

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ  
ІНСТИТУТ ЯДЕРНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ**

**КАСПЕРОВИЧ Дмитро Васильович**



УДК 539.165

**ПОДВІЙНИЙ БЕТА-РОЗПАД ЯДЕР  $^{116}\text{Cd}$  ТА  $^{150}\text{Nd}$**

01.04.16 — фізика ядра, елементарних частинок і високих енергій

**АВТОРЕФЕРАТ**

дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

**Київ — 2019**

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана у відділі фізики лептонів Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, професор  
**Даневич Федір Анатолійович**,  
завідувач відділу фізики лептонів,  
Інститут ядерних досліджень НАН України

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор  
**Каденко Ігор Миколайович**,  
завідувач кафедри ядерної фізики  
фізичного факультету  
Київського національного  
університету імені Тараса Шевченка

кандидат фізико-математичних наук,  
старший науковий співробітник  
**Раткевич Сергій Станіславович**,  
провідний науковий співробітник  
проблемної науково-дослідної лабораторії  
ядерної фізики і космічних променів  
Харківського національного університету  
імені В.Н. Каразіна

Захист відбудеться 19 грудня 2019 р. о 14<sup>45</sup> годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д26.167.01 Інституту ядерних досліджень НАН України за адресою: 03028, м. Київ, проспект Науки, 47.

З дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Інституту ядерних досліджень НАН України, 03028, м. Київ, проспект Науки, 47.

Автореферат розісланий «11» листопада 2019 р.

Вчений секретар

спеціалізованої вченої ради

кандидат фізико-математичних наук



Хоменков В.П.

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Спостереження нейтринних осциляцій свідчать про те, що нейтрино має масу. Разом з тим, маса нейтрино, а також схема масових станів (нормальна, обернена або квазівироджена) залишаються невідомими. Безнейтринний ( $0\nu$ ) подвійний бета-розпад ( $2\beta$ -розпад) заборонений у Стандартній Моделі елементарних частинок та взаємодій (СМ), його спостереження дозволило б визначити природу нейтрино (частинка Дірака чи Майорани), перевірити закон збереження лептонного числа, оцінити масу і визначити схему масових станів нейтрино, перевірити існування гіпотетичних правих струмів у слабкій взаємодії та багато інших ефектів за межами СМ.  $2\beta$ -розпад з вильотом двох нейтрино ( $2\nu 2\beta$ ) дозволений у СМ, але має дуже низьку ймовірність, оскільки є процесом другого порядку в теорії слабкої взаємодії. На сьогодні  $2\nu 2\beta$  мода розпаду достовірно виміряна лише у 11 ядер з періодом напіврозпаду  $T_{1/2} \sim 10^{18} - 10^{24}$  років. Вимірювання двонейтринного  $2\beta$ -розпаду ядер дають змогу перевіряти та вдосконалювати методи і параметри теоретичних розрахунків ядерних матричних елементів.

Нукліди  $^{116}\text{Cd}$  та  $^{150}\text{Nd}$  є одними із найперспективніших для пошуку  $0\nu 2\beta$ -розпаду завдяки сприятливим теоретичним передбаченням для періодів напіврозпаду. Крім цього, ці ізотопи мають відносно високу поширеність (7.51(6)% та 5.64(3) % для  $^{116}\text{Cd}$  та  $^{150}\text{Nd}$ , відповідно) та енергію  $2\beta$ -розпаду:  $Q_{2\beta}(^{116}\text{Cd}) = 2813.5(2)$  кеВ,  $Q_{2\beta}(^{150}\text{Nd}) = 3371.4(2)$  кеВ. Ці енергії перевищують так званий край природної радіоактивності (інтенсивні  $\gamma$ -кванти 2614.5 кеВ радіонукліду  $^{208}\text{Tl}$  з ряду торію), що дозволяє ефективно знижувати фон і досягати суттєво більшої чутливості експериментів з пошуку  $0\nu 2\beta$ -розпаду, ніж для нуклідів з  $Q_{2\beta} < 2615$  кеВ. Разом з тим, можливий розпад цих ядер на збуджені рівні дочірніх ядер, що дозволяє досліджувати такі розпади також і за допомогою напівпровідникових детекторів.

Чутливість низькофонових експериментів до процесів з низькою ймовірністю, таких як  $2\beta$ -розпад, рідкісні  $\alpha$ - та  $\beta$ -розпади, взаємодія темної матерії з речовиною, залежить від ефективності реєстрації шуканого процесу, радіоактивного фону детекторів, кількості досліджуваних ядер та енергетичної роздільної здатності детекторів. Таким чином, розробка методів очистки матеріалів та ефективного зниження фону установок є важливими задачами сучасних експериментів, спрямованих на дослідження рідкісних ядерних та суб'ядерних процесів.

Сцинтилятори вольфрамату цинку ( $\text{ZnWO}_4$ ) мають виражену анізотропію сцинтиляційного відгуку до напрямку руху важких заряджених частинок, що робить можливим їх застосування для пошуку добових модуляцій взаємодії темної матерії з речовиною. Крім того, наявність цинку і вольфраму у складі таких сцинтиляторів дозволяє виконувати дослідження подвійного бета-розпаду ядер  $^{64}\text{Zn}$ ,  $^{70}\text{Zn}$ ,  $^{180}\text{W}$ ,  $^{186}\text{W}$ ,  $\alpha$ -розпаду  $^{180}\text{W}$ . Тому актуальною є задача вимірювань радіоактивної забрудненості кристалів  $\text{ZnWO}_4$  на якомога нижчих рівнях, отримання матеріалу з високими сцинтиляційними та оптичними властивостями.

### **Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.**

Дослідження представленої дисертаційної роботи виконувалися в рамках кількох держбюджетних тем, науково-дослідних робіт за додатковими цільовими темами, співвиконавцем яких був автор: 1) Науково-дослідна робота «Дослідження процесів подвійного бета-розпаду на основні та збуджені рівні дочірніх ядер» (ДР № 0116U005457); 2) Науково-дослідна робота «Дослідження рідкісних розпадів атомних ядер, вимірювання потоків нейтрино, пошуки процесів за рамками Стандартної моделі елементарних частинок» (ДР № 0117U001316); 3) Науково-дослідна робота «Подвійний бета-розпад атомних ядер і властивості нейтрино та слабкої взаємодії (ДР № 0113U001001); 4) Грант НАН України дослідницьким лабораторіям/групам молодих вчених НАН України для проведення досліджень за пріоритетними напрямками розвитку науки і техніки «Дослідження рідкісних ядерних процесів» (ДР № 0118U002328).

**Мета і завдання дослідження.** Метою дисертаційного дослідження є розробка низькофонової установки для дослідження рідкісних ядерних розпадів та дослідження радіоактивної забрудненості сцинтиляторів та зразків матеріалів; експериментальний пошук  $2\beta$ -розпаду ядер  $^{116}\text{Cd}$  та  $^{150}\text{Nd}$ ; дослідження радіоактивної забрудненості сцинтиляційних кристалів вольфрамату цинку та кадмію.

Досягнення поставленої мети передбачає вирішення таких завдань:

1) розробити методи та засоби захисту низькофонової сцинтиляційної установки для зменшення радіоактивного фону сцинтиляційного детектора вольфрамату кадмію;

2) провести низькофоновий експеримент зі зразком оксиду неодиму з метою дослідження  $2\beta$ -розпаду нукліду  $^{150}\text{Nd}$  на перший  $0^+$  збуджений рівень дочірнього ядра з високою точністю;

3) провести низькофонові експерименти зі сцинтиляційними кристалами вольфрамату кадмію, збагачених ізотопом  $^{116}\text{Cd}$ , проаналізувати отримані дані з метою пошуку  $2\beta$ -розпаду  $^{116}\text{Cd}$  та вивчення радіоактивної забрудненості досліджуваних сцинтиляторів.

4) провести низькофонові вимірювання з радіоактивно чистими сцинтиляційними кристалами вольфрамату цинку, дослідити їх радіоактивну забрудненість.

*Об'єкт дослідження:* двонейтринний  $2\beta$ -розпад ізотопів  $^{150}\text{Nd}$  та  $^{116}\text{Cd}$ , активність радіоактивних ізотопів у сцинтиляційних кристалах  $\text{CdWO}_4$  та  $\text{ZnWO}_4$ , радіоактивний фон при вимірюванні рідкісних ядерних процесів.

*Предмет дослідження:* значення періоду напіврозпаду ядер  $^{150}\text{Nd}$  та  $^{116}\text{Cd}$  відносно двонейтринного  $2\beta^-$ -розпаду на основний ( $^{116}\text{Cd}$ ) та збуджений ( $^{150}\text{Nd}$ ) рівні дочірніх ядер; якісний та кількісний склад радіоактивних забруднень хімічно очищеного зразка оксиду неодиму  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  та сцинтиляторів вольфрамату кадмію і цинку, чутливість низькофонової сцинтиляційної установки відділу фізики лептонів Інституту ядерних досліджень НАН України до радіоактивної забрудненості зразків матеріалів та сцинтиляторів.

*Методи дослідження.* Для реалізації мети дисертаційної роботи та вирішення поставлених задач було застосовано методи низькофонової сцинтиляційної спектрометрії у вимірюваннях зі сцинтиляційними кристалами вольфрамату кадмію та цинку для ефективного зменшення фону детекторів, визначення радіоактивної забрудненості детекторів та дослідження  $2\beta$ -розпаду  $^{116}\text{Cd}$ , а також метод низькофонової  $\gamma$ -спектрометрії з використанням напівпровідникових детекторів із надчистого германію для дослідження  $2\beta$ -розпаду  $^{150}\text{Nd}$ . Для аналізу сцинтиляційних сигналів та зменшення фону застосовано методи часово-амплітудного аналізу та ідентифікація частинок за формою сцинтиляційних сигналів. Обробка експериментальних даних проводилася за допомогою програм PAW, ROOT, OriginPro, для моделювання відгуків детекторів та розрахунків ефективності реєстрації детекторів застосовувались пакети програм GEANT4 та EGSnrc.

