный световыход был получен с использованием формулы, связывающей энергетическое разрешение со статистической ошибкой сигнала детектора. Однако не учитывался вклад неопределённости внутреннего разрешения кристалла, которая может быть столь же высокой из-за статистических флуктуаций отклика ФЭУ [100].

В статье [88] в относительных измерениях с кристаллом CaWO_4 было получено значение световыхода 8.9 ± 3.5 фотон/кэВ, которое в пределах ошибок находится в согласии со значением представленным выше.

3.5 Измерение удельной гамма-активности монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ на полупроводниковом детекторе⁶

Удельная гамма-активность монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ измерялась на подземном низкофоновом спектрометре с тремя детекторами из сверхчистого германия в Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН. Подробное описание лаборатории и методики измерений приведено в [82].

Спектрометр расположен в подземной низкофоновой камере на глубине 660 м в.э. Фон космических лучей на данной глубине снижен толщиной земли в ~2000 раз. Фон γ -квантов естественной радиоактивности в рабочем помещении снижен в 200 раз по сравнению с голой выработкой путём использования при

⁶ Описание установки в данном параграфе сделано на основе препринта И.Р.Барабанов, О.А.Бузанов, А.В.Вересникова Ю.М.Гаврилюк, А.М.Гангапшев, А.М.Гежаев, А.Е.Досовицкий, В.В.Казалов, В.Н.Корноухов, В.В.Кузьминов, С.И.Панасенко, С.С.Раткевич, Н.Д.Ханбеков, К.В.Эфендиев, С.П.Якименко «Содержание радиоактивных изотопов в исходных материалах и в готовом сцинтилляционном кристалле CaMoO_4 по данным подземного низкофонового полупроводникового спектрометра». Препринт ИЯИ РАН, №.1237/2009 – М., 2009.

строительстве низкофонового бетона на основе дунита и засыпки из дунитового гравия [101]. В рабочем помещении размещена дополнительная низкофоновая защита, состоящая из 8 см борированного полиэтилена + 23 см Pb + 12 см Cu. В центре медного блока защиты имеется прямоугольная полость размерами 30 x 30 x 30 см³, в которой располагаются головные части трёх сверхнизкофоновых полупроводниковых детекторов из сверхчистого германия. Масса каждого детектора около 1 кг. Защитные кожухи сделаны из высокочистой электролитической меди. Детекторы охлаждаются через хладопроводы, выведенные наружу защиты и опущенные в сосуды Дьюара с жидким азотом. Выходящие из сосудов пары жидкого азота используются для продувки рабочей полости. Два детектора (№1, №2) изготовлены из германия, обогащённого изотопом ⁷⁶Ge, и один (№3) – из германия природного состава. Для получения данных о радиационной чистоте исследуемых материалов используется информация с детектора №3. Образцы располагаются вплотную к этому детектору с целью достижения максимальной эффективности регистрации γ -излучения. На Рисунке 34 размещена фотография рабочей полости спектрометра с образцом, размещённым вокруг детектора №3.



Рис. 34. Фотография рабочей полости спектрометра с образцом, размещённым вокруг детектора №3.

В Таблице 15 приведены определявшиеся изотопы, а также эффективность их регистрации. Подробнее о контроле содержания опасных радиоактивных изотопов см. п. 2.5.1 настоящей работы. Расчёты эффективности регистрации выполнены с использованием программного пакета GEANT4 [102]. Величина эффективности для одной энергии зависит от атомного номера исследуемого материала, его полной массы, геометрии образца и геометрии взаимного расположения в сборке образец – детектор.

При переходе от скорости счета выбранной гамма-линии к активности излучающего радиоактивного изотопа (р.а.и.) учитывается относительный выход излучения с данной энергией на один распад (в.р.). В случае, если промежуточный изотоп ряда может распадаться несколькими способами (α -, β -) с образованием разных р.а.и., в том числе и контролируемого, для перехода от активности данного р.а.и. к активности изотопов в основной цепи ряда учитывается относительная доля распадов через контролируемый изотоп (коэффициент ветвления – к.в.). Активность начального изотопа ряда принимается равной активности р.а.и. в основной цепи из условия равновесия в ряду. Данные о принадлежности контролируемого изотопа к конкретному ряду, значения коэффициентов в.р. и к.в. [103] также приведены в Таблице 15.

Скорость счёта анализируемой гамма-линии определяется как разность скорости счёта детектора в заданном интервале энергий с образцом (эффект + фон) и без образца (фон). На Рисунке 35 представлен спектр фона ППД №3, накопленный за 946 часов измерений, приведённый к интервалу набора в 100 час. На нём хорошо видны основные линии р.а.и. ^{214}Pb - 351.9 кэВ (37.1 %) и ^{214}Bi - 609.3 кэВ (46.1%); 1120 кэВ (15%); 1765 кэВ (15.9%) и 2204 кэВ (4.99 %). В скобках приведены интенсивности линий на один распад атома р.а.и. из работы [104].

Таблица 15. Эффективность регистрации контролируемых изотопов на ППД БНО ИЯИ РАН.

| Изотоп | в.р., к.в. | Энергия γ -линии, кэВ | Эффективность регистрации, % | Измеряемое окно, кэВ |
|---|-----------------------------|------------------------------|------------------------------|----------------------|
| ^{40}K | в.р. = 0.107 | 1460.8 | 0.77 | ± 3 |
| ^{208}Tl (^{232}Th) | в.р.= 0.998; к.в.= 0.359 | 2614.5 | 0.49 | ± 3 |
| ^{214}Bi (^{238}U) | в.р.= 0.461; к.в.= 1.0 | 609.3 | 1.25 | ± 4 |
| ^{228}Ac (^{232}Th); | в.р. = 0.290; к.в. = 1.0 | 911.2 | 1.00 | ± 3 |

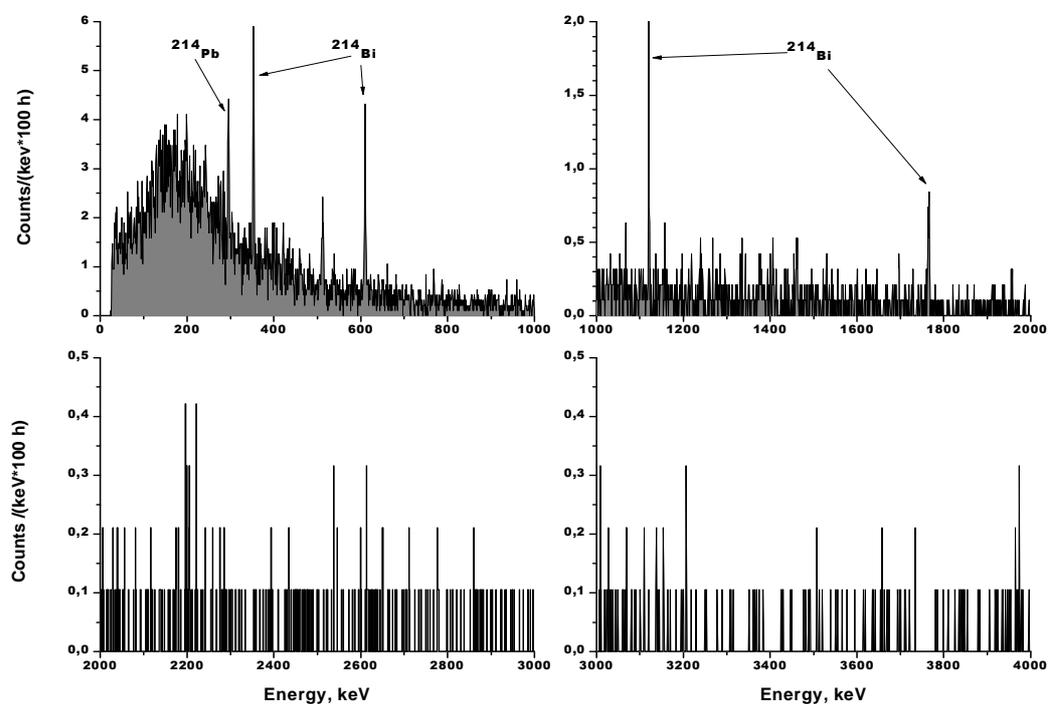


Рис. 35. Фоновый спектр ППД №3 БНО ИЯИ РАН.

Измерялась удельная гамма-активность монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ СБ29 (параметры приведены в Таблице 11) и СБ42 (выращен с применением двойной перекристаллизации, масса 494.9 г, больший диаметр 48 мм, меньший 45 мм, высота 95 мм). На Рисунке 36 в качестве примера приведён спектр детектора с образцом СБ42. На нём указаны гамма-линии, по которым проводилось определение активности соответствующих р.а.и. Удельные активности контролируемых р.а.и. для монокристаллов СБ29 и СБ42 приведены в Таблице 16. В монокристалле СБ42 было обнаружено повышенное содержание изотопа ^{226}Ra . В тоже время, как видно из Таблицы 16, для СБ29 достигнут предел чувствительности измерений, и определение его внутреннего фона требует иных методов измерений, речь о которых пойдёт в следующей главе.

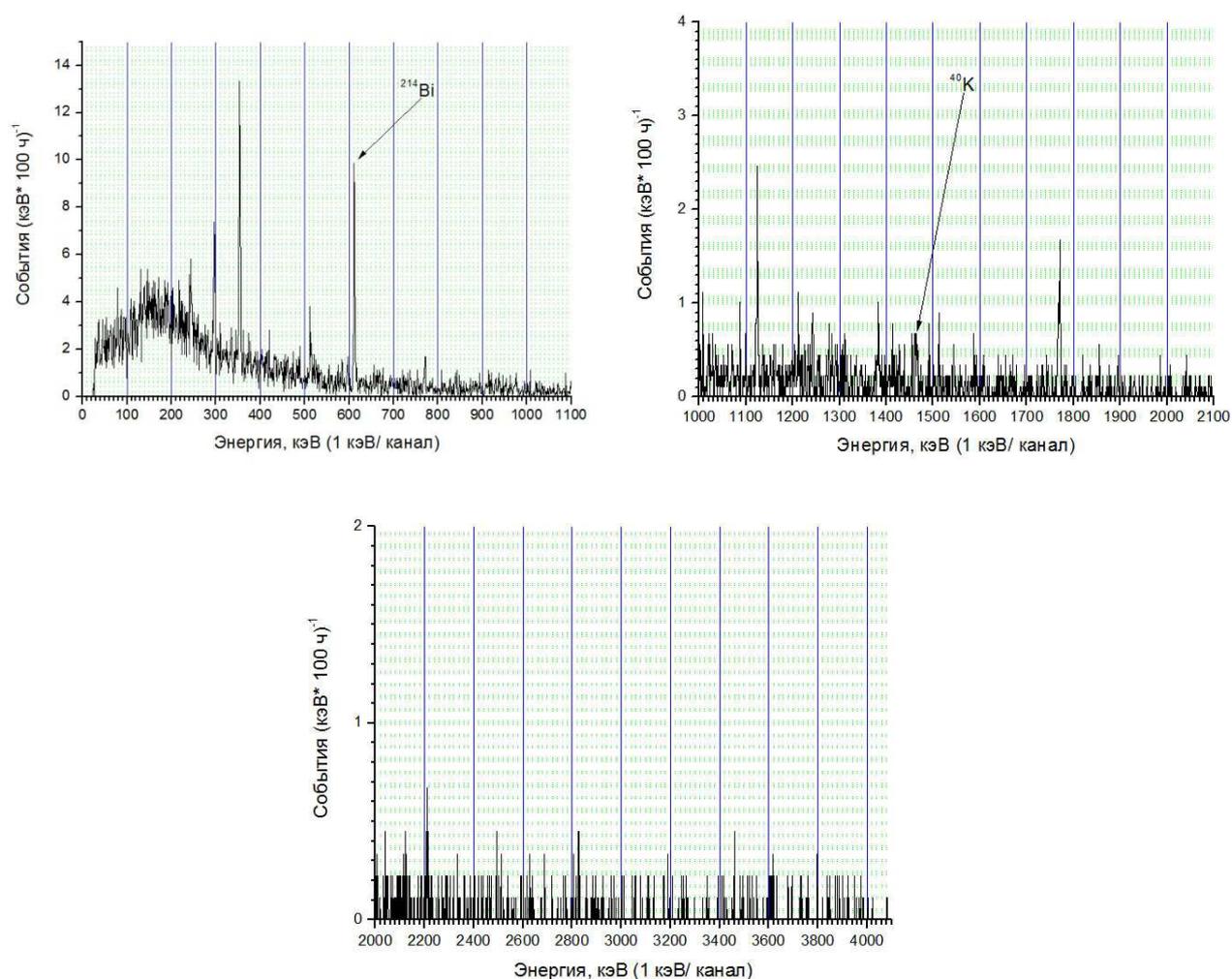


Рис. 36. Спектр образца СБ42 в разных энергетических интервалах.