### **Наукова новизна одержаних результатів:**

1) Розроблено та перевірено низькофонову сцинтиляційну установку з кристалом вольфрамату кадмію великого об'єму, придатну для досліджень рідкісних ядерних розпадів та вимірювань радіоактивної забрудненості сцинтиляторів і матеріалів з високою чутливістю.

2) Спостережено двонейтринний  $2\beta^-$ -розпад ядра  $^{150}\text{Nd}$  на перший  $0_1^+$  збуджений рівень ядра  $^{150}\text{Sm}$ , отримано нове значення періоду напіврозпаду:  $T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1} \times 10^{19}$  р.

3) Отримано найбільш точне значення періоду напіврозпаду ядра  $^{116}\text{Cd}$  відносно  $2\nu 2\beta^-$ -розпаду на основний рівень ядра  $^{116}\text{Sn}$ :  $T_{1/2} = 2.63_{-0.12}^{+0.11} \times 10^{19}$  р.

4) Досліджено радіоактивну забрудненість сцинтиляційних кристалів вольфрамату цинку, вирощених методом Чохральського з низьким градієнтом температури. Вперше досягнуто чутливості до питомої активності радіонукліду  $^{228}\text{Th}$  на рівні  $< 0.17$  мкБк/кг, найвищої для неорганічних кристалічних сцинтиляторів.

**Практичне значення отриманих результатів.** Чутливість низькофонової сцинтиляційної установки до радіоактивних забруднень сцинтиляторів ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ , сумарна  $\alpha$ -активність дочірніх ізотопів уран-торієвих рядів) значно перевищує можливості низькофонових напівпровідникових детекторів із надчистого германію за рахунок високої ефективності реєстрації та можливості розділення сцинтиляційних сигналів за формою. Це дає можливість на високому рівні чутливості досліджувати радіоактивну чистоту матеріалів та сцинтиляторів. Крім цього, установка придатна для розробки та проведення низькофонових експериментів з пошуку рідкісних ядерних розпадів.

Отримані експериментальні значення періоду напіврозпаду ядер  $^{150}\text{Nd}$  відносно  $2\nu 2\beta^-$ -розпаду на збуджений рівень  $^{150}\text{Sm}$  ( $0^+$ , 740.5 кеВ) та  $^{116}\text{Cd}$  відносно  $2\nu 2\beta^-$ -розпаду на основний рівень  $^{116}\text{Sn}$  можуть бути використані для подальшої розробки теоретичних розрахунків ядерних матричних елементів та для внесення до міжнародних баз ядерних даних. Найбільш точне значення періоду напіврозпаду ядра  $^{116}\text{Cd}$  відносно  $2\nu 2\beta^-$ -розпаду на основний рівень

дочірнього ядра  $^{116}\text{Sn}$  отримане завдяки уточненим оцінкам радіоактивної забрудненості сцинтиляційних кристалів вольфрамату кадмію.

Досліджено радіоактивні забруднення кристалів вольфрамату цинку, вирощених методом Чохральського з низьким градієнтом температур. Внутрішня забрудненість кристалів нуклідом  $^{228}\text{Th}$  є нижчою за відповідну характеристику усіх відомих кристалічних сцинтиляторів, що відкриває можливість застосування цього сцинтиляційного матеріалу у дослідженнях рідкісних ядерних процесів.

**Особистий внесок здобувача.** Дисертант брав безпосередню участь у розробці, збиранні, настройці та підготовці до вимірювань низькофонові сцинтиляційної установки, калібруваннях енергетичної шкали та вимірюваннях спектрів фону сцинтиляційного детектора вольфрамату кадмію, розробці пластикових сцинтиляційних лічильників для мюонного захисту установки, виконав аналіз експериментальних даних та отримав значення чутливості детектора до забруднень зразків матеріалів та сцинтиляторів, підготував статтю з отриманими результатами.

Дисертант провів калібрування енергетичної шкали та аналіз фонових вимірювань зі зразком оксиду неодиму в установці з 4-ма напівпровідниковими детекторами з надчистого германію: виконав оптимізацію енергетичної шкали з метою покращення енергетичної роздільної здатності детекторів шляхом аналізу стабільності положення фонових  $\gamma$ -піків впродовж вимірювань, виконав обробку енергетичних спектрів одиночних подій та збігів між різними детекторами, отримав значення періоду напіврозпаду для досліджуваного розпаду, підготував статтю за результатами експерименту.

Автор дисертації виконав обробку експериментальних даних, отриманих у низькофоновій установці DAMA/R&D лабораторії Гран-Сассо за допомогою двох кристалів вольфрамату кадмію, збагачених ізотопом  $^{116}\text{Cd}$ . Виконано аналіз форми сцинтиляційних сигналів з метою розділення  $\gamma(\beta)$ - та  $\alpha$ -подій та часово-амплітудний аналіз для відбору швидких ланцюжків розпадів у рядах  $^{232}\text{Th}$  і  $^{238}\text{U}$ . Побудовано енергетичні спектри  $\gamma(\beta)$ - та  $\alpha$ -подій, виконано обробку даних з метою зниження радіоактивного фону, визначено період напіврозпаду досліджуваного ядра на основний рівень дочірнього ядра.

Дисертант брав участь у вимірюваннях з радіоактивно чистими кристалами вольфрамату цинку у низькофоновій установці DAMA/R&D. Було виконано обробку експериментальних даних, оцінено радіоактивну забрудненість кристалів ізотопом  $^{228}\text{Th}$  та загальну внутрішню активність  $\alpha$ -радіоактивних ізотопів у кристалах, підготовлено статтю за результатами вимірювань.

У наукових працях, виконаних у співавторстві, дисертанту належить розробка, монтаж і перевірка експериментального обладнання, обробка експериментальних даних та аналіз результатів, підготовка графічних матеріалів, участь у написанні тексту статей.

**Апробація результатів дисертації.** Результати, представлені у дисертації, доповідалися на наступних конференціях та школах:

- 1) 24-а щорічна наукова конференція ІЯД НАНУ, 10-13.04.2017, Інститут ядерних досліджень, НАН України, Київ, Україна;
- 2) International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering, 29.05 – 2.06.2017, Lviv Polytechnic National University, Lviv, Ukraine;
- 3) International Conference "Matrix Elements for the Double beta decay Experiments", 29.05 – 2.06.2017, Prague, Czech Republic;
- 4) 6<sup>th</sup> International Conference on New Frontiers in Physics, 17 – 26.08.2017, Kolymbari, Crete, Greece;
- 5) Школа-семінар "Сцинтиляційні процеси і матеріали для реєстрації іонізуючого випромінювання", 10 – 13.09.2017, Харків, Україна;
- 6) 4-а міжнародна конференція "Високочисті матеріали: отримання, застосування, властивості", 12 – 15.09.2017, Харків, Україна;
- 7) 25-а щорічна наукова конференція ІЯД НАНУ, 16 – 20.04.2018, Інститут ядерних досліджень, НАН України, Київ, Україна;
- 8) Міжнародна школа-семінар "Функціональні матеріали для технічних та біомедичних застосувань", 5 – 8.09.2018, Харків, Україна;
- 9) Joint ICTP-IAEA Workshop on Nuclear Structure and Decay Data: Theory, Experiment and Evaluation, 15 – 26.10.2018, Trieste, Italy;
- 10) 26-а щорічна наукова конференція ІЯД НАНУ, 8 – 12.04.2019, Київ, Україна;
- 11) International Conference "Matrix Elements for the Double beta decay Experiments", 27 – 31.05.2019, Prague, Czech Republic.

**Публікації.** Всього за темою дисертації опубліковано 19 робіт, з них: 5 – статті у реферованих наукових журналах, що індексуються наукометричними базами Scopus та Web of Science [1 – 5], 4 – статті за матеріалами міжнародних конференцій [6 – 9], 10 – тези доповідей на конференціях [10 – 19]. Всі публікації виконані у співавторстві, особистий внесок здобувача вказаний вище.

**Структура дисертації.** Дисертація складається зі вступу, чотирьох розділів, висновків, списку використаних джерел із 243 найменувань (на 26 стор.), 38 рисунків, 18 таблиць. Загальний обсяг дисертації становить 161 стор. (з них основного тексту 114 стор.).

## **ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ**

У **вступі** дисертаційної роботи висвітлено актуальність тематики дослідження, мету та задачі, наукову новизну та практичне значення отриманих результатів, зв'язок роботи з науковими програмами та темами, зазначено особистий внесок здобувача.

У **першому розділі** розкрито сучасний стан досліджень подвійного бета-розпаду, розглянуто основні джерела радіоактивного фону детекторів, а також методи його зниження, наведені бібліографічні посилання на основні теоретичні та експериментальні роботи.

**Другий розділ** містить опис низькофонової сцинтиляційної установки, побудованої у відділі фізики лептонів Інституту ядерних досліджень НАН України. Сцинтиляційний кристал вольфрамату кадмію циліндричної

форми розмірами  $\varnothing 7 \times 7$  см і вагою 2128 г з'єднаний з низькофононим фотоелектронним помножувачем через кварцовий світловід ( $\varnothing 162 \times 100$  мм). Пасивний захист установки (рис. 1) складається з шарів свинцю (15 см) та міді (6 – 12 см). Активний захист детектора складається з чотирьох пластикових сцинтиляторів розмірами  $50 \times 50 \times 12$  см, розташованих над детектором. Вимірювання фону детектора (рис. 2) проводилися у кілька етапів: 1) без захисту; 2) у пасивному захисті зі свинцю; 3) зі свинцевим екраном та активним захистом; 4) з активним та пасивним захистом із міді та свинцю; 5) з активним та пасивним захистом із міді та свинцю та електронним блоком, що відкидає швидкі сигнали від черенковського випромінювання у кварцовому світловоді.