Таблица 16. Удельная активность радиоактивных изотопов в монокристаллах $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. Уровень достоверности 95%.

| Образец, масса | $t_{\text{измерения, ч}}$ | Удельная активность, Бк/кг | | | |
|-------------------|---------------------------|-------------------------------|--|--|--|
| | | ^{40}K | ^{228}Ac (^{232}Th) | ^{208}Tl [^{232}Th]* | ^{214}Bi (^{226}Ra) |
| СБ29, 390.4 г | 953 | $\leq 1.2 \cdot 10^{-2}$ | $\leq 3.1 \cdot 10^{-3}$ | $\leq 8.3 \cdot 10^{-4}$ [$\leq 2.4 \cdot 10^{-3}$] | $\leq 6.4 \cdot 10^{-3}$ |
| СБ42, 494.9 г | 893 | $(1.2 \pm 0.6) \cdot 10^{-2}$ | $\leq 3.3 \cdot 10^{-3}$ | $\leq 7.8 \cdot 10^{-4}$ [$\leq 2.2 \cdot 10^{-3}$] | $(1.6 \pm 0.2) \cdot 10^{-2}$ |

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

Глава 4. Исследование внутреннего фона сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и С35

4.1 Установка для измерений внутреннего фона сцинтилляционных элементов в подземной лаборатории ЯнгЯнг

Подземная лаборатория ЯнгЯнг (Республика Корея) расположена на глубине около 700 м. Мюонный поток внутри лаборатории составляет $2.7 \cdot 10^{-7}$ см⁻²/с (что соответствует защите в 2000 м водного эквивалента) [105]. Доступ в лабораторию осуществляется через тоннель длиной 2 км от основания горы. Радиоактивный фон окружающей породы измерялся с помощью ИСП-МС. Содержание изотопов ²³⁸U, ²³²Th и ⁴⁰K находится на уровне <0.5 ppm, 5.6 ± 2.6 ppm и 270 ± 5 ppm соответственно. Благодаря относительно низкому содержанию ²³⁸U концентрация изотопа ²²²Rn в воздухе также мала и составляет 2-4 пКи/л. Нейтронный поток в лаборатории, измеренный с помощью одного литра жидкого сцинтиллятора BC501A, составил 8×10^{-7} см⁻²/с [106]. Основная задача лаборатории в данный момент — поиск тёмной материи коллаборацией KIMS [107].

На Рисунке 37 представлена схема установки для измерений внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов (СЭ) ⁴⁰Ca¹⁰⁰MoO₄. Боковая и одна из двух торцевых поверхностей СЭ оборачивались тремя слоями тефлоновой ленты Tetratex, толщиной 0.5 мм. 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 γ -фона СЭ и ФЭУ были окружены активной защитой из 14 кристаллов CsI(Tl), поддерживаемых акриловой решёткой. С торцов располагались два коротких кристалла $9 \times 9 \times 6$ см³, прикреплявшихся каждый к своему ФЭУ диаметром 7.62 см. С боковых сторон установку окружали 12 кристаллов длиной 30 см. Большой конец этих кристаллов имел площадь 6.5×6.5 см², а меньший 5.5×5.5 см². ФЭУ прикреплялись с двух сторон от кристаллов так, что каждый ФЭУ захватывал

свет от двух соседних кристаллов. При этом с разных сторон установки ФЭУ прикреплялись несимметрично, образуя сдвиг таким образом, что каждый кристалл с одной стороны имел общий ФЭУ с одним соседним кристаллом, а на другой стороне имел общий ФЭУ с другим соседним кристаллом [108].

Основной объём установки был окружен свинцовой защитой толщиной 10 см и размерами 50 см х 130 см. Для подавления фона от ^{222}Rn установка продувалась азотом со скоростью подачи газа 4 л/мин.

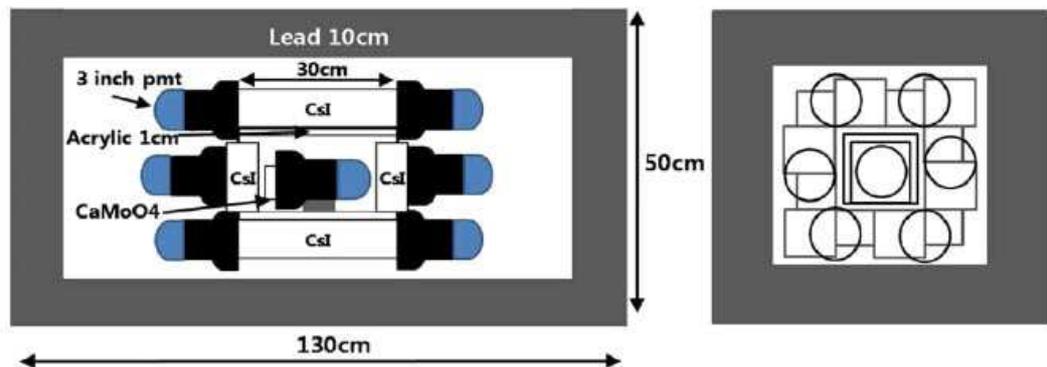


Рис. 37. Схема экспериментальной установки для измерения внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов в подземной лаборатории ЯнгЯнг [108]. Справа схема соединения ФЭУ с кристаллами CsI(Tl) активной защиты.

Электрическая схема установки представлена на Рисунке 38. Сигналы от СЭ усиливались в 10 раз предусилителем собственного производства и поступали на вход цифрового АЦП с частотой 400 МГц. Триггер 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 CaMoO_4 при комнатной температуре составляет ~ 16.5 мкс). При этом сигнал от CaMoO_4 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.

VME-крейт, содержащий модули цифровых АЦП, при помощи интерфейса VME-USB2 соединялся с компьютером под управлением операционной системы Linux.

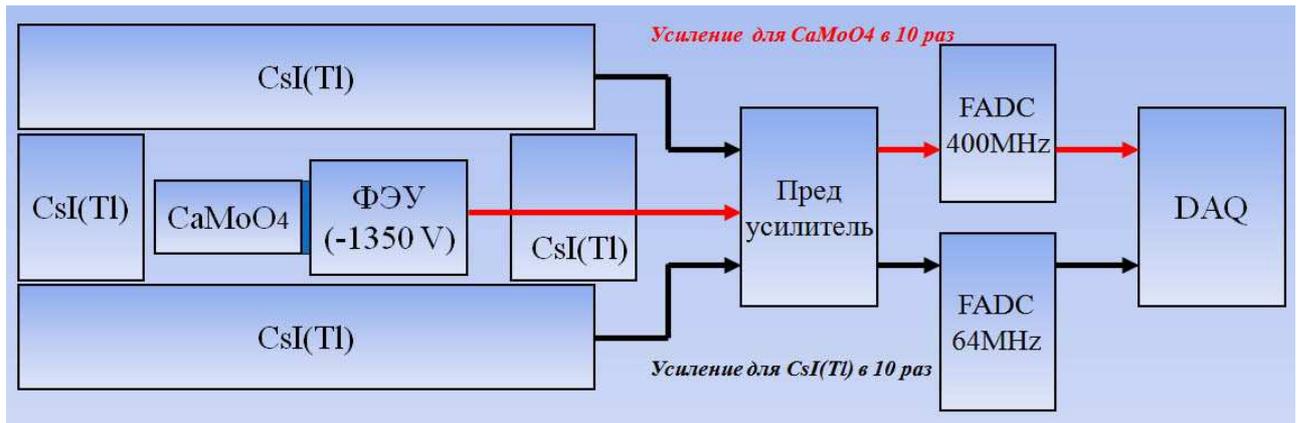


Рис. 38. Электрическая схема установки измерения внутреннего радиоактивного фона сцинтилляционных элементов.

4.2 Структура данных и их первичная обработка

4.2.1 Сигналы от СЭ. Данные записываются в деревья в формате пакета для обработки данных ROOT [87]. В одном файле содержатся данные от 5000 событий. На Рисунке 39 показан вид сцинтилляционного сигнала кристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ (высота импульсов приведена в отсчётах АЦП). Полная длина записанного временного окна в бинах составляет 32768 (82 мкс), сцинтилляционный сигнал начинается с 2000-го бина (6 мкс).

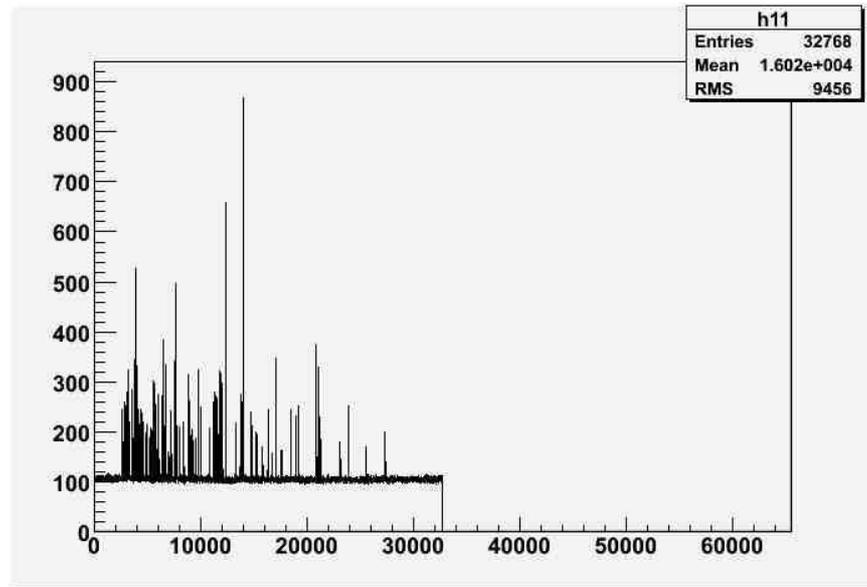


Рис. 39. Вид сцинтиляционного сигнала кристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. Высота импульсов в отсчётах АЦП.

Базовая линия вычислялась проектированием сигнала на ось Y с последующим фитированием пика гауссианом и нахождением его вершины (рис. 40). Таким образом положение вершины гауссиана соответствует уровню базовой линии. При дальнейшей обработке полученная величина уровня базовой линии всегда вычиталась из значений импульсов.

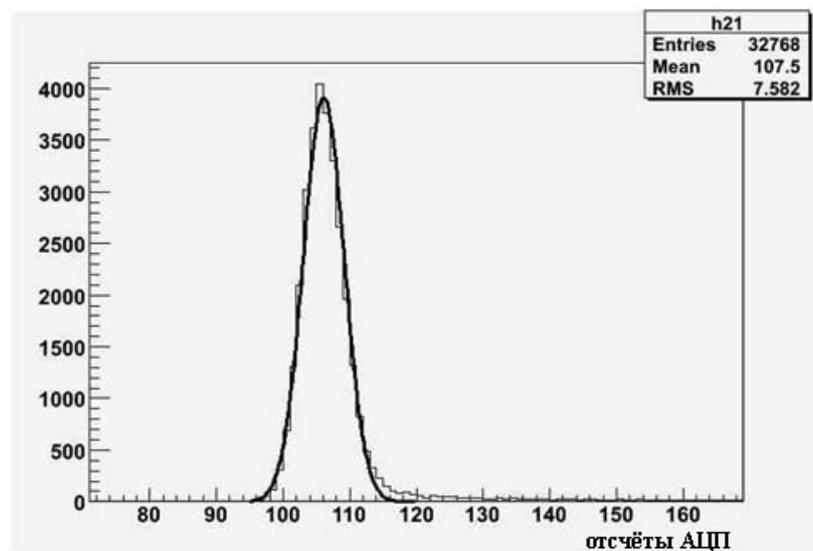


Рис. 40. Проекция сцинтиляционного сигнала на ось Y с фитированием гауссианом для вычисления уровня базовой линии.

С целью снижения влияния шума электроники при интегрировании сигнала учитывались только записанные значения выше выбранного порога. Для выбора порога было построено распределение значений всех бинов в нескольких сигналах (рис. 41). Как видно из рисунка количество импульсов с высотой ниже 15-20 отсчётов экспоненциально возрастает. Исходя из этого, был выбран порог равный 20 отсчётам относительно базовой линии, импульсы выше которого учитывались при интегрировании сигналов.

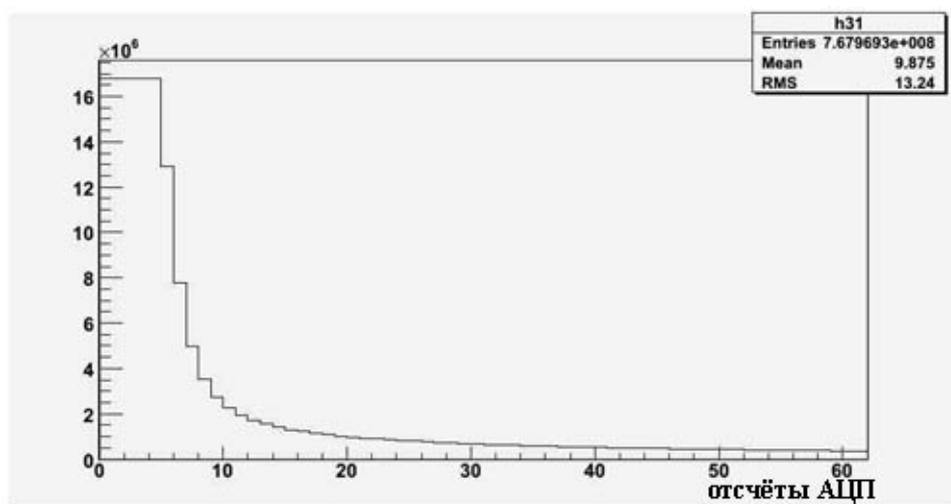


Рис. 41. Распределение значений бинов в сцинтилляционном сигнале.

4.2.2 Некорректно записанные сигналы. Как было сказано выше, записываемое временное окно в бинах равно 32768, но сцинтилляционный сигнал начинается с 2000-го бина. Из-за ошибок триггера в части файлов данных сигналы записаны не от начала. При этом первые 2000 бинов уже содержат данные, а начальная часть сигнала теряется (рис. 42). Такие сигналы искажают конечный фоновый спектр.

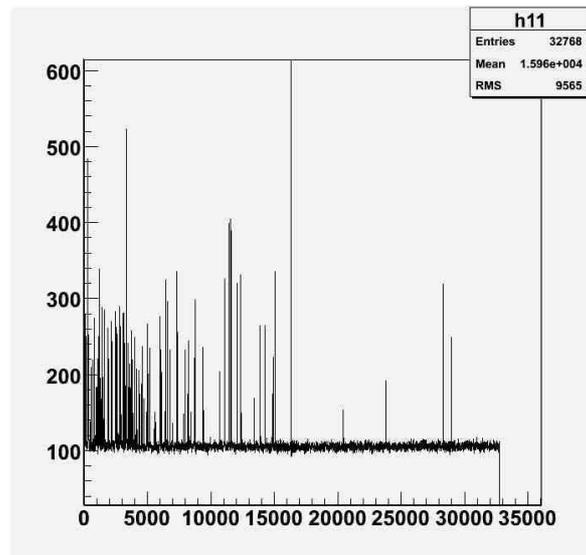


Рис. 42. Пример некорректно записанного сигнала. Наличие импульсов в первых 2000 бинах.

Для оценки количества случайных импульсов в первых 2000 бинов у *корректно записанных сигналов* нами было построено распределение числа импульсов выше порога в первых 2000 бинах (рис. 43). Как видно из гистограммы в подавляющем большинстве сигналов в начале присутствует один или два импульса. На основе этого было введено условие для дальнейшей обработки сигнала: наличие в первых 2000 бинах не более двух импульсов выше порога.

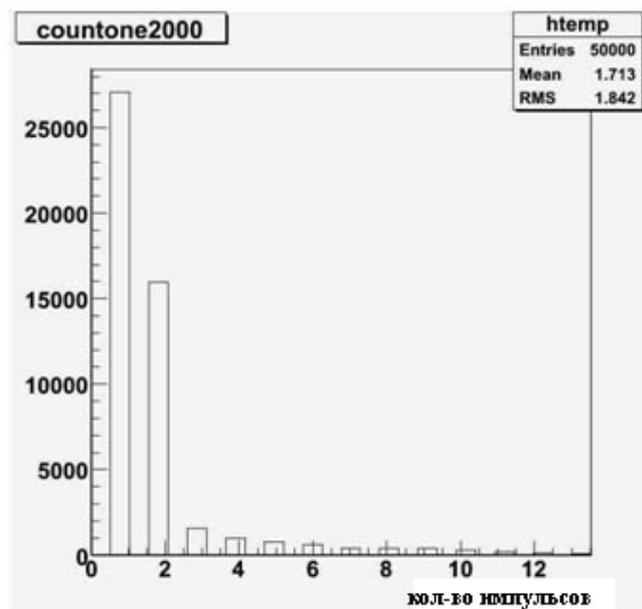


Рис. 43. Распределение числа импульсов в первых 2000 бинах записанных сигналов.

4.2.3 Сигналы кристаллов CsI. Сигналы от 14 ФЭУ, соединённых с кристаллами CsI активной защиты, записываются в дерево одновременно с сигналом от $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. На Рисунке 44 показаны все 14 сигналов ФЭУ на одной гистограмме (в некоторых из ФЭУ сигнал находится на уровне шума электроники). Длина сигнала от одного ФЭУ в бинах составляет 4096 (64 мкс). При интегрировании сигналов порог суммируемых значений бинов был равен 5 отсчётам АЦП (выбирался аналогично порогу для СЭ как описано выше).

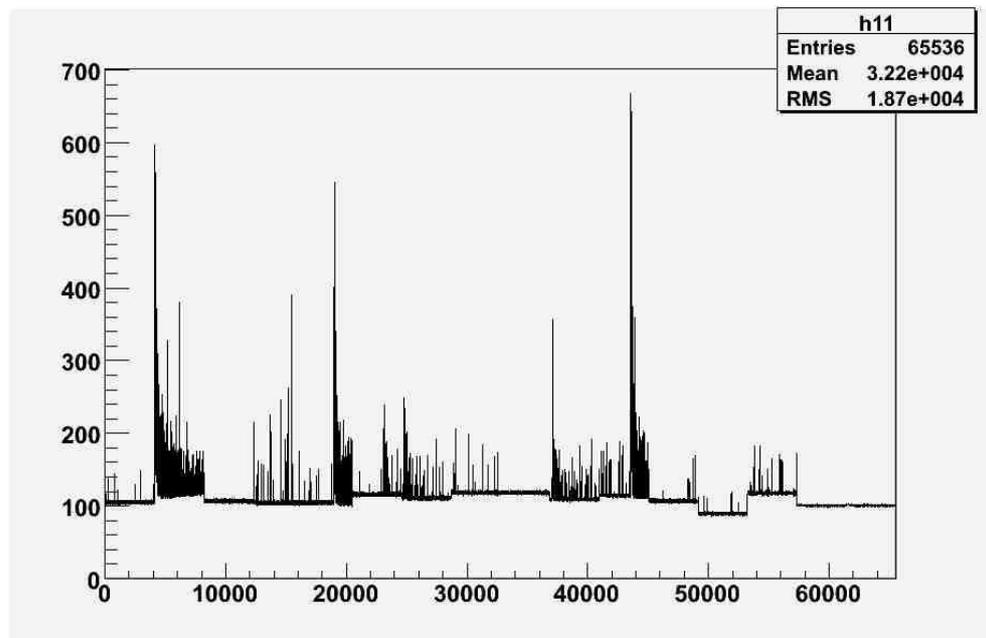


Рис. 44. Сцинтилляционные сигналы от 14 ФЭУ системы активной защиты установки для измерений внутреннего фона СЭ. Высота импульсов в отсчётах АЦП.

Поскольку один кристалл CsI просматривали по два ФЭУ, при обработке сигналы от ФЭУ, соответствующих одному кристаллу, суммировались. Если суммарное значение превышало определённый порог, соответствующий сигналу на уровне шума электроники, это считалось срабатыванием системы активной защиты и в дальнейшем данное событие исключалось при построении спектра внутреннего фона СЭ (рис. 45).

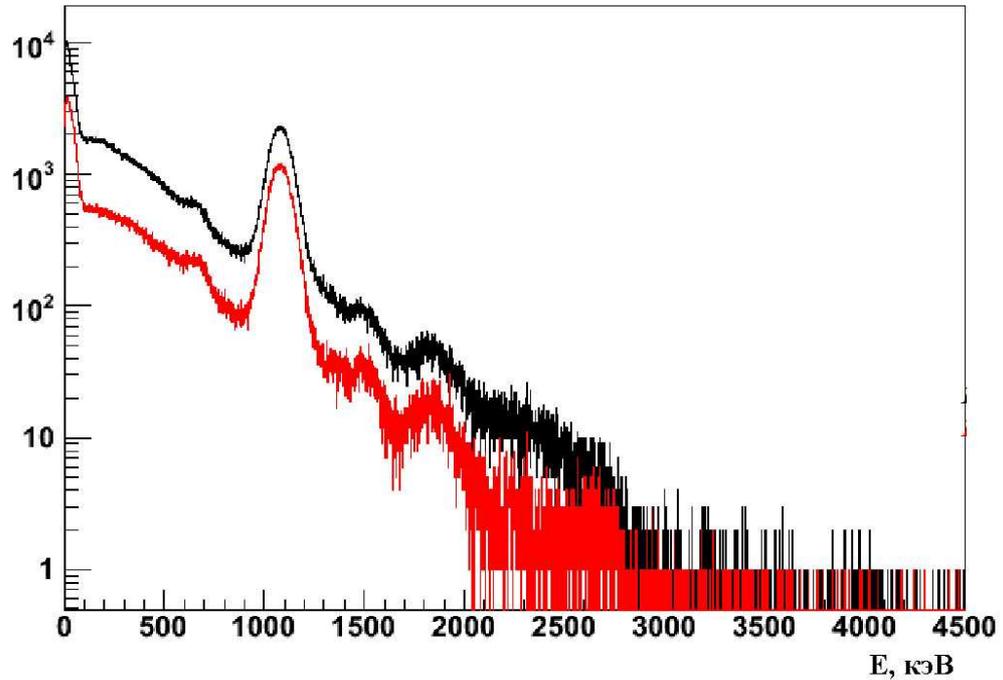


Рис. 45. Влияние системы активной защиты на спектр внутреннего фона СЭ С35. Без учёта системы активной защиты (чёрный), с учётом активной защиты (красный).

4.3 Калибровочные измерения СЭ

Калибровка энергетической шкалы для сцинтилляционных элементов СБ28, СБ29 и С35 проводилась на установке описанной в пункте 4.1 с помощью гамма-источника ^{137}Cs ($E_\gamma = 662$ кэВ). Источник отделялся от СЭ свинцовым коллиматором.

Построенные спектры (рис. 46) 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 С35 **14.9%**.