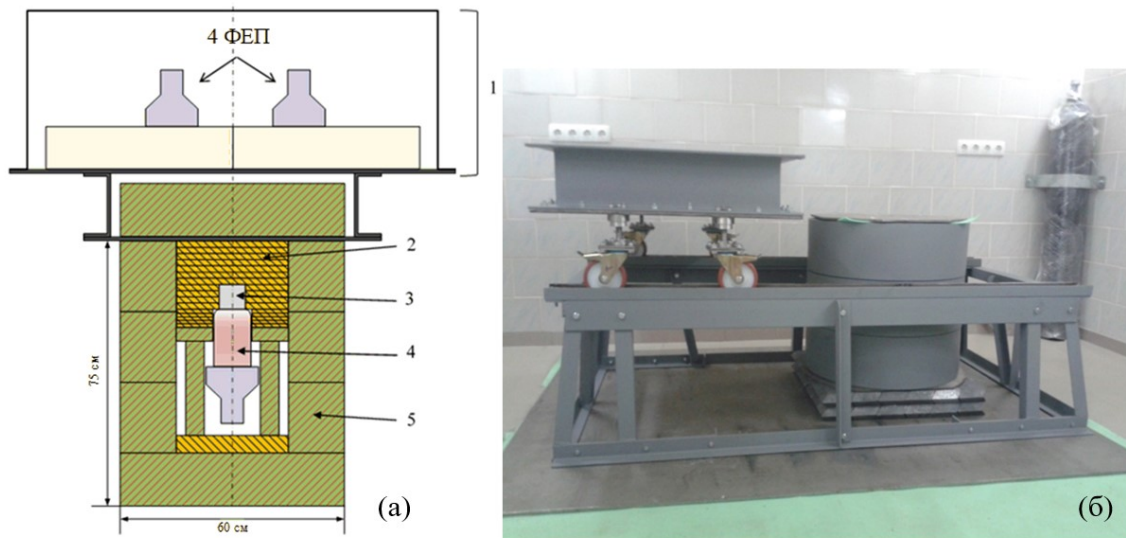


Рис. 1. (а) Схема низькофонової сцинтиляційної установки. 1 – активний захист детектора; 2 – мідний захист (6-12 см); 3 – сцинтиляційний кристал вольфрамату кадмію ( $\varnothing 7 \times 7$  см); 4 – кварцовий світловід; 5 – свинцевий захист (15 см); (б) фото установки.

У спектрі, вимірюваному без захисту, присутні  $\gamma$ -піки  $^{40}\text{K}$  та дочірніх нуклідів  $^{232}\text{Th}$  і  $^{238}\text{U}$ . В області енергій  $\gamma$ -квантів  $> 2.6$  МеВ фон зумовлений переважно космічними променями. При використанні свинцевого захисту фон в області енергій  $< 2.6$  МеВ знижується на 2 порядки. Вимірювання фону детектора у режимі антизбігів з лічильником мюонного захисту дозволило зменшити внесок космічних променів, в той час як використання мідного захисту дозволило знизити  $\gamma$ -фон від природної радіоактивності. Для зменшення фону, викликаного черенковським випромінюванням швидких заряджених частинок (переважно космічних мюонів) у кварцовому світловоді, було використано електронний блок, що відкидає швидкі сигнали. У отриманому спектрі спостерігається  $\beta$ -спектр ізотопу  $^{113}\text{Cd}$  ( $Q_{\beta} = 323.8(3)$  кеВ),  $\gamma$ -пік з енергією 662 кеВ ( $^{137}\text{Cs}$ ), а також широкий пік з енергією максимуму  $\sim 940$  кеВ. Загальне зниження фону в області  $< 2.6$  МеВ склало близько 3 порядки, фон космічного випромінювання знизився більш ніж на порядок.



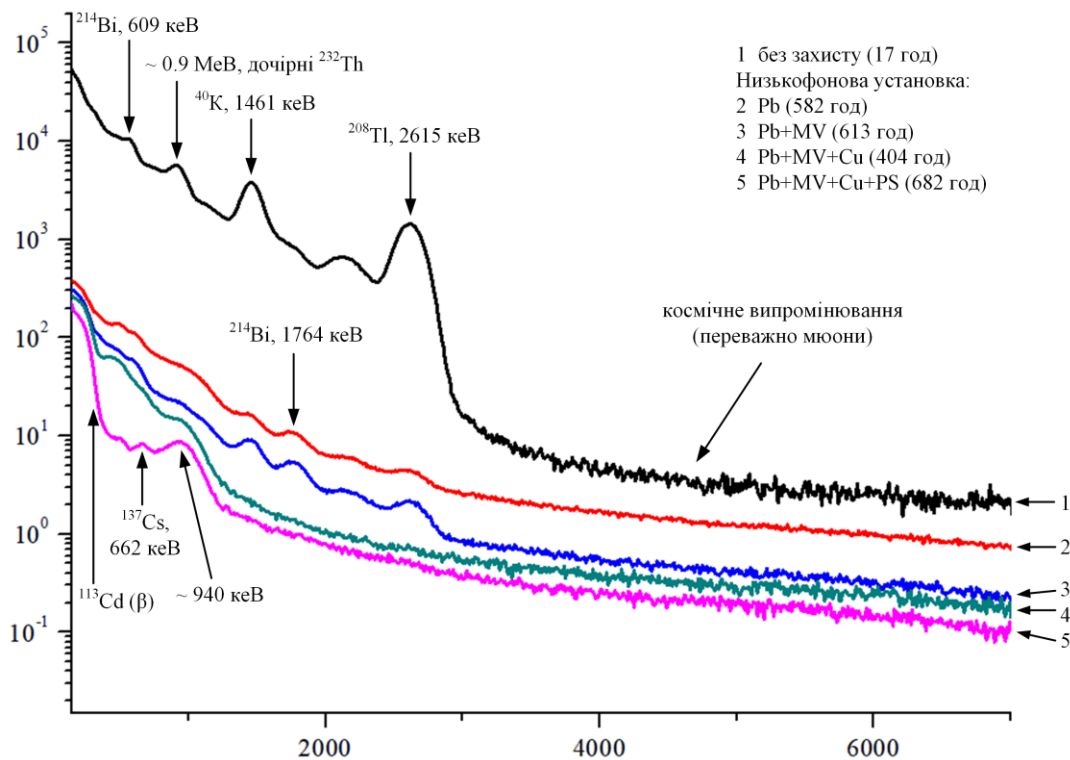


Рис. 2. Спектри кристалу  $\text{CdWO}_4$ , нормовані на час вимірювань. Pb – зі свинцевим екраном, Cu – з мідним екраном, MV – з лічильником мюонного захисту, PS – з блоком, що відкидає швидкі сигнали від черенковського випромінювання мюонів у світловоді. Стрілками показані фонові піки та їх енергія.

Для розділення  $\alpha$ - та  $\gamma(\beta)$ -сигналів був застосований метод оптимального фільтра [20, 21]. Для кожного сигналу розраховувався т.з. індикатор форми (SI):

$$SI = \frac{\sum_{k=1}^n f(t_k) \times P(t_k)}{\sum_{k=1}^n f(t_k)}, P(t) = \left| \frac{f_\alpha(t) - f_\gamma(t)}{f_\alpha(t) + f_\gamma(t)} \right|, \quad (1)$$

де  $f(t_k)$  – амплітуда сигналу в момент часу  $t_k$ ;  $P(t_k)$  – вагова функція,  $f_\alpha(t)$  та  $f_\gamma(t)$  – усереднені форми  $\alpha$ - та  $\gamma$ -сигналів, відповідно. На залежності індикатора форми від енергії, зображеній на рис. 3, спостерігаються дві групи подій, що свідчать про різну форму сцинтиляційних сигналів при поглинання у кристалі  $\text{CdWO}_4$   $\alpha$ -частинок та  $\gamma$ -квантів ( $\beta$ -частинок, космічних мюонів). Із аналізу форми сигналів можна зробити висновок, що спостережений пік у діапазоні енергій 0.4 – 1.2 MeV спричинений  $\alpha$ -частинками, ймовірно, від розпадів нукліду  $^{210}\text{Po}$ , дочірнього довгоживучого радіонукліду  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22.3$  роки).

Для оцінки чутливості установки до радіоактивних забруднень сцинтиляторів та матеріалів застосовано поняття порогу реєстрації  $L_D$  – максимальної активності, яку з довірчою ймовірністю  $P$  не можна зареєструвати за допомогою даної установки за даний час. Величину  $L_D$  можна отримати з припущення, що швидкість лічби ефекту не перевищує  $p$  стандартних відхилень швидкості лічби фону  $n_\phi$  в тому ж діапазоні енергії за час вимірювання  $t$ .

$$L_D = \frac{p \sqrt{n_\phi/t}}{m\eta\varepsilon\delta}, \quad (2)$$

де  $m$  – маса зразка,  $\eta$  – ймовірність випромінювання  $\gamma$ -квантів (електронів,  $\alpha$ -частинок),  $\varepsilon$  – ефективність реєстрації ефекту;  $p$  – коефіцієнт, що приводить результат до деякої довірчої ймовірності  $P$  ( $P = 68\%$  при  $p = 1$ ). Оцінки порогу реєстрації установки до радіоактивних забруднень було проведено для зразків полістиролу, кварцу, титану та міді у геометрії Марінеллі. Ефективність реєстрації  $\gamma$ -квантів у піку повного поглинання була визначена шляхом моделювання за допомогою пакету GEANT 4 (виконане к.ф.-м.н. В.В. Кобичевим). Поріг реєстрації детектора для часу вимірювання 30 діб та довірчої ймовірності 68% склав 0.2 – 1.7 мБк/кг ( $^{137}\text{Cs}$ ), 1.1 – 10 мБк/кг ( $^{228}\text{Ra}$ ), 31 – 277 мБк/кг ( $^{238}\text{U}$ ), 1.3 – 9.6 мБк/кг ( $^{40}\text{K}$ ), 0.9 – 6.7 мБк/кг ( $^{226}\text{Ra}$ ), 0.3 – 1.9 мБк/кг ( $^{228}\text{Th}$ ), що порівняно з чутливістю низькофонових напівпровідникових спектрометрів з надчистого германію.