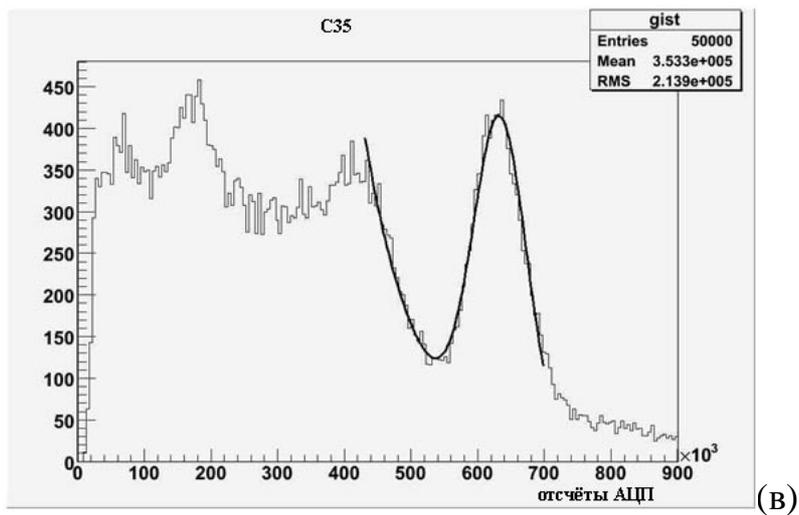
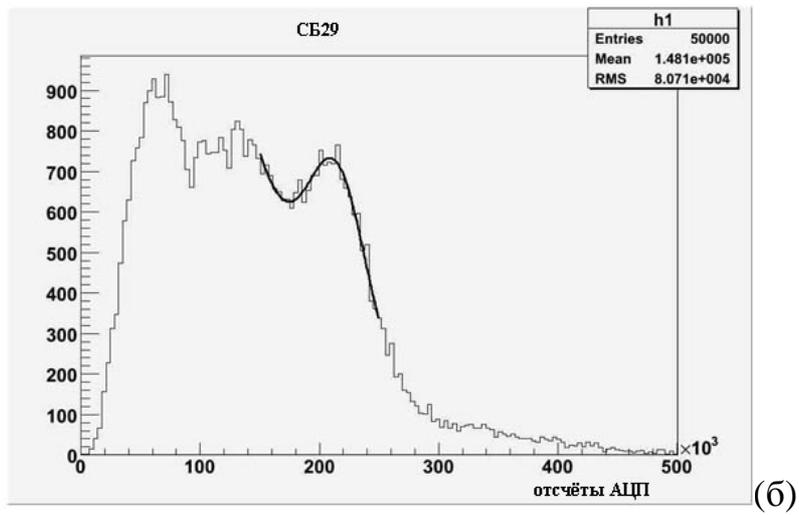
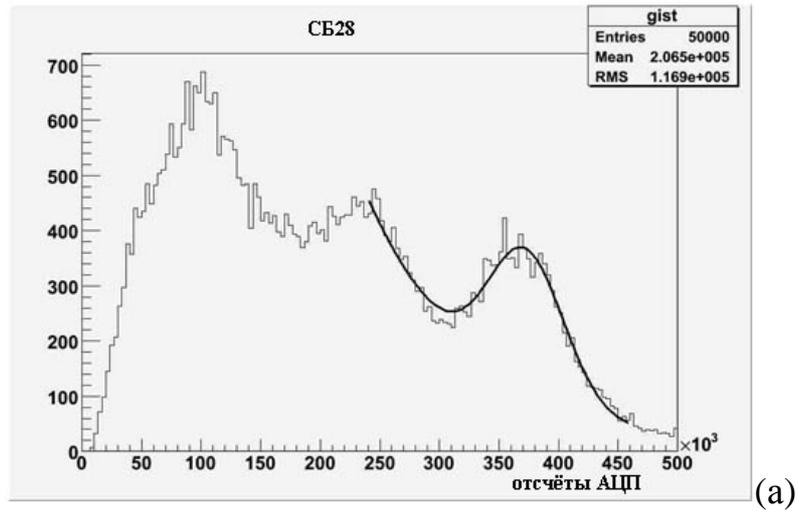


Рис. 46. Спектры сцинтиляционных элементов СБ28 (а), СБ29 (б), С35 (в). Источник ^{137}Cs (энергия 662 кэВ).

4.4 Методы обработки данных измерений внутреннего фона СЭ СБ28, СБ29 и С35

4.4.1 Альфа-бета разделение. Сцинтилляционная вспышка в кристалле CaMoO_4 состоит из нескольких свето-эмиссионных компонент с разным временем высвечивания [76]. Форма и время высвечивания этих компонент различна для событий α и $\beta(\gamma)$ -распадов (рис. 47), что связано с особенностями механизма сцинтилляционного высвечивания при разной плотности ионизации взаимодействующей частицы [109]. Этот факт может быть использован для идентификации α и $\beta(\gamma)$ -событий в фоновых данных.

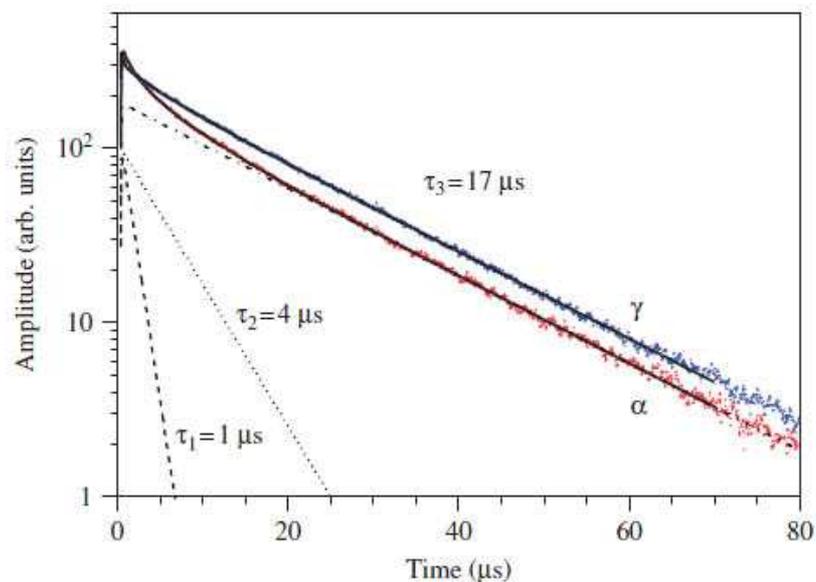


Рис. 47. Сцинтилляционные сигналы кристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ от α -частиц и γ -квантов [76]. Показаны три компоненты высвечивания.

Для идентификации α и $\beta(\gamma)$ -событий в сцинтилляционных сигналах применяется несколько методов, основанных на анализе формы импульса [110]. Наиболее популярными методами являются метод отношения части к полному сигналу (tail to total method) [111] и метод оптимального фильтра Гатти [112].

Метод Гатти успешно применялся ко многим сцинтилляторам, в том числе кристаллам $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ [76]. Он является более универсальным и точным, чем метод отношения части к полному сигналу, однако использование

этого метода требует знания средней формы импульса для каждого типа идентифицируемых частиц и достаточно сложных вычислений при обработке каждого сигнала. Как показано в [111] для целей идентификации событий распада ^{214}Bi (см. ниже) прекрасно подходят оба метода. Поэтому нами был выбран более простой метод отношения части к полному сигналу, который мы опишем далее.

Метод отношения части к полному сигналу использует зависимость формы быстрых и медленных компонент сцинтиляционной вспышки от плотности ионизации dE/dx заряженной частицы. Проинтегрируем весь сцинтиляционный сигнал и некоторый интервал внутри этого сигнала (мы интегрировали область между 6000 и 10000 бинами), а затем представим получившуюся зависимость одной величины от другой в виде точечной гистограммы (каждая точка соответствует одному сигналу, рис. 48). 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 (см. рис. 47) на Рисунке 48 α -события лежат выше основного распределения. В качестве параметра, используемого для разделения событий, можно взять отношение одной площади к другой (рис. 49, левый край распределения соответствует событиям, лежащим выше основного распределения на рис. 48).

Данная техника уже даёт возможный критерий для подавления фона. Сформулировав ограничения на параметр отбора можно исключить α -события из фонового спектра. Однако мы ставили задачу более полного анализа фона в энергетической области интереса $0\nu 2\beta$ -распада ^{100}Mo , для чего требовалось точно идентифицировать события связанные с бета-распадом ^{214}Bi и сигналы с наложением распадов двух изотопов в одном временном окне (см. ниже).

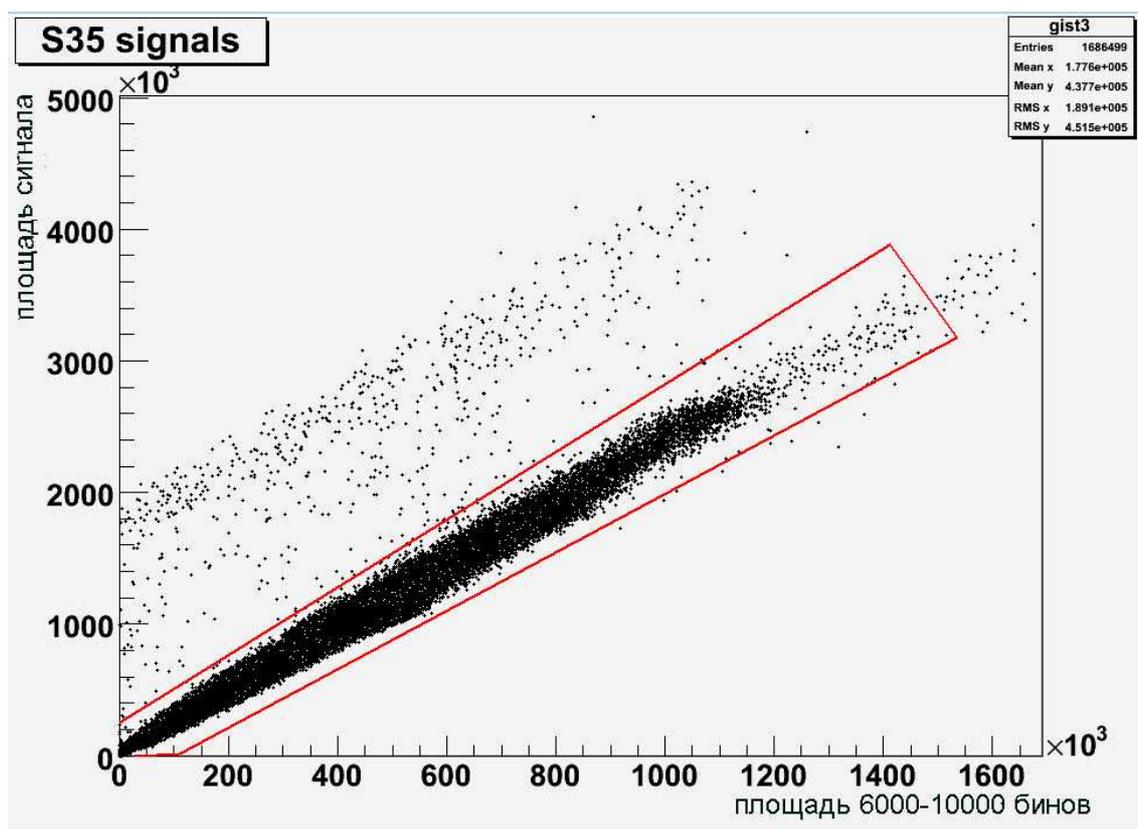


Рис. 48. Точечная гистограмма зависимости площади выбранной области в сигнале от полной площади сигнала (в отсчётах АЦП) для СЭ С35.

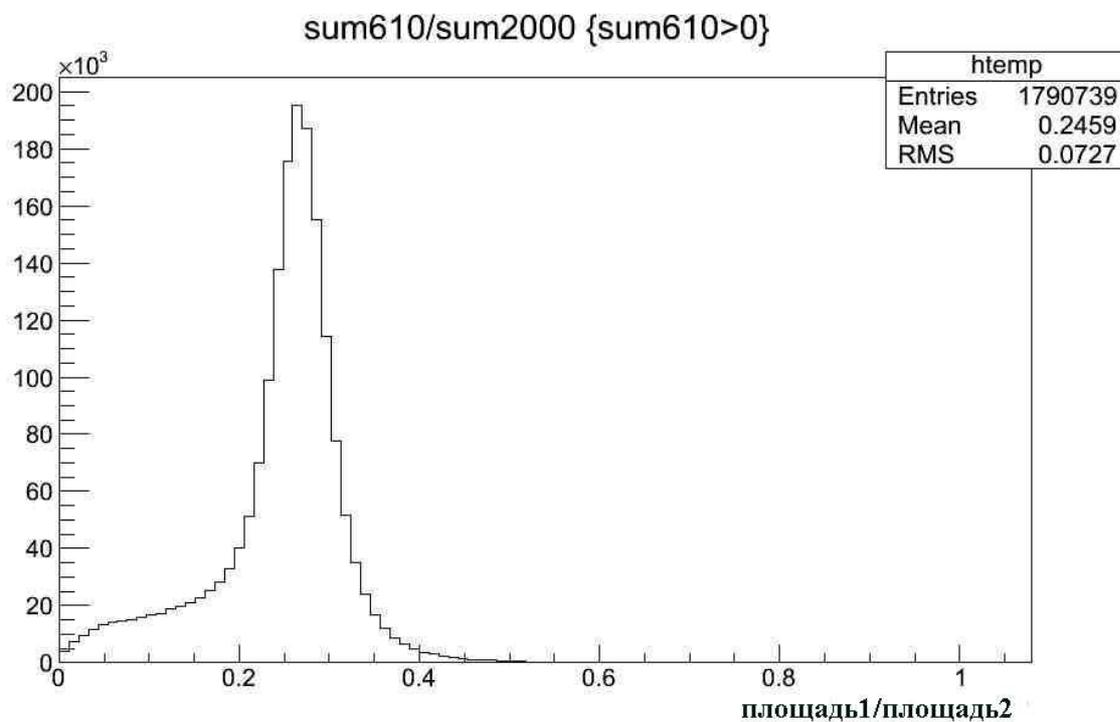


Рис. 49. Распределение отношения площади в области 6000-10000 бинов (площадь 1) к площади всего сигнала (площадь 2).

4.4.2 Время-амплитудный анализ. ^{214}Bi из цепочки распада ^{238}U является одним из наиболее опасных изотопов, способных дать вклад в энергетическую область $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo . Снизить влияние данного источника фона можно, если найти и исключить из обработки сигналы от событий β -распада ^{214}Bi . Для этого был использован метод время-амплитудного анализа [113, 114], который уже применялся ранее для анализа внутреннего фона кристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ [76]. В данном случае мы анализировали следующий участок цепочки распада: ^{214}Bi ($Q_\beta = 3.28$ МэВ, $T_{1/2} = 19.8$ мин) \rightarrow ^{214}Po ($Q_\alpha = 7.83$ МэВ, $T_{1/2} = 164$ мксек) \rightarrow ^{210}Pb .

Рассмотрим использованную процедуру подробнее. 55 % событий распада ^{214}Po попадают во временное окно равное 100-800 мкс после распада ^{214}Bi . При этом α -частицы от распада ^{214}Po в γ/β энергетической шкале детектора на основе монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ 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 в п. 4.4.1, проверялось, что отобранное событие вызвано α -распадом. Если данные условия выполнялись, мы заключали, что предыдущее событие было распадом ^{214}Bi . Согласно данным Монте-Карло моделирования таким образом можно отобрать до 85% распадов ^{214}Bi [76].

В результате применения описанной процедуры, при анализе данных внутреннего фона кристалла С35, набранных в течении 70 дней, было получено значение удельной активности ^{214}Po равное 1.74 мБк/кг. Данный результат был доложен в [115]. С учётом того, что использованное при анализе временное окно содержит только 55% событий от распада ^{210}Po , и эффективность регистрации составляет 85%, верхний предел удельной активности ^{214}Bi , равен 3.72 мБк/кг.

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

Энергия α -частиц в γ/β энергетической шкале равна 1.5 МэВ для распада ^{220}Rn и 1.6 МэВ для распада ^{216}Po . 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 $^{220}\text{Rn} \rightarrow ^{216}\text{Po}$. Полученное значение удельной активности ^{216}Po составило 0.26 мБк/кг, что соответствует удельной активности ^{208}Tl равной 93.6 мкБк/кг (поскольку в цепочке распада ^{232}Th только 36% распадов изотопа ^{212}Bi идёт по α -каналу с рождением ^{208}Tl [75]).

На Рисунке 50 представлены распределения событий распадов ^{214}Po , ^{216}Po , ^{220}Rn и ^{214}Bi на фоновом спектре СЭ С35. Пик в области 1.13 МэВ связан с распадом изотопа ^{210}Po , дочернего для изотопа ^{210}Pb из цепочки ^{238}U [76].

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

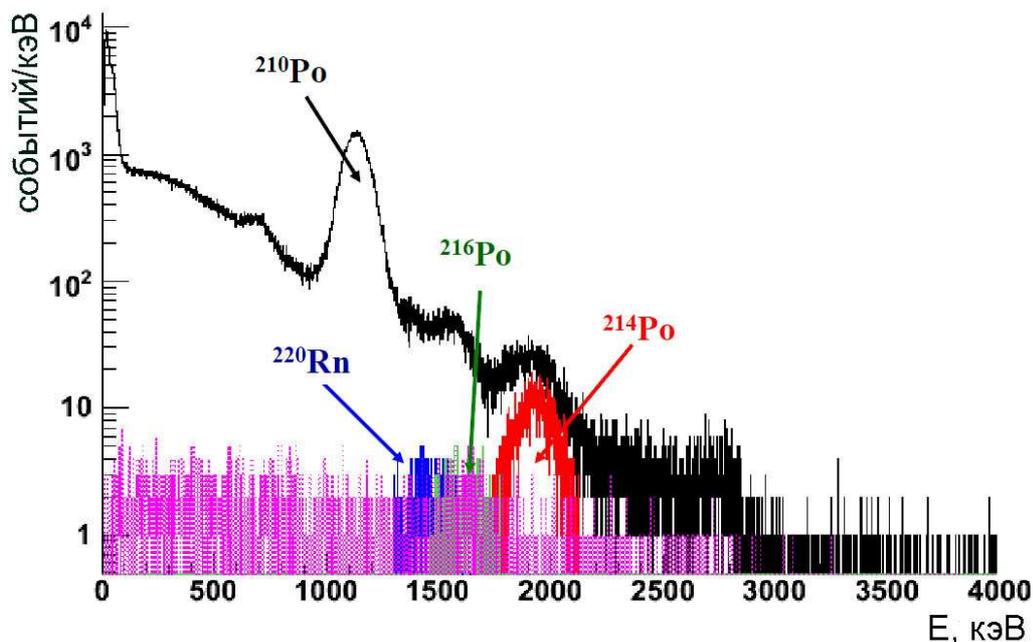


Рис. 50. Фоновый спектр СЭ С35, измеренный в течение 70 дней. Разовым цветом показаны события распада ^{214}Bi .

4.4.3 Отбор сигналов с наложениями.

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 $0\nu 2\beta$ -распада, повышая уровень фона. Пример такого сигнала от монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ представлен на Рисунке 51. Часть сигнала от второго распада начинается с 10000 канала.

Для отбора сигналов с наложениями могут быть применены методы анализа формы импульса, описанные в пункте 4.4.1, в том числе метод оптимального цифрового фильтра (метод Гатти) [116, 117].

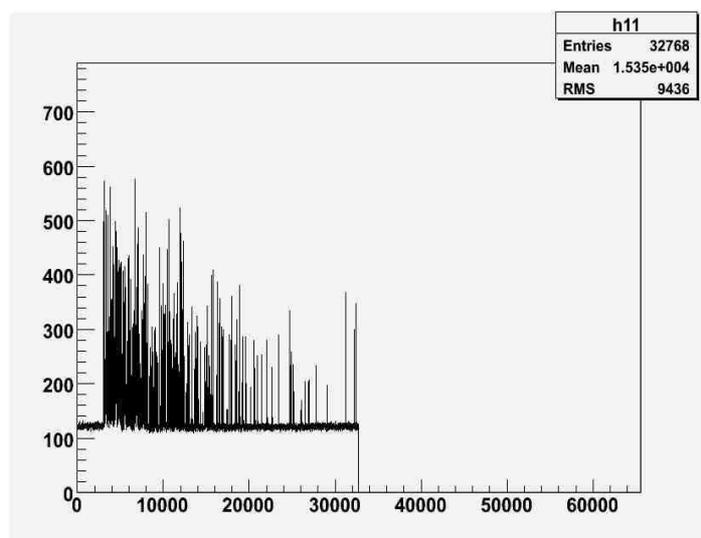


Рис. 51. Пример сигнала с наложением от монокристалла $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.

Часть сигнала от второго распада начинается с 10000 канала.

В случае использования метода отношения части к полному сигналу события с наложением будут выпадать из линейной зависимости площади выбранной области в сигнале от полной площади сигнала (рис. 48), описанной в пункте 4.4.1. Используя указанный там критерий мы подавляем 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 $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo ($2928\text{-кэВ} < E < 3140\text{-кэВ}$) на 60.5 %.

Второй применённый нами 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 [76]:

$$f(t) = \sum A_i (e^{-t/\tau_i} - e^{-t/\tau_0}) / (\tau_i - \tau_0), \quad t > 0 \quad (31)$$

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:

$$f_0(t) = A \mathcal{G}(t) \cdot (1 - e^{-t\lambda_r}) \cdot e^{-t\lambda_d} \quad (32)$$

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 $\Delta t < 82$ мкс между ними. Первый сигнал описывается формулой (32), а второй, смещённый сигнал, может быть описан функцией:

$$f_1(t) = \varepsilon \cdot f_0(t - \Delta t), \quad (33)$$

где ε - отношение амплитуд (энергий) первого и второго сигнала E_1/E_0 .

Энергии сигналов равны соответственно:

$$E_0 = \int_0^{\infty} f_0(t) dt \quad (34)$$

$$E_1 = \varepsilon E_0 \quad (35)$$

Общий сигнал с наложением от двух распадов описывается суммой функций (32) и (33), и равен:

$$f(t) = f_0(t) + \varepsilon \cdot f_0(t - \Delta t) \quad (36)$$

Найдём разницу между средним временем высвечивания нормального сигнала и сигнала с наложением.

Для сигнала (32) среднее время высвечивания равно:

$$\langle t_0 \rangle = \frac{\int_0^{\infty} t \cdot f_0(t) dt}{\int_0^{\infty} f_0(t) dt} \quad (37)$$

Среднее время в случае функции (36):

$$\langle t_{01} \rangle = \frac{\int_0^{\infty} t \cdot (f_0(t) + \varepsilon \cdot f_0(t - \Delta t)) dt}{\int_0^{\infty} (f_0(t) + \varepsilon \cdot f_0(t - \Delta t)) dt} \quad (38)$$

Разделив получившуюся дробь на величину $\int_0^{\infty} f_0(t) dt$, получаем:

$$\langle t_{01} \rangle = \frac{\langle t_0 \rangle + \frac{\varepsilon \int_0^{\infty} t \cdot f_0(t - \Delta t) dt}{\int_0^{\infty} f_0(t) dt}}{1 + \varepsilon} \quad (39)$$

Верхний интеграл в выражении (39) можно подсчитать с помощью замены $y = t - \Delta t$:

$$\frac{\varepsilon \int_0^{\infty} t \cdot f_0(t - \Delta t) dt}{\int_0^{\infty} f_0(t) dt} = \frac{\varepsilon (\int_{-\Delta t}^{\infty} y \cdot f_0(y) dy + \Delta t \int_{-\Delta t}^{\infty} f_0(y) dy)}{\int_{-\Delta t}^{\infty} f_0(y + \Delta t) dy} \quad (40)$$

Учитывая, что при $y < 0$, $f_0(y) = 0$, значение выражения (40) равно $\varepsilon(\langle t_0 \rangle + \Delta t)$. Подставляя это значение в (39) получаем:

$$\langle t_{01} \rangle = \langle t_0 \rangle + \frac{\varepsilon \cdot \Delta t}{1 + \varepsilon} \quad (41)$$

Таким образом, смещение среднего времени высвечивания для сигналов с наложением равно $\frac{\varepsilon \cdot \Delta t}{1 + \varepsilon}$.

На практике среднее время высвечивания сцинтилляционного сигнала вычислялось по формуле:

$$\langle t \rangle = \sum E_n \cdot n / E, \quad (42)$$

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 [118].