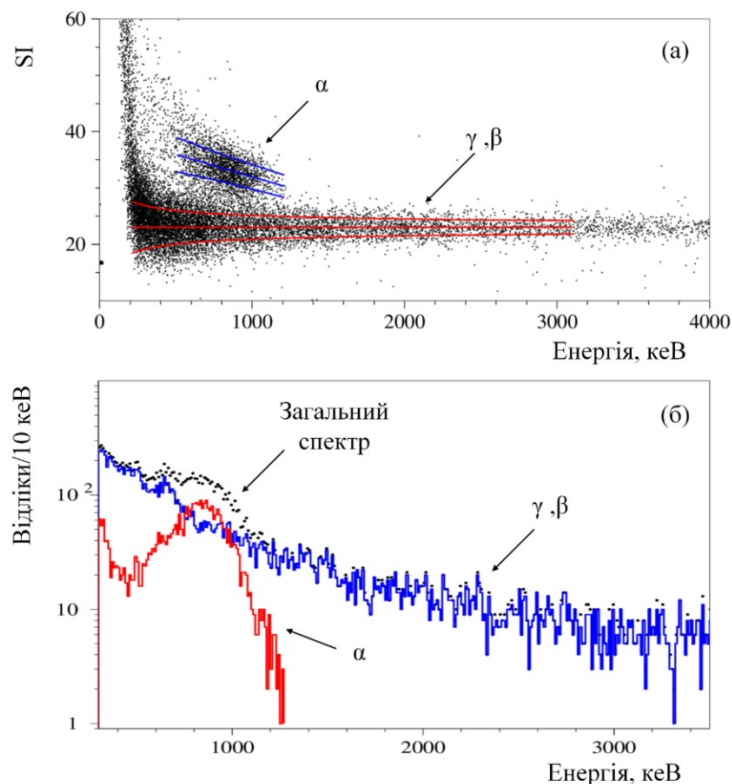


Рис. 3. (а) Енергетична залежність індикатора форми сигналів  $SI$  від енергії у енергетичній шкалі  $\gamma$ -квантів, (б)  $\alpha$ - та  $\gamma(\beta)$ -спектри, виділені за допомогою аналізу форми сигналів.

Чутливість сцинтиляційного детектора  $\text{CdWO}_4$  до внутрішніх  $\alpha$ -радіоактивних забруднень визначається величиною фону  $\gamma$ -квантів, що потрапили у вікно відбору для  $\alpha$ -частинок через часткове перекриття індикаторів форми  $\alpha$ - та  $\gamma(\beta)$ -сигналів (рис. 4).

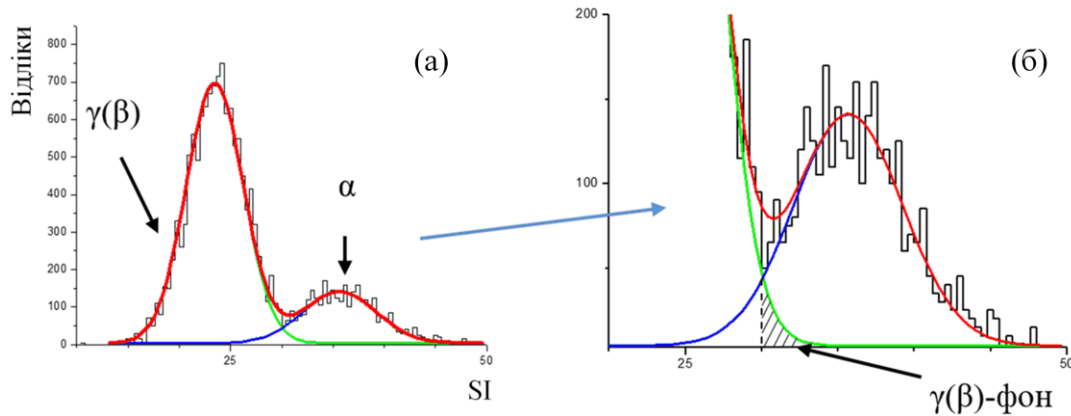


Рис. 4. (а) Розподіл індикатора форми сигналів ( $SI$ ) в інтервалі енергій 500 – 700 кеВ. Суцільною лінією показаний результат апроксимації розподілу двома функціями Гауса, що відповідають розподілам від  $\alpha$ -частинок та  $\gamma$ -квантів (показані стрілками); (б) фрагмент залежності з показаним внеском  $\gamma(\beta)$ -сигналів до вибраного інтервалу значень  $SI$ , що відповідають  $\alpha$ -подіям в детекторі  $CdWO_4$ .

Метод часово-амплітудного аналізу дозволяє ідентифікувати послідовні сигнали від ланцюжків швидких розпадів. Інтенсивність фону  $n$  двох послідовних випадкових сигналів у часовому інтервалі  $\Delta t$  буде визначатися виразом:

$$n = (n_1 n_2 + A \eta_1 \varepsilon_1 n_2 + A \eta_2 \varepsilon_2 n_1) \Delta t, \quad (3)$$

де  $A$  – активність материнського ізоотопу досліджуваного ланцюжка розпадів,  $\eta_1$ ,  $\eta_2$  – квантовий вихід досліджуваних частинок при першому та другому послідовних розпадах відповідно,  $\varepsilon_1$  та  $\varepsilon_2$  – повна ефективність реєстрації першої та другої частинки, відповідно. Таким чином, з формули (2), нехтуючи другим та третім доданками у виразі (3), що описують випадкові збіги, можна остаточно записати:

$$L_D = \frac{p}{\eta_1 \eta_2 \varepsilon_1 \varepsilon_2 \lambda} \sqrt{\frac{n_1 n_2 \Delta t}{t}}, \quad (4)$$

де  $\lambda$  – ймовірність потрапляння двох послідовних частинок від ланцюжка розпаду у вибраний проміжок часу  $[t_1, t_2]$ . Поріг реєстрації установки до радіоактивних забруднень сцинтилятора був оцінений на рівні 0.6 мБк/кг ( $^{226}\text{Ra}$ ), 0.04 мБк/кг ( $^{228}\text{Th}$ ) та 1.4 мБк/кг (сумарна активність  $\alpha$ -радіоактивних ядер).

Було досліджено активність радіонуклідів у зразку рідкого сцинтилятора об'ємом 7 мл, насиченого торієм, розробленого як джерело для калібрування детекторів  $\gamma$ -квантів за ефективністю реєстрації. Активність ізоотопів  $^{232}\text{Th}$  та  $^{228}\text{Th}$  була оцінена на рівні 4.61(2) Бк/мл та 3.82(7) Бк/мл, відповідно, що відповідає концентрації торію 0.113(1) мас. % та узгоджується з процедурою приготування рідкого сцинтилятора з торієм.

У **третьому розділі** описано вимірювання  $2\beta$ -розпаду ядра  $^{150}\text{Nd}$  на  $0_1^+$  збуджений стан ядра  $^{150}\text{Sm}$  (енергія збудження 740.5 кеВ) у підземній лабораторії Гран-Сассо (Італія). Експериментальна установка складається з чотирьох напівпровідникових детекторів із надчистого германію у криостаті із

циліндричним колодязем посередині. Детектори захищені шарами міді, свинцю та борованого поліетилену. Установка продувається азотом для витіснення радону. Зразок оксиду неодиму загальною масою 2381 г, що використовувався раніше для подібних вимірювань [22], був додатково очищений методом рідинно-рідинної екстракції (очищення виконав к.х.н. Р.С. Бойко) та встановлений на кришку криостата.

Для забезпечення стабільності енергетичної шкали виміряні спектри були прокалібровані за найбільш інтенсивними фоновими піками. Період напіврозпаду нукліду  $^{150}\text{Nd}$  визначався за формулою:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2 \cdot \varepsilon \cdot N \cdot t}{S}, \quad (5)$$

де  $\varepsilon$  – ефективність реєстрації  $\gamma$ -квантів у піку повного поглинання,  $N$  – кількість ядер  $^{150}\text{Nd}$  у зразку ( $4.8 \times 10^{23}$ ),  $t$  – час вимірювання,  $S$  – площа  $\gamma$ -піку.