Зависимость полной энергии от среднего времени высвечивания для СЭ С35 показана на Рисунке 52. Цветовой градиент определяется плотностью точек в данной области гистограммы (построено с помощью функции ROOT). Эллиптические круги на гистограмме формируются событиями от α -распада изотопов ^{210}Po и ^{214}Po . Как можно заметить эти эллиптические сгущения точек располагаются в областях энергии (по вертикальной оси) соответствующих положению пиков от изотопов ^{210}Po и ^{214}Po на спектре (рис. 50). В то же время центры эллиптических сгущений смещены влево по оси времени высвечивания относительно центра основного распределения точек, которое состоит из γ -событий.

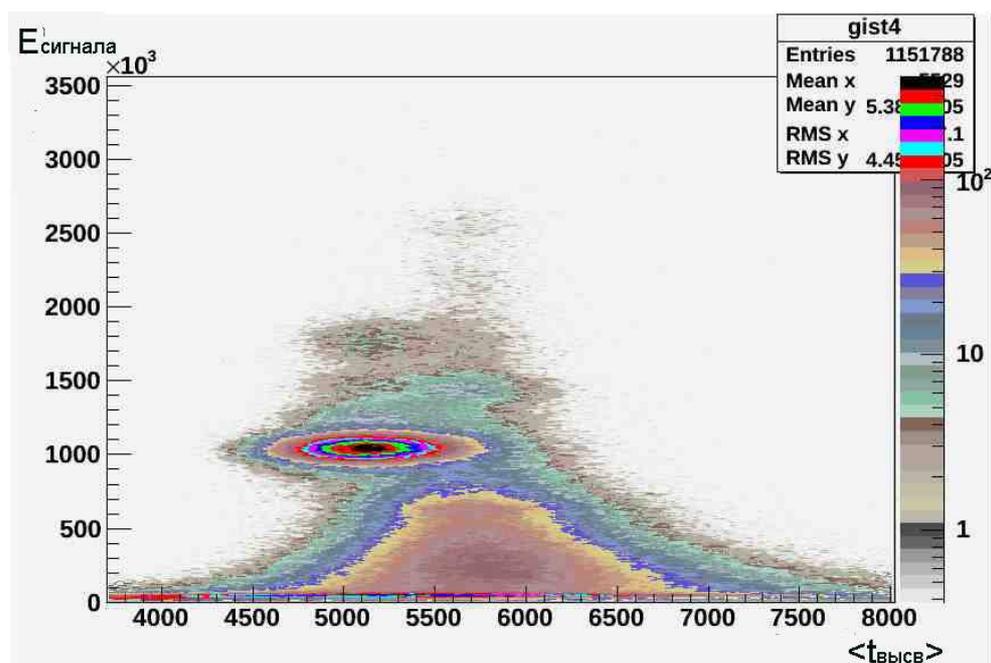
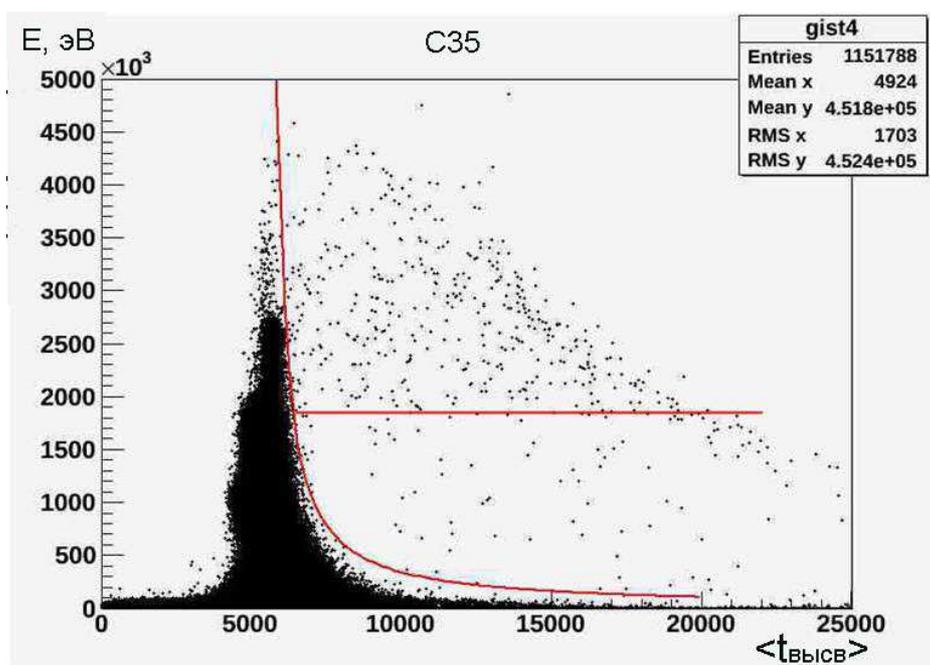
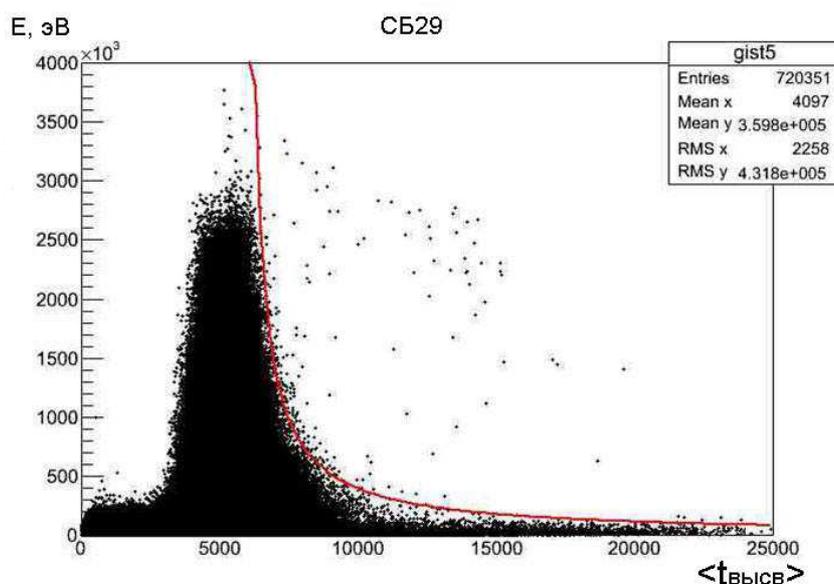


Рис. 52. Зависимость энергии сигнала (эВ) от среднего времени высвечивания для кристалла С35. Цветовой градиент определяется плотностью точек в данной области гистограммы.

В то же время сигналы с наложением должны иметь более длительное время высвечивания и, следовательно, располагаться правее среднего $\beta(\gamma)$ -времени (рис. 53). Для отбора таких событий мы фитировали край основного распределения событий гиперболой, используя стандартную функцию ROOT. Стоит отметить, что большинство событий справа от гиперболы лежат выше уровня энергии распада ^{214}Po (1930 кэВ в γ/β шкале, красная черта на рис. 53а), 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.



(a)



(б)

Рис. 53. Зависимость энергии сигнала от среднего времени высвечивания для кристаллов С35 (а) и СБ29 (б) с гиперболическим фитированием.

Применение этого метода для СЭ С35 позволило снизить количество фоновых событий в энергетической области $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo 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 применения 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 (см. п. 2.4.2).

4.5 Индекс фона СЭ С35 и СБ29, и чувствительность $0\nu 2\beta$ эксперимента

Для расчёта индекса фона использовались данные за 50 дней измерений внутреннего фона сцинтиляционного элемента С35, и за 90 дней измерений со сцинтиляционным элементом СБ29. Фоновый спектр СЭ СБ29 представлен на Рисунке 54.

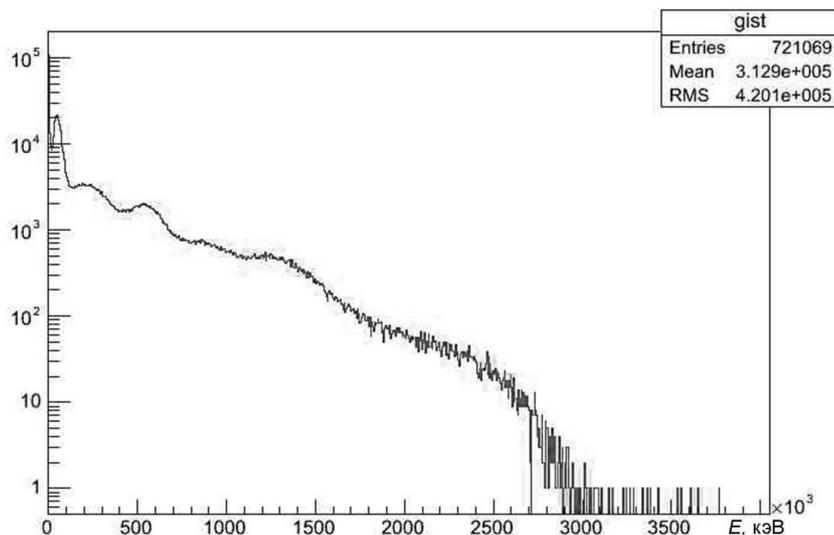
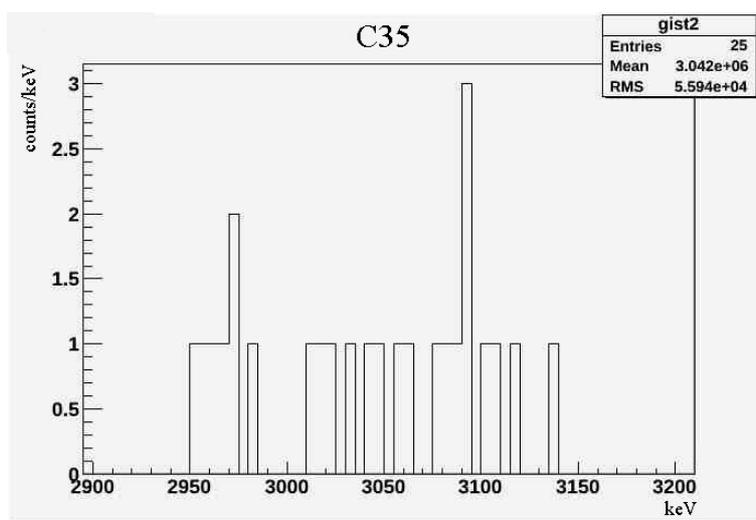


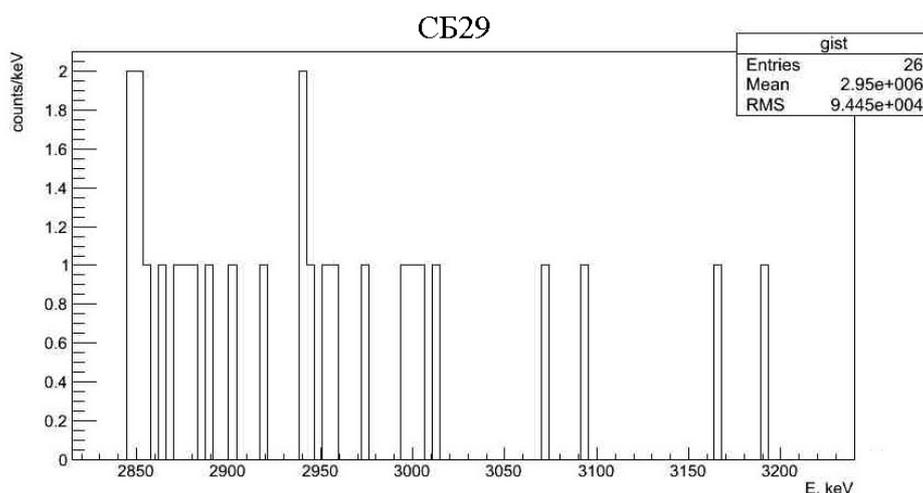
Рис. 54. Энергетический спектр СЭ СБ29 после 90 дней измерений.

С учётом энергетического разрешения область энергии $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo для СЭ С35 - ($2928\text{-кэВ} < E < 3140\text{-кэВ}$), а для СБ29 - ($2846\text{-кэВ} < E < 3222\text{-кэВ}$). Применение методов анализа описанных в п. 4.4.2 и 4.4.3

позволило идентифицировать и исключить из этой области ряд событий связанных, как с распадом изотопа ^{214}Bi , так и с наложениями сигналов от двух последовательных распадов в цепочке. На Рисунке 55 представлены распределения событий оставшихся после данного отбора. Эти результаты позволяют получить значение индекса фона, которое равно $3.3 \text{ событий}\cdot\text{кэВ}^{-1} \text{ кг}^{-1} \text{ год}^{-1}$ (90% у. д.) для СЭ С35, и $0.7 \text{ событий}\cdot\text{кэВ}^{-1} \text{ кг}^{-1} \text{ год}^{-1}$ (90% у. д.) для СЭ СБ29.