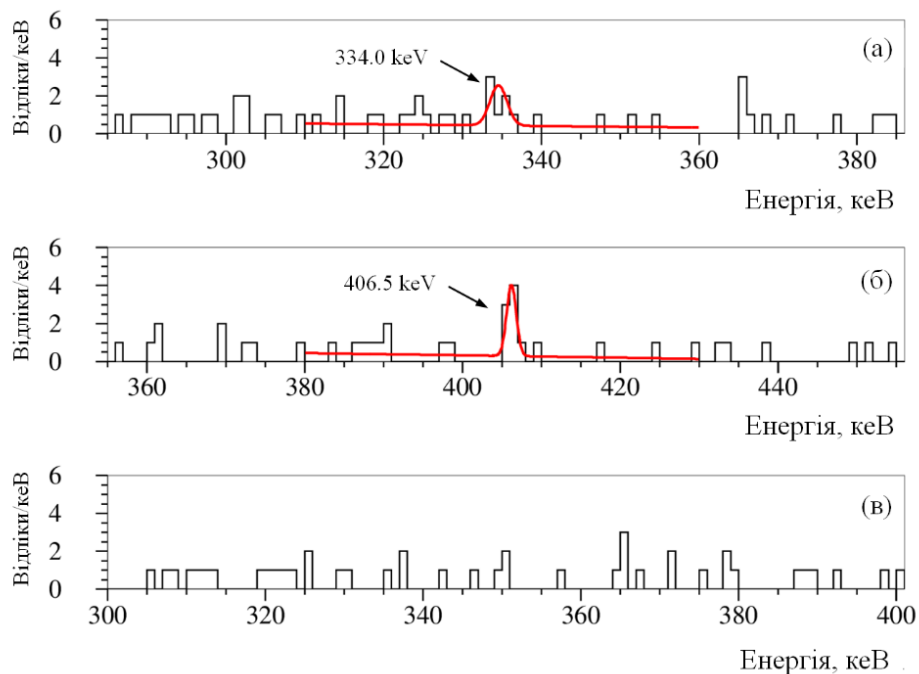


Рис. 5. Енергетичні спектри HPGe-детекторів у збігах при фіксованій енергії одного з детекторів: (а)  $(334.0 \pm 1.4 \cdot \text{ПШПВ})$  кеВ, (б)  $(406.5 \pm 1.4 \cdot \text{ПШПВ})$  кеВ; (в)  $(375.0 \pm 1.4 \cdot \text{ПШПВ})$  кеВ (фіксована енергія зсунута для отримання фону випадкових збігів).

При  $2\beta$ -розпаді ядра  $^{150}\text{Nd}$  на  $0_1^+$  збуджений стан  $^{150}\text{Sm}$ , відбувається його каскадний перехід на основний рівень з вильотом двох  $\gamma$ -квантів з енергіями 406.5 кеВ і 334.0 кеВ. У спектрі одиночних подій шукані  $\gamma$ -піки не спостережені. Спектри збігів формувалися шляхом фіксування енергії одного детектора в околі очікуваної енергії  $\gamma$ -квантів, при цьому спостерігаються піки, що відповідають іншому  $\gamma$ -кванту з шуканого каскаду (рис. 5). Площа сигналу та його похибки були визначені шляхом апроксимації спектру та застосування методу Фельдмана-Коузінса [23]:  $S = 5.7_{-2.6}^{+3.8}$  відліків. Використовуючи формулу (5) та врахувавши систематичну похибку вимірювань, можна визначити період напіврозпаду ядра  $^{150}\text{Nd}$  відносно шуканого процесу:

$$T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1}(\text{стат}) \pm 0.5(\text{сист}) \times 10^{19} \text{ років} \quad (6)$$

Це значення узгоджується із результатами інших експериментів [24].

У **четвертому розділі** описано вимірювання  $2\beta$ -розпаду ізоотопу  $^{116}\text{Cd}$  за допомогою двох сцинтиляційних кристалів вольфраму кадмію загальною масою 1162 г, збагачених досліджуваним ізоотопом до 82% ( $^{116}\text{CdWO}_4$ ). Вимірювання проводились у низькофоновій установці DAMA/R&D у лабораторії Гран-Сассо. Кожен кристал проглядався низькофоновим ФЕП ( $\varnothing 7.5$  см) через високочистий кварцовий світловід ( $\varnothing 7 \times 40$  см). Детектори були оточені шарами радіоактивно чистих міді, свинцю, кадмію та парафіну. Установка постійно продувалась азотом для витіснення радону. Калібрування енергетичної шкали проводилося кілька разів впродовж вимірювань за допомогою  $\gamma$ -джерел.

Для зниження радіоактивного фону детекторів було застосовано методи оптимального фільтра та часово-амплітудний аналіз швидких ланцюжків розпадів (див. розділ 2). Спектри  $\alpha$ - та  $\gamma(\beta)$ -частинок показані на рис. 6. Загальна активність  $\alpha$ -радіоактивних нуклідів становить 1.8(2) мБк/кг та 2.7(3) мБк/кг у кристалах №1 та №2, відповідно. Забрудненість другого кристалу значно більша, що може бути наслідком сегрегації домішок під час вирощування кристалу.

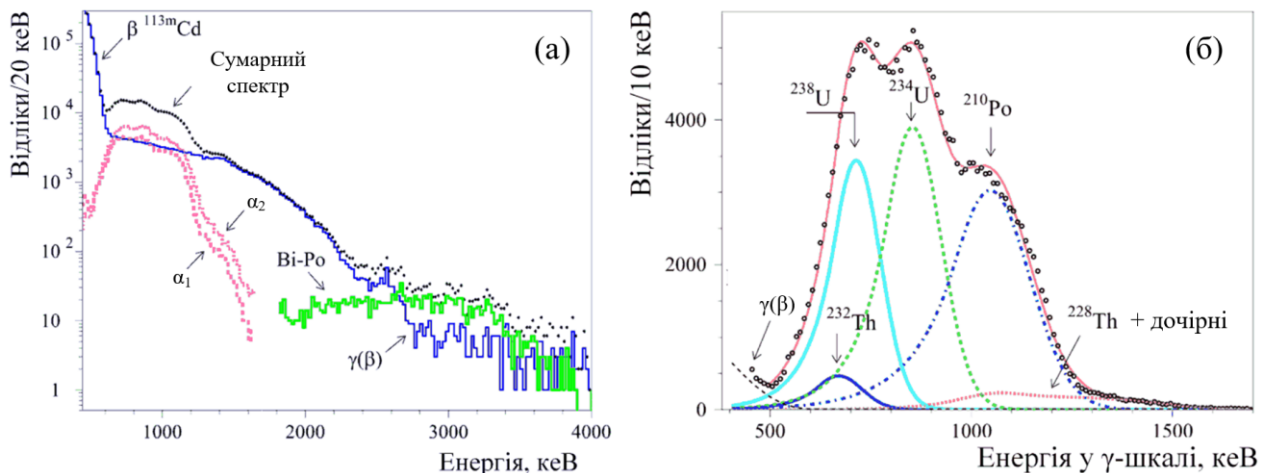


Рис. 6. (а) Енергетичний спектр отриманий протягом 26831 год вимірювань із двома кристалами  $^{116}\text{CdWO}_4$ . Стрілками позначено:  $\gamma(\beta)$  – сумарний спектр  $\gamma$ - та  $\beta$ -подій, отриманий розділенням за формою сигналів;  $\beta^{113\text{mCd}}$  –  $\beta$ -спектр розпаду ядра  $^{113\text{mCd}}$ ;  $\alpha_1$  та  $\alpha_2$  –  $\alpha$ -спектри першого та другого детектора;  $\text{Bi-Po}$  – спектр послідовних розпадів  $^{212}\text{Bi}$ – $^{212}\text{Po}$ ; (б) сумарний спектр  $\alpha$ -частинок (точки). Апроксимація, що включає неперервний фон  $\gamma(\beta)$ -подій та  $\alpha$ -піки ізоотопів рядів  $^{238}\text{U}$  та  $^{232}\text{Th}$  (показані стрілками), зображена суцільною лінією.

Сумарний  $\alpha$ -спектр, був апроксимований сумою  $\gamma(\beta)$ -фону та функцій, що відповідають  $\alpha$ -пікам  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  та їх дочірніх ізоотопів. Відбір ланцюжків розпаду  $^{224}\text{Ra} \rightarrow ^{220}\text{Rn} \rightarrow ^{216}\text{Po} \rightarrow ^{212}\text{Pb}$  здійснювався шляхом часово-амплітудного аналізу (див. розділ 2). Забрудненість кристалів ізоотопом  $^{228}\text{Th}$  становить 13(3) мкБк/кг та 29(4) мкБк/кг для першого та другого кристалів, відповідно.

Енергетичний  $\gamma(\beta)$ -спектр кристалів  $\text{CdWO}_4$  показаний на рис. 7. Шляхом моделювання методом Монте-Карло (моделювання було виконане доктором Фабіо Капелла) та апроксимації спектру отриманими моделями було отримано відгук детектора до  $2\nu 2\beta$ -розпаду  $^{116}\text{Cd}$ , радіоактивної забрудненості сцинтиляторів та деталей установки. Визначено активність радіонуклідів  $^{40}\text{K}$  (0.22(9) мБк/кг),  $^{232}\text{Th}$  (0.07(2) мБк/кг),  $^{228}\text{Th}$  (0.023(2) мБк/кг),  $^{238}\text{U}$  (0.58(4) мБк/кг),  $^{234}\text{U}$  (0.6(1) мБк/кг) та  $^{210}\text{Pb}$  (0.70(4) мБк/кг) у кристалах; загальна активність  $\alpha$ -радіоактивних нуклідів становить 2.14(2) мБк/кг.

Апроксимація даних дає  $126341 \pm 527$  подій, що відповідають шуканому розпаду. Враховуючи кількість досліджуваних ядер у кристалах ( $1.584 \times 10^{24}$ ), було оцінено період напіврозпаду ізотопу  $^{116}\text{Cd}$  відносно  $2\nu 2\beta$ -розпаду на основний рівень дочірнього ядра:

$$T_{1/2} = (2.63 \pm 0.01(\text{стат})_{-0.12}^{+0.11}(\text{сист})) \times 10^{19} \text{ років.} \quad (7)$$

Отриманий результат є на найбільш точним ([1], попередній найточніший результат був встановлений колаборацією NEMO-3:  $T_{1/2} = 2.74 \pm 0.04$  (стат)  $\pm 0.18$  (сист) [25]).