(a)



(б)

Рис. 55. Фоновый спектр в области энергии $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo для СЭ С35 (а, 50 дней измерений) и СБ29 (б, 90 дней измерений) с исключением наложений и событий распада ^{214}Bi .

Также можно оценить чувствительность регистрации $0\nu2\beta$ -распада в наших измерениях. Для этого используем следующую формулу, дающую нижний предел значения периода полураспада $0\nu2\beta$ -процесса [119]:

$$\lim T_{1/2} = \ln 2 \cdot \varepsilon \cdot N \cdot t / \lim S, \quad (43)$$

где ε – эффективность регистрации, N – число ядер ^{100}Mo , t – время эксперимента, $\lim S$ – максимальное число событий $0\nu2\beta$ -распада, которое может быть выделено при данной доверительной вероятности.

Эффективность регистрации, равная ~80 % [115], была получена с помощью моделирования в программном пакете Geant4 [102]; $\lim S$ можно оценить как квадратный корень из числа фоновых событий в энергетической области $0\nu2\beta$ -распада ^{100}Mo , умноженный на параметр 1.6, соответствующий доверительной вероятности 90 % [119].

Полученная чувствительность измерений $0\nu2\beta$ -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 С35 новое значение чувствительности составило $T_{1/2} > 6.8 \cdot 10^{21}$ лет (по сравнению со значением $4.0 \cdot 10^{21}$ лет из [115], рассчитанным без исключения событий с наложением нескольких распадов).

Для эксперимента в сцинтилляционном режиме с 5 кг $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и 5 годами измерений нижний предел на период полураспада изотопа ^{100}Mo для $0\nu2\beta$ -процесса составил бы $2.9 \cdot 10^{23}$ лет (90 % у.д.) при условии, что индекс фона детектора идентичен индексу фона кристалла СБ29.

4.6 α/β отношение

Световой выход сцинтилляторов зависит не только от энергии ионизирующей частицы, но и от её плотности ионизации. Плотность ионизации α -частиц значительно выше плотности ионизации электронов и γ -квантов, что приводит

к локальному нагреву кристалла вдоль трека частицы, увеличению вероятности рекомбинации носителей зарядов, одновременно с насыщением центров люминесценции в сцинтилляторе и, в конечном счёте, к меньшему световыходу [120, 109].

Отношение световыхода α -частицы к световыходу β -частицы с той же энергией называется α/β отношением (Quenching factor, QF). Электрон/гамма-эквивалентной шкалой энергии называется шкала полученная при калибровке сцинтилляционного детектора с помощью гамма-источника. Если облучать детектор альфа-источником с кинетической энергией α -частиц E_Q , то QF может быть вычислен как отношение E_{ee} – энергии α -частицы в электрон-эквивалентной шкале к реальной энергии частицы E_Q :

$$QF = E_{ee} / E_Q \quad (44)$$

Измерение α/β отношения с внешним источником ^{241}Am (5.64 МэВ), проводилось с помощью образца $1 \times 1 \times 1 \text{ см}^3$ кристалла С35. Подробное описание процедуры измерения приведено в [115]. Полученное значение α/β отношения составило 0.2. Однако в измерениях присутствовала систематическая ошибка, связанная с наличием воздушного зазора между источником и кристаллом, особенностями светосбора при использовании внешнего источника, особенностями обработки поверхности образца и т.д. [115, 76]. Более точно α/β отношение может быть вычислено на основе данных измерений внутреннего фона. Кроме того, поскольку QF зависит от энергии [121], желательно использовать несколько α -частиц с разной энергией.

Нами использовались данные измерения внутреннего фона СЭ С35 (рис. 50) в которых были выделены события распада изотопов ^{210}Po , ^{220}Rn , ^{216}Po и ^{214}Po (см. п. 4.4.2). Значение QF даёт отношение энергии этих изотопов в электрон-эквивалентной шкале к их реальной энергии E_Q [75]. Результаты вычисления представлены в Таблице 17 и на Рисунке 56 [115].

Таблица 17. α/β отношение, полученное на основе измерений внутреннего фона СЭ С35 для разных изотопов.

| 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 |

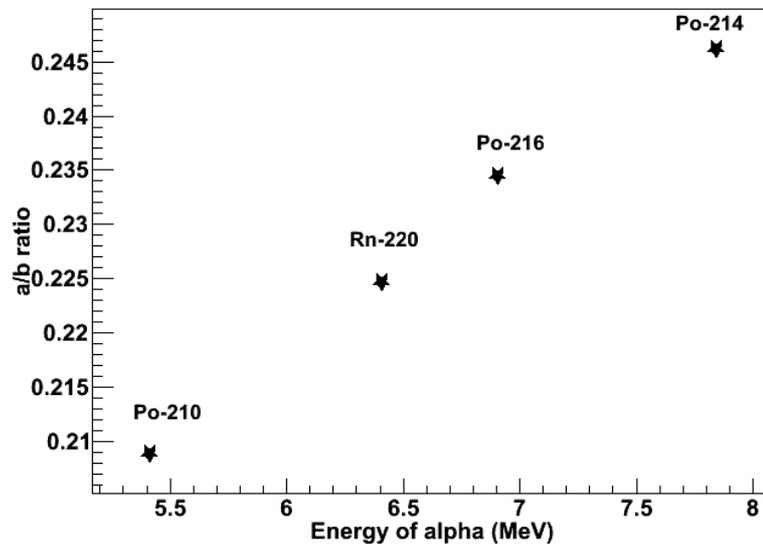


Рис. 56. α/β отношение, полученное на основе измерений внутреннего фона СЭ С35 для разных изотопов.

Заключение

Основные результаты, полученные в диссертации следующие:

- Разработана и создана установка для измерения относительного световыхода образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. 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 «Комбинат Электрохимприбор» и ЗАО Неохим программа глубокой очистки исходного компонента – изотопно-обогащенных материалов на основе изотопа ^{40}Ca ($^{40}\text{CaCO}_3$ и $^{40}\text{Ca}(\text{HCOO})_2$) от опасных радиоактивных примесей ^{232}Th , ^{238}U и ^{226}Ra .

- Впервые получены сцинтилляционные элементы на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ для создания детектора коллаборации AMoRE.

- На низкофоновой установке в подземной лаборатории ЯнгЯнг проведены измерения удельной активности сцинтилляционных элементов на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$.

- 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:

- 1) Измерены относительный световыход и время высвечивания образца $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ в диапазоне температур от комнатной (295 К) до криогенной (8 К).

- 2) Измерены показатели ослабления (прозрачность) образцов монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$. Наилучшее значение показателя ослабления

образца С35 для длин волн максимума высвечивания молибдата кальция составило 0.01 см^{-1} .

3) Измерен абсолютный световыход монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ при комнатной температуре, составивший (7.5 ± 1.2) фотон/кэВ.

4) На основе анализа спектра внутреннего фона сцинтилляционных элементов получено α/β отношение монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, составившее ~ 0.23 .

5) Измерена удельная гамма-активность исходных изотопнообогащенных материалов $^{40}\text{CaCO}_3$ и $^{100}\text{MoO}_3$ (активность ^{226}Ra и его дочернего изотопа ^{214}Bi менее 2.3 мБк/кг), шихты $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и монокристаллов молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ (см. Таблицу 4).

6) Измерено содержание примесей в исходных изотопнообогащенных материалах $^{40}\text{CaCO}_3$ и $^{100}\text{MoO}_3$ (концентрация ^{238}U и ^{232}Th не превышает 0.2×10^{-7} и 0.7×10^{-7} мас.%), шихте $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ и монокристаллах молибдата кальция $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$ 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 ^{228}Th и ^{226}Ra (0.07 и 0.17 мБк/кг соответственно) в сцинтилляционных элементах на основе монокристаллов $^{40}\text{Ca}^{100}\text{MoO}_4$, измеренные в активном (сцинтилляционном) режиме.

8) На основании применения нескольких методов анализа данных получены значения индекса фона низкофоновой установки со сцинтилляционными элементами С35 и СБ29 (3.3 и $0.7 \text{ событий} \cdot \text{кэВ}^{-1} \cdot \text{кг}^{-1} \cdot \text{год}^{-1}$ соответственно) в энергетической области двойного безнейтринного бета-распада изотопа ^{100}Mo . 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 $0\nu 2\beta$ -распада изотопа ^{100}Mo $T_{1/2} > 2.9 \cdot 10^{23}$ лет (90% у.д.).

В заключение считаю необходимым выразить благодарность В.Н. Корноухову, П.А. Полозову, А.А. Буренкову, И.Р. Барабанову, В.И. Гуренцову, Х.Ж. Киму и Д.С. Со за всестороннюю помощь в научной работе, многочисленные советы, консультации, конструктивную критику и переданные научные знания, которые были необходимы для проведения данной работы.

Литература

- 1) E. Fermi, Zeits. f. Physik **88**, 161 (1934).
- 2) M. Goerpert-Mayer, Phys. Rev. **48**, 512 (1935).
- 3) E. Majorana, Nuovo Cimento **14**, 171 (1937).
- 4) G. Racah, Nuovo Cimento **14**, 322 (1937).
- 5) W. Furry, Phys. Rev. **56**, 1184 (1939).
- 6) H. Primakoff, Phys. Rev. **85**, 888 (1952).
- 7) В. Р. Лазаренко, УФН **90**, 601 (1966).
- 8) F. Simkovic, Phys. Part. Nucl. **42**, 598 (2011).
- 9) V. I. Tretyak, AIP Conf. Proc. **1417**, 129 (2011), arXiv:1112.4183v2 [nucl-ex].
- 10) R. Davis, Phys. Rev. **97**, 766 (1955).
- 11) T. Lee, C. Yang, Phys. Rev **104**, 254 (1956).
- 12) C. Wu *et al.*, Phys. Rev. **105**, 1431 (1957).
- 13) Л. Д. Ландау, ЖЭТФ **32**, 407 (1957); T. D. Lee, C. N. Yang, Phys. Rev. **105**, 1957 (1957); A. Salam, Nuovo cimento **5**, 229 (1957).
- 14) M. Goldhaber, L. Grodzins, A.W. Sunyar, Phys. Rev. **109**, 1015 (1958).
- 15) H. Primakoff and S. P. Rosen, Rep. Prog. Phys. **22**, 121 (1959).
- 16) Лекция Г. Примакофа
http://www.aps.org/meetings/multimedia/april2007/upload/T4_3.pdf
- 17) M. Doi, T. Kotani, E. Takasugi, Prog. Theor. Phys. Supplement **83**, 1 (1985).
- 18) J. Schechter and J. W. F. Valle, Phys. Rev. **D 25**, 2951 (1982).
- 19) H. V. Klapdor-Kleingrothaus, M. Hirsch and S. Kovalenko, Phys. Lett. **B 372**, 181 (1996).
- 20) Y. Fukuda *et al.*, The Super-Kamiokande Collaboration, Phys. Rev. Lett. **B 539** (2002).
- 21) Q. R. Ahmad *et al.*, The SNO Collaboration, Phys. Rev. Lett. **89**, 011301 (2002).

- 22) T. Araki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 081801 (2005).
- 23) K2K collaboration, M. H. Ahn *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 041801 (2003), [hep-ex/0212007].
- 24) T. Kajita, New J. Phys. **6**, 194 (2004).
- 25) W. C. Haxton, G. J. Stephenson, Progress in Particle and Nuclear Physics **12**, 409 (1985).
- 26) J. D. Vergados, H. Ejiri, F. Simkovic, Theory of neutrinoless double beta decay, Progress in Physics **75** (10), 106301 (2012), [arXiv:1205.0649v2](https://arxiv.org/abs/1205.0649v2) [hep-ph].
- 27) F. Simkovic and A. Faessler, Prog. Part. Nucl. Phys. **48**, 201 (2002).
- 28) Lecture of P. Vogel, Caltech
http://www.int.washington.edu/NNPSS/2010_school/lectures/Vogel_2.pdf
<http://arxiv.org/abs/hep-ph/0611243v1>
- 29) F. T. Avignone III, G. S. King III, Y. G. Zdesenko, New Journal of Phys. **7**, 6 (2005).
- 30) T. Schwetz, M. T´ortola, and J. W. F. Valle, New J. Phys. **10**, 113011, (2008).
- 31) A. Habig *et al.* (MINOS Collaboration), Mod. Phys. Lett. A **25**, 1219 (2010).
- 32) S. M. Bilenky, A. Faessler, W. Potzel, and F. Simkovic, Eur. Phys. J. C **71**, 1754 (2011).
- 33) B. Schwingenheuer, Annalen der Physik **525**, 269 (2013).
- 34) M. G. Inghram, J. H. Reynolds, Phys. Rev. **78**, 822 (1950).
- 35) S. R. Elliott, A. A. Hahn, and M. Moe, Phys. Rev. Lett. **59**, 2020 (1987).
- 36) A. S. Barabash, Phys. Atom. Nucl. **74**, 603 (2011).
- 37) A. S. Barabash, Phys. Rev. **81**, 035501 (2010).
- 38) N. Ackerman *et al.* (EXO Collaboration), Phys. Rev. Lett. **107**, 212501 (2011).
- 39) The GERDA Collaboration *et al.*, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **40**, 035110 (2013).

- 40) HEIDELBERG-MOSCOW Collaboration, Phys. Rev. **D 55**, 54 (1997).
- 41) H. V. Klapdor-Kleingrothaus *et al.*, Eur. Phys. J. **A 12**, 147 (2001).
- 42) H. V. Klapdor-Kleingrothaus and I. V. Krivosheina, Mod. Phys. Lett. **A 21**, 1547 (2006).
- 43) C. E. Aalseth *et al.*, Mod. Phys. Lett. **A 17**, 1475 (2002); Yu. G. Zdesenko, F. A. Danevich, and V. I. Treyak, Phys. Lett. **B 546**, 206 (2002); A. Strumia and F. Vissani, Nucl. Phys. **B 726**, 294 (2005); I. V. Kirpichnikov, *Klapdor's claim for the observation of the neutrinoless 2β -decay of ^{76}Ge . Analysis and corrections*, Preprint ITEP-06-10, Moscow (2010).
- 44) C. E. Aalseth *et al.*, Phys. Rev. **D 65**, 092007 (2002).
- 45) C. Arnaboldi *et al.*, Phys. Rev. **C 78**, 035502 (2008).
- 46) E. Andreotti *et al.*, Astropart. Phys. **34**, 822 (2011).
- 47) A. S. Barabash and V. B. Brudanin, Phys. At. Nucl. **74**, 312 (2011).
- 48) R. Bernabei, RESULTS ON DARK MATTER AND $\beta\beta$ DECAY MODES BY DAMA AT GRAN SASSO, Neutrinoless Double Beta Decay (NDBD07), Ahmedabad (India), 2007.
- 49) F. A. Danevich *et al.*, PHYSICAL REVIEW **C 68**, 035501(2003).
- 50) The GERDA collaboration, Eur. Phys. J. **C 73**, 2330 (2013).
- 51) A. Gando *et al.*, Phys. Rev. **C 85**, 045504 (2012), [arXiv:1201.4664].
- 52) A. Gando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 062502 (2013).
- 53) M. Auger *et al.*, JINST **7**, P05010 (2012).
- 54) M. Auger *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 032505 (2012).
- 55) CUORE Collaboration, Sensitivity and Discovery Potential of CUORE to Neutrinoless Double-Beta Decay, submitted to Astroparticle Physics [arXiv:1109.0494v3] (2013).
- 56) D. G. Phillips II *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **381**, 012044 (2012), [arXiv:1111.5578].
- 57) A. S. Barabash, J. Phys. Conf. Ser. **375**, 042012 (2012).
- 58) J. Hartnell, J. Phys. Conf. Ser. **375**, 042015 (2012).

- 59) S. Rahaman *et al.*, Physics Letters **B 662**, 111 (2008).
- 60) J. Suhonen and O. Civitarese, Phys. Rep. **300**, 123 (1998).
- 61) M. E. Wieser, J. R. D. Laeter, Physical Review **C 75 (5)**, 055802 (2007), doi:10.1103/PhysRevC.75.055802.
- 62) А. В. Вересникова «Исследование параметров сцинтилляционных кристаллов CaMoO_4 для поиска двойного бета-распада изотопа ^{100}Mo », Дис. Канд. физ.-мат. наук 01.04.01, Москва, 2009, 102 с.
- 63) V. Alenkov *et al.*, JINST **8**, P06002 (2013).
- 64) V. B. Mikhailik and H. Kraus, Phys. Stat. Sol. **B 247**, 1583 (2010).
- 65) М. В. Коржик «Физика сцинтилляторов на основе кислородных монокристаллов». - Мн.: БГУ, 2003. – 263 с.: ил. – ISBN 985-485-061-7
- 66) A. Vasiliev // Inorganic Scintillators and Their Applications / Ed. Mikhailin. Moscow State University, 2000. P. 43.
- 67) V. B. Mikhailik *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **17**, 7209 (2005).
- 68) V. B. Mikhailik *et al.*, JOURNAL OF APPLIED PHYSICS **97**, 083523 (2005).
- 69) H. Bhang *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **375**, 042023 (2012); Н. Д. Ханбеков, Яд. Физика **76 №9**, 1 (2013).
- 70) L. Gironi, Journal of Low Temperature Physics **167**, 504 (2012).
- 71) L. Gironi, Nucl. Instrum. Methods **A 617**, 478 (2010).
- 72) L. Fleischmann *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 012013 (2009).
- 73) S. J. Lee *et al.*, Astropart. Phys. **34**, 732 (2011).
- 74) A. Burck *et al.*, J. Low. Temp. Phys. **151**, 337 (2008).
- 75) R.B. Firestone *et al.*, Table of Isotopes, eighth ed., Wiley, New York, 1996 and CD update, 1998.
- 76) A. N. Annenkov *et al.*, Nucl. Instrum. Methods **A 584**, 334 (2008).
- 77) J. K. Bohlke *et al.*, J. Phys. Chem. Ref. Data **34**, 57 (2005).
- 78) F. T. Avignone III, S. R. Elliott, J. Engel, Rev. Mod. Phys. **80**, 481 (2008); A. Giuliani, Acta Phys. Polon. **B 41**, 1447 (2010).
- 79) J. W. Beeman *et al.*, Phys. Lett. **B 710**, 318 (2012).

- 80) B. Macdonald, J. A. Diaz, S. N. Kaplan, and R. V. Pyle, *Phys. Rev.* **139**, B1253 (1965).
- 81) T. Kozlowski *et al.*, *Nucl. Phys. A* **436**, 717 (1985).
- 82) Ю. М. Гаврилюк, А. М. Гангапшев, А. М. Гежаев и др. «Содержание радиоактивных изотопов в конструкционных материалах по данным подземного низкофонового полупроводникового спектрометра (глубина – 660 м в.э.)». Препринт ИЯИ РАН, №.1236/2009 – М., 2009.
- 83) А. Н. Шубин, Ю. А. Кулинич, Г. М. Скорынин и др., «Газовые центрифуги в производстве высокочистых летучих веществ» // Сб. докл. XI Междунар. науч. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул и в лазерных, плазменных и нанотехнологиях». Звенигород: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 2006.
- 84) В. К. Карандашев и др., *ЖАХ* **64**, 259 (2009).
- 85) И. Р. Барабанов, О. А. Бузанов, А. В. Вересникова и др. «Содержание радиоактивных изотопов в исходных материалах и в готовом сцинтилляционном кристалле CaMoO_4 по данным подземного низкофонового полупроводникового спектрометра». Препринт ИЯИ РАН, №.1237/2009 – М., 2009.
- 86) V. V. Alenkov *et al.*, *Cryst. Res. Technol.* **46**, 1223 (2011).
- 87) I. Antcheva *et al.*, *Comput. Phys. Commun.* **180**, 2499 (2009).
- 88) V. B. Mikhailik *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods A* **583**, 350 (2007).
- 89) H. Kraus, V. B. Mykhaylyk, D. Wahl, *Nucl. Instr. and Meth., Phys. Res. A* **553**, 522 (2005); H. Kraus, V. B. Mikhailik, D. Wahl, *Radiat. Meas.* **42**, 921 (2007).
- 90) I. Holl, E. Lorenz and G. Mageras, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **35**, 105 (1988).
- 91) M. Moszynski *et al.*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **44**, 1052 (1997).
- 92) M. Gierlik *et al.*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **54**, 1367 (2007).

- 93) J. T. M. de Haas and P. Dorenbos, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **55**, 1086 (2008).
- 94) W. Drozdowski, A. J. Wojtowicz, S. M. Kaczmarek and M. Berkowski, *Physica B* **405**, 1647 (2010).
- 95) D. Wahl, V. B. Mikhailik and H. Kraus, *Nucl. Instrum. Meth. A* **570**, 529 (2007).
- 96) Radiant ZEMAX, <http://www.radiantzemax.com/>.
- 97) G. Keil, *Nucl. Instrum. Meth.* **89**, 111 (1970).
- 98) H. J. Kim *et al.*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **57**, 1475 (2010).
- 99) R. V. Vasiliev *et al.*, *Instrum. Exp. Techn.* **53**, 795 (2010).
- 100) M. Moszyński *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **553**, 578 (2005).
- 101) Г. Т. Зацепин, Е. Л. Ковальчук, В. В. Кузьминов, А. А. Поманский, «Подземная низкофоновая камера». Сборник «Краткие сообщения по физике», ФИАН, Москва, №6, 1975, с. 20-23.
- 102) D. Agostinelli *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **506**, 250 (2003); J. Allison *et al.*, *IEEE Transactions on Nuclear Science* **53**, 270 (2006).
- 103) Справочник под ред. И. К. Кикоина. «Таблицы физических величин». М., Атомиздат, 1976.
- 104) Рекомендации МКРЗ, Публикация 38 МКРЗ, «Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения». Часть вторая. Книга 2. М., Энергоатомиздат, 1987 г.
- 105) J. J. Zhu *et al.*, *High Energy Physics and Nuclear Physics* **29**, 721 (2005).
- 106) J. W. Kwak *et al.*, in *Proceedings of the Fifth International Workshop "The identification of Dark Matter"*, Edinburgh, UK, 2004, Ed. by Neil J C Spooner & Vitaly Kudryavtsev (World Sci. Publishing Co. Pte. Ltd., 2005), pp. 236-241.
- 107) S. C. Kim *et al.*, *Phys. Rev. Letts.* **108**, 181301 (2012).
- 108) J. I. Lee *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **654**, 157 (2011).

- 109) J. B. Birks, *The theory and Practice of Scintillation Counting* (Pergamon Press (1964).
- 110) S. C. Wu *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **A 523**, 116 (2004).
- 111) H. O. Back *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **A 584**, 98 (2008).
- 112) E. Gatti, F. De Martini, *A new linear method of discrimination between elementary particles in scintillation counters*, Nuclear Electronics, vol .2, pp. 265-276, IAEA Wien (1962).
- 113) F. A. Danevich, *et al.*, Phys. Lett. **B 344**, 72 (1995).
- 114) F. A. Danevich, *et al.*, Nucl. Phys. **A 694**, 375 (2001).
- 115) J. H. So *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **59**, 2214 (2012).
- 116) F. A. Danevich *et al.*, Phys. Rev. **C 62**, 045501 (2000).
- 117) S. Umehara *et al.*, Phys.Rev. **C78**, 058501 (2008).
- 118) H. S. Lee *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **A 571**, 644 (2007).
- 119) Y. Zdesenko, REVIEWS OF MODERN PHYSICS **74**, 663 (2002).
- 120) А. И. Абрамов, Ю. А. Казанский, Е. С. Матусевич. Основы экспериментальных методов ядерной физики. 2-е изд. перераб. и доп. М.: Атомиздат, 1977. — 526 с. С.214-215.
- 121) V. I. Tretyak, Astropart. Phys. **33**, 40 (2010).