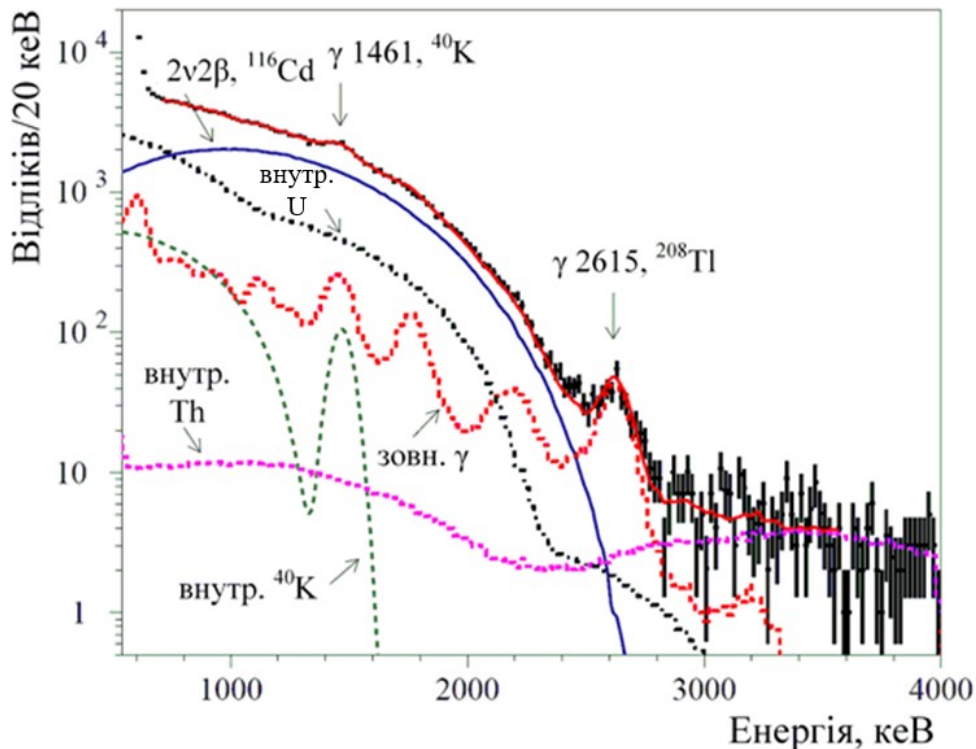


Рис. 7. Спектр  $\gamma(\beta)$ -подій, отриманий із детекторами  $^{116}\text{CdWO}_4$ . На рисунку зображено розподіли відгуку до радіоактивної забрудненості сцинтиляторів та експериментальної установки. Стрілками показані  $\gamma$ -піки (енергія в кеВ) та спостережений  $2\nu 2\beta$ -розпад ядер  $^{116}\text{Cd}$ .

В установці DAMA/R&D було проведено дослідження радіоактивної чистоти 6 кристалів вольфрамату цинку, вирощених методом Чохральського з низьким градієнтом температури. Зразки 16.1 та 16.2 були отримані з однієї кристалічної булі після однієї кристалізації, кристали 16.3 та 16.4 – шляхом перекристалізації буль першої кристалізації. Кристали 18.1 та 18.2 були вирощені шляхом однієї кристалізації із додатково очищеного оксиду

вольфраму. У табл. 1 наведена загальна активність  $\alpha$ -радіонуклідів та  $^{228}\text{Th}$  у кристалах (найвища чутливість до  $^{228}\text{Th}$  для неорганічних кристалічних сцинтиляторів [26]).

Табл. 1. Радіоактивна забрудненість сцинтиляційних кристалів вольфрамату цинку.

Номер зразка	Час вимірювань, год	Активність, мкБк/кг		Індекс фону $\gamma(\beta)$ -подій, відліків/діб/кеВ/кг	
		$\alpha$ -активні нукліди	$^{228}\text{Th}$	0.8 – 1.0 MeV	2.0 – 2.9 MeV
16.1	8097	158(3)	$\leq 0.17$	0.044(1)	0.0029(1)
16.2		331(5)	$\leq 0.17$	0.057(2)	0.0031(2)
16.3		577(6)	$\leq 0.17$	0.082(2)	0.0030(1)
16.4		1418(9)	$0.34^{+0.19}_{-0.16}$	0.110(2)	0.0067(2)
18.1	4299	159(8)	$\leq 1.3$	0.062(4)	0.0028(3)
18.2		218(9)	$\leq 1.3$	0.070(4)	0.0015(3)

## ВИСНОВКИ

У дисертації наведено результати експериментального дослідження подвійного бета-розпаду ядер  $^{116}\text{Cd}$  та  $^{150}\text{Nd}$ , радіоактивних забруднень сцинтиляційних кристалів вольфрамату кадмію та цинку, а також результати розробки низькофонової сцинтиляційної установки з кристалом вольфрамату кадмію великого об'єму.

1. Були підготовлені та проведені вимірювання фону сцинтиляційного детектора з кристалом вольфрамату кадмію у низькофоновій установці, побудованій у відділі фізики лептонів Інституту ядерних досліджень НАН України. Досягнуто зниження фону при енергії гамма-квантів  $>3$  MeV на один порядок та на 2-3 порядки для енергій 0.5-3.0 MeV. Також були проведені вимірювання із записом форми сцинтиляційних сигналів, що дозволило оцінити загальну  $\alpha$ -активність у сцинтиляторі  $^{232}\text{Th}$  і  $^{238}\text{U}$  з їх дочірніми.

Оцінено чутливість низькофонової установки до радіоактивних забруднень сцинтиляторів на рівні  $\leq 0.3$  мБк/кг ( $^{226}\text{Ra}$ ),  $\leq 0.02$  мБк/кг ( $^{228}\text{Th}$ ),  $\leq 0.7$  мБк/кг (сумарна активність  $\alpha$ -радіоактивних нуклідів), а також до радіоактивних забруднень у зразках різних матеріалів (полістирол, кварц, титан, мідь) на рівні (1 – 10) мБк/кг ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{226,228}\text{Ra}$ ), (0.2 – 1.9) мБк/кг ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ), (31 – 277) мБк/кг ( $^{238}\text{U}$ ) (для часу вимірювання 30 діб і довірчої ймовірності 68%). Високі рівні чутливості детектора були отримані завдяки використанню сцинтилятора великого об'єму та відповідної конструкції установки. Було проаналізовано внутрішню  $\alpha$ -радіоактивність рідкого сцинтилятора з вмістом торію, розробленого для калібрування за ефективністю реєстрації та для точного вимірювання періоду напіврозпаду ядра  $^{212}\text{Po}$ .

2. Досліджено  $2\beta$ -розпад ядра  $^{150}\text{Nd}$  на перший  $0^+$  збуджений рівень дочірнього ядра  $^{150}\text{Sm}$  за допомогою установки з 4-ма низькофоновими

напівпровідниковими детекторами із надчистого германію та глибоко очищеного зразка оксиду неодиму. Отримано період напіврозпаду  $^{150}\text{Nd}$  відносно  $2\nu 2\beta$ -розпаду на перший  $0^+$  збуджений рівень  $^{150}\text{Sm}$ :  $T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1}(\text{стат}) \pm 0.5(\text{сист}) \times 10^{19}$  років.

3. За допомогою сцинтиляційних кристалів вольфрамату кадмію зі збагаченого кадмію (82%  $^{116}\text{Cd}$ ) досліджено  $2\beta$ -розпад ядра  $^{116}\text{Cd}$ . З аналізу даних 26831 годин вимірювань було оцінено забрудненість кристалів вольфрамату кадмію радіонуклідами уран-торієвих рядів (0.023 – 0.7 мБк/кг),  $^{40}\text{K}$  (0.22(9) мБк/кг),  $^{90}\text{Sr}$ – $^{90}\text{Y}$  ( $\leq 0.02$  мБк/кг) та  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (0.007 мБк/кг), що дало змогу отримати найточніше значення періоду напіврозпаду ядра  $^{116}\text{Cd}$  відносно  $2\nu 2\beta$ -розпаду на основний рівень дочірнього ядра:

$$T_{1/2} = (2.63 \pm 0.01(\text{стат})_{-0.12}^{+0.11}(\text{сист})) \times 10^{19} \text{ років.}$$

4. Досліджено рівень радіоактивного забруднення сцинтиляційних кристалів вольфрамату цинку, вирощених методом Чохральського з низьким градієнтом температури у різних умовах. Внутрішня активність альфа-радіоактивних ізотопів у кристалах виміряна на рівні 158 – 1418 мБк/кг; внутрішня забрудненість ізотопом  $^{228}\text{Th}$  була оцінена на рівні 0.34 мБк/кг для найбільш забрудненого кристалу, для інших кристалів встановлені безпрецедентно високі обмеження на рівні  $\leq (0.17 - 1.3)$  мБк/кг.

### СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, D.M. Chernyak, F.A. Danevich, S. d'Angelo, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, V.V. Kobychyev, S.I. Konovalov, M. Laubenstein, D.V. Poda, O.G. Polischuk, V.N. Shlegel, V.I. Tretyak, V.I. Umatov and Ya.V. Vasiliev, "Final results of the Aurora experiment to study  $2\beta$  decay of  $^{116}\text{Cd}$  with enriched  $^{116}\text{CdWO}_4$  crystal scintillators", *Phys. Rev. D*, vol. 98, 092007, 2018.
2. A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, R. Boiko, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, F.A. Danevich, A. Di Marco, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, R.V. Kobychyev, V.V. Kobychyev, S.I. Konovalov, M. Laubenstein, D.V. Poda, O.G. Polischuk, V.I. Tretyak and V.I. Umatov, "Double beta decay of  $^{150}\text{Nd}$  to the first excited  $0^+$  level of  $^{150}\text{Sm}$ : preliminary results", *Nucl. Phys. At. Energy*, vol. 19, no. 2, pp. 95-102, 2018.
3. D.V. Kasperovych, F.A. Danevich, V.V. Kobychyev, B.N. Kropivnyansky, N.V. Sokur and A. Tymoshenko, "Low background scintillation setup to investigate radiopurity of materials", *Probl. At. Sci. Technol.*, vol. 208, no. 1, pp. 24-31, 2018.
4. П. Беллі, Р. Бернабей, Р. Бойко, Ф.А. Даневич, А. Ді Марко, А. Інчікітті, Д.В. Касперович, Ф. Капелла, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, О.Г. Поліщук, Н.В. Сокур, В.І. Третьак та Р. Черулі, "Вимірювання періоду напіврозпаду ядра  $^{212}\text{Po}$  за допомогою насиченого торієм рідкого сцинтилятора", *Яд. Фіз. та Енерг.*, т. 19, № 3, р. 220, 2018.
5. P. Belli, R. Bernabei and Yu.A. Borovlev, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, F.A. Danevich, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, O.G. Polischuk, V.N. Shlegel,



- D.S. Tkachev, S.V. Tkachev, V.I. Tretyak, V.N. Zhdankov, "New development of radiopure ZnWO<sub>4</sub> crystal scintillators", *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 935, p. 89, 2019.
6. O.G. Polischuk, A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, D.M. Chernyak, F.A. Danevich, S. d'Angelo, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, V.V. Kobychhev, S.I. Konovalov, M. Laubenstein, V.M. Mokina, D.V. Poda, V.N. Shlegel, V.I. Tretyak, V.I. Umatov and Ya.V. Vasiliev, "Investigation of 2 $\beta$  decay of <sup>116</sup>Cd with the help of enriched <sup>116</sup>CdWO<sub>4</sub> scintillators", *AIP Conf. Proc.*, vol. 1894, 020018, 2017.
  7. D.V. Kasperovych, F.A. Danevich, V.V. Kobychhev, B.N. Kropivnyansky, N.V. Sokur and A.I. Tymoshenko, "Low background CdWO<sub>4</sub> scintillation detector", *Acta Phys. Pol. A*, vol. 133, pp. 923-927, 2018.
  8. A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, R.S. Boiko, V.B. Brudanin, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, D.M. Chernyak, C.J. Dai, F.A. Danevich, A. d'Angelo, A. Di Marco, H.L. He, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, V.V. Kobychhev, S.I. Konovalov, H.H. Kuang, X.H. Ma, V. Merlo, F. Montecchia, D.V. Poda, O.G. Polischuk, X.D. Sheng, V.N. Shlegel, V.I. Tretyak, V.I. Umatov, R.G. Wang, Z.P. Ye and M.M. Zarytskyu, "Search for rare processes with DAMA experimental set-ups", *EPJ Web Conf.*, vol. 182, p. 02026, 2018.
  9. A. Di Marco, A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, R.S. Boiko, V.B. Brudanin, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, D.M. Chernyak, F.A. Danevich, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, V.V. Kobychhev, S.I. Konovalov, M. Laubenstein, V. Merlo, F. Montecchia, O.G. Polischuk, D.V. Poda, V.N. Shlegel, V.I. Tretyak, V.I. Umatov, Ya.V. Vasiliev and M.M. Zarytskyu, "Recent Developments and Results on Double Beta Decays with Crystal Scintillators and HPGe Spectrometry", *Universe*, vol. 4, p. 147, 2018.
  10. Д.В. Касперович, Ф.А. Даневич, В.В. Кобичев, Б.М. Кропив'янський та А.І. Тимошенко, "Низькофононий сцинтиляційний спектрометр з кристалом CdWO<sub>4</sub>", *XXIV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень. Тези доповідей.* – Київ, 2017, с. 70.
  11. Д.В. Касперович, П. Беллі, Р. Бернабей, Р.С. Бойко, Ф.А. Даневич, А. Інчікітті, Ф. Каппелла, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, М. Лаубенштейн, Д.В. Пода, О.Г. Поліщук, В.І. Третяк та Р. Черуллі, "Пошук подвійного  $\beta$ -розпаду <sup>150</sup>Nd на перший 0<sup>+</sup> збуджений рівень <sup>150</sup>Sm", *XXIV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України. Тези доповідей.* – Київ, 2017, с. 71.
  12. О.Г. Поліщук, А.С. Барабаш, П. Беллі, Р. Бернабей, Я.В. Васильєв, Ф.А. Даневич, А. Інчікітті, Ф. Каппелла, Д.В. Касперович, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, С.І. Коновалов, М. Лаубенштейн, В.М. Мокіна, Д.В. Пода, В.І. Третяк, В.І. Юматов, Д.М. Черняк, Р. Черуллі та В.М. Шлегель, "Дослідження подвійного бета-розпаду <sup>116</sup>Cd за допомогою збагачених сцинтиляційних кристалів <sup>116</sup>CdWO<sub>4</sub>", *XXIV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України. Тези доповідей.* – 2017, с. 86.
  13. Н.В. Сокур, Ф.А. Даневич, Д.В. Касперович та Б.М. Кропив'янський, "Лічильник мюонного вето низькофонового сцинтиляційного детектора",

*XXIV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України. Тези доповідей.* – Київ, 2017, с. 100.

14. О.Г. Поліщук, О.С. Барабаш, П. Беллі, Р. Бернабей, Я.В. Васильєв, Ф.А. Даневич, А. Інчікітті, Ф. Каппелла, Д.В. Касперович, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, С.І. Коновалов, М. Лаубенштейн, Д.В. Пода, В.І. Третяк, В.І. Юматов, Д.М. Черняк, Р. Черуллі та В.М. Шлегель, "Остаточні результати експерименту Auger з дослідження подвійного бета-розпаду  $^{116}\text{Cd}$  за допомогою збагачених сцинтиляційних кристалів  $^{116}\text{CdWO}_4$ ", *XXV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України. Тези доповідей.* – Київ, 2018, с. Д11.
15. Д.В. Касперович, О.С. Барабаш, П. Беллі, Р. Бернабей, Р.С. Бойко, Ф.А. Даневич, А. Інчікітті, Ф. Каппелла, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, Р.В. Кобичев, С.І. Коновалов, М. Лаубенштейн, Д.В. Пода, О.Г. Поліщук, В.І. Третяк, В.І. Юматов та Р. Черуллі, "Перший результат вимірювань  $2\beta$ -розпаду  $^{150}\text{Nd}$  на  $0_1^+$  збуджений стан  $^{150}\text{Sm}$  у підземній лабораторії Гран-Сассо", *XXV щорічна наукова конференція Інституту ядерних досліджень НАН України. Тези доповідей.* – Київ, 2018, с. 62.
16. Д.В. Касперович, Ф.А. Даневич, В.В. Кобичев, Б.М. Кропив'янський, Н.В. Сокур та А.І. Тимошенко, "Зниження фону сцинтиляційного детектора  $\text{CdWO}_4$ ", *Міжнародна школа-семінар "Сцинтиляційні процеси і матеріали для реєстрації іонізуючого випромінювання". Тези доповідей.* – Харків, 2017, с. 5.
17. D.V. Kasperovych, F.A. Danevich, V.V. Kobychhev, B.N. Kropivyansky, N.V. Sokur and A.I. Tymoshenko, "Low Background  $\text{CdWO}_4$  Scintillation Detector", *International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and applications. Book of Abstracts.* – Lviv, 2017, p. 134.
18. O.G. Polischuk, A.S. Barabash, P. Belli, R. Bernabei, F. Cappella, V. Caracciolo, R. Cerulli, D.M. Chernyak, F.A. Danevich, S. d'Angelo, A. Incicchitti, D.V. Kasperovych, V.V. Kobychhev, S.I. Konovalov, M. Laubenstein, V.M. Mokina, D.V. Poda, V.N. Shlegel, V.I. Tretyak, V.I. Umatov and Ya.V. Vasiliev, "Investigation of double beta decay of  $^{116}\text{Cd}$  with the help of enriched  $^{116}\text{CdWO}_4$  crystal scintillators", *International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and applications. Book of Abstracts.* – Lviv, 2017, p. 186.
19. Д.В. Касперович, О.С. Барабаш, П. Беллі, Р. Бернабей, Я.В. Васильєв, Ф.А. Даневич, А. Інчікітті, Ф. Каппелла, О.Г. Поліщук, В. Караччіоло, В.В. Кобичев, С.І. Коновалов, М. Лаубенштейн, Д.В. Пода, В.І. Третяк, Д.М. Черняк, Р. Черуллі, В.М. Шлегель та В.І. Юматов, "Застосування збагачених сцинтиляційних кристалів  $^{116}\text{CdWO}_4$  для експериментального дослідження  $2\beta$ -розпаду ізотопу  $^{116}\text{Cd}$ ", *Міжнародна школа-семінар «Функціональні матеріали для технічних та біомедичних застосувань». Тези доповідей.* – Харків, 2018, р. 17.

## ПЕРЕЛІК ЦИТОВАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

20. E. Gatti and F. De Martini, "A new linear method of discrimination between elementary particles in scintillation counters", *Nuclear Electronics II, Proceedings of the Conference on Nuclear Electronics. Vol. II, Int. Atomic Energy Agency, Vienna, 1962*, p. 265.
21. T. Fazzini et al., "Pulse-shape discrimination with CdWO<sub>4</sub> crystal scintillators", *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 410, p. 213, 1998.
22. A. Barabash et al., "Investigation of  $\beta\beta$  decay in <sup>150</sup>Nd and <sup>148</sup>Nd to the excited states of daughter nuclei", *Phys. Rev. C*, vol. 79, p. 045501, 2009.
23. G. Feldman and R. Cousins, "Unified approach to the classical statistical analysis of small signals", *Phys. Rev. D*, vol. 57, p. 3873, 1998.
24. A.S. Barabash, "Average and recommended half-life values for two-neutrino double beta decay: upgrade-2019", arXiv:1907.06887.
25. R. Arnold et al., "Measurement of the  $2\nu\beta\beta$  decay half-life and search for the  $0\nu\beta\beta$  decay of <sup>116</sup>Cd with the NEMO-3 detector", *Phys. Rev. D*, vol. 95, p. 012007, 2017.
26. F.A. Danevich and V.I. Tretyak, "Radioactive contamination of scintillators", *Int. J. Mod. Phys. A*, vol. 33, No. 9, p. 1843007, 2018.

## АНОТАЦІЯ

**Касперович Д.В. Подвійний бета-розпад ядер <sup>116</sup>Cd та <sup>150</sup>Nd. – На правах рукопису.**

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук (доктора філософії) за спеціальністю 01.04.16 – Фізика ядра, елементарних частинок та високих енергій. – Інститут ядерних досліджень Національної академії наук України, Київ, 2019.

У дисертації представлено результати розробки низькофонові сцинтиляційної установки для низькофонових експериментів та дослідження радіоактивної забрудненості сцинтиляторів та зразків матеріалів. Виміряно спектри фону зі сцинтиляційним детектором CdWO<sub>4</sub> у різних конфігураціях пасивного та активного захисту. Рівень фону знижено на порядок у області енергії >3 МеВ та на 3 порядки в інтервалі енергій 0.5 – 2.5 МеВ. Оцінено чутливість установки до радіоактивних забруднень сцинтиляторів та зразків матеріалів.

Подвійний бета-розпад ядра <sup>150</sup>Nd на перший 0<sup>+</sup> збуджений рівень <sup>150</sup>Sm з енергією 740.5 кеВ було досліджено за допомогою глибоко очищеного зразка оксиду неодиму масою 2381 г у низькофоновій установці з 4-ма детекторами з високочистого германію протягом 16375 годин вимірювань. Було визначено забрудненість зразка радіонуклідами <sup>40</sup>K, дочірніми уран-торієвих рядів, <sup>138</sup>La та <sup>176</sup>Lu. У спектрі збігів спостережено  $\gamma$ -кванти з енергіями 334.0 кеВ та 406.5 кеВ, очікувані у шуканому розпаді. Отримано період напіврозпаду  $T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1}(\text{стат}) \pm 0.5(\text{сист}) \times 10^{19}$  років.

Було проаналізовано радіоактивну забрудненість сцинтиляційних кристалів вольфрамату кадмію, збагачених ізотопом <sup>116</sup>Cd до 82%,

радіонуклідами  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , дочірніми уран-торієвих рядів, що дозволило отримати найточніше значення періоду напіврозпаду  $^{116}\text{Cd}$  відносно двонейтринного подвійного бета-розпаду на основний стан ядра  $^{116}\text{Sn}$ :  $T_{1/2} = (2.63 \pm 0.01(\text{стат})_{-0.12}^{+0.11}(\text{сист})) \times 10^{19}$  років.

Досліджено радіоактивну забрудненість сцинтиляційних кристалів вольфрамату цинку, отриманих методом Чохральського з низьким температурним градієнтом у різних умовах. Внутрішня активність  $\alpha$ -радіоактивних ізотопів лежить у межах 0.16 – 1.4 мБк/кг; активність  $^{228}\text{Th}$  у найкращих зразках не перевищує 0.17 мБк/кг. Це дозволяє у подальшому застосовувати сцинтиляційні кристали  $\text{ZnWO}_4$  у різних експериментах з пошуку рідкісних ядерних процесів.

Ключові слова: подвійний бета-розпад, низькофоновий експеримент, спектрометрія ядерних випромінювань, сцинтиляційний детектор, напівпровідниковий детектор.

### ABSTRACT

**Kasperovych D.V. Double beta decay of  $^{116}\text{Cd}$  and  $^{150}\text{Nd}$  nuclei. – Manuscript.**

Thesis for candidate (Doctor of Philosophy) degree (Physics and Mathematics) by specialty 01.04.16 – Nuclear, Particle and High Energy Physics. Institute for Nuclear Research, National Academy of Science of Ukraine, Kyiv, 2019.

The thesis describes R&D of the low background scintillation setup for small scale low counting experiments, scintillators and materials screening. Background energy spectra of  $\text{CdWO}_4$  scintillation detector in conditions without shield, and different passive copper, lead, and active shield (muon-veto counter, hardware rejection of Cherenkov signals in the quartz light-guide of the  $\text{CdWO}_4$  detector) configurations were measured. The level of background was reduced by one order of magnitude above the energy 3 MeV and by 3 orders of magnitude in the energy interval 0.5 – 2.5 MeV. The sensitivity of the setup to radioactive contamination of scintillators and different materials samples was estimated.

Double beta decay of  $^{150}\text{Nd}$  to the first  $0^+$  740.5-keV excited level of  $^{150}\text{Sm}$  was investigated by using a deeply purified 2381-g neodymium oxide measured by four low-background HPGe detectors for 16375 h. Radioactive contamination of the sample by  $^{40}\text{K}$ , nuclides of uranium and thorium chains,  $^{138}\text{La}$  and  $^{176}\text{Lu}$  has been estimated. Gamma quanta with energies 334.0 keV and 406.5 keV, expected in the decay, are observed in coincidence mode giving the half-life  $T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1}(\text{stat}) \pm 0.5(\text{syst}) \times 10^{19}$  y.

Radioactive contamination of enriched in  $^{116}\text{Cd}$  to 82%  $^{116}\text{CdWO}_4$  crystal scintillators by uranium-thorium daughters,  $^{40}\text{K}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  has been analysed that allowed to obtain the most accurate value of the half-life of  $^{116}\text{Cd}$  relatively to the  $2\nu 2\beta$  decay to the ground state of  $^{116}\text{Sn}$  as  $T_{1/2} = (2.63 \pm 0.01(\text{stat})_{-0.12}^{+0.11}(\text{syst})) \times 10^{19}$  y.

Radioactive contaminations of zinc tungstate crystal scintillators, produced by low-thermal-gradient Czochralski technique in various conditions, have been

investigated. The total alpha activity varies between 0.16 and 1.4 mBq/kg, while the  $^{228}\text{Th}$  activity is limited on the level of  $< 0.17 \mu\text{Bq/kg}$  in the best samples. The results open possibility for application of  $\text{ZnWO}_4$  crystal scintillators in low counting experiments.

Keywords: double beta decay, low counting experiment, nuclear spectrometry, scintillation detector, semiconductor detector.

## АННОТАЦИЯ

**Касперович Д.В. Двойной бета-распад ядер  $^{116}\text{Cd}$  и  $^{150}\text{Nd}$ . – На правах рукописи.**

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук (доктора философии) по специальности 01.04.16 – Физика ядра, элементарных частиц и высоких энергий. – Институт ядерных исследований Национальной академии наук Украины, Киев, 2019.

В диссертации представлены результаты разработки низкофоновой сцинтилляционной установки в отделе физики лептонов Института ядерных исследований НАН Украины, предназначенной для проведения низкофоновых экспериментов по поиску редких ядерных процессов, а также анализа радиоактивных загрязненностей образцов материалов и сцинтилляторов. Выполнены измерения энергетических спектров фона сцинтилляционного детектора вольфрамата кадмия ( $\text{CdWO}_4$ ) большого объема в разных конфигурациях пассивной защиты (низкорadioактивные медь и свинец), с активной защитой, состоящей из счетчика мюонных сигналов (мюонное вето) и электронного блока, отбрасывающего быстрые сигналы, обусловленные черенковским излучением мюонов в кварцевом световоде. Фон детектора в установке снижен на один порядок в области энергий  $>3 \text{ МэВ}$  (область фона космического излучения) и на три порядка в интервале энергий  $0.5 - 2.5 \text{ МэВ}$ . Также были определены уровни чувствительности установки к радиоактивным загрязнениям образцов разных материалов на уровне  $(0.2 - 277) \text{ мБк/кг}$  (для времени измерений 30 суток и доверительной вероятности 68%). Чувствительность к радиоактивным загрязнениям сцинтиллятора составляет  $\sim 0.3 \text{ мБк/кг}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ),  $\sim 0.02 \text{ мБк/кг}$  ( $^{228}\text{Th}$ ),  $\sim 0.7 \text{ мБк/кг}$  для суммарной альфа-активности дочерних изотопов уран-ториевых рядов.

Выполнено экспериментальное исследование двойного бета-распада ядра  $^{150}\text{Nd}$  на первый  $0^+$  возбужденный уровень  $^{150}\text{Sm}$  с энергией  $740.5 \text{ кэВ}$ . Измерения с образцом глубоко очищенного оксида неодима массой  $2381 \text{ г}$  проводились в Национальной лаборатории Гран-Сассо (Италия) с помощью четырех полупроводниковых детекторов из сверхчистого германия в течение  $16375$  часов. Был произведен поиск гамма-квантов с энергиями  $334 \text{ кэВ}$  и  $406.5 \text{ кэВ}$ , каскадно излучаемых при переходе дочернего ядра  $^{150}\text{Sm}$  на основной уровень. В спектре временных совпадений в разных парах детекторов наблюдаются гамма-пики, соответствующие искомому распаду. Полученный период полураспада находится в соответствии с результатами предыдущих измерений:  $T_{1/2} = 4.7_{-1.9}^{+4.1}(\text{стат}) \pm 0.5(\text{сист}) \times 10^{19} \text{ лет}$ . Эксперимент

продолжается с целью уменьшения статистической погрешности полученного результата.

Представлены результаты экспериментального исследования двойного бета-распада изотопа  $^{116}\text{Cd}$  на основной уровень дочернего ядра  $^{116}\text{Sn}$ . Измерения проводились в лаборатории Гран-Сассо с помощью двух сцинтилляционных кристаллов вольфрамата кадмия общей массой 1.162 кг, обогащенных исследуемым изотопом  $^{116}\text{Cd}$  до 82%. Сцинтилляционные детекторы были установлены в низкофоновой установке с пассивной защитой, состоящей из слоев низкорadioактивных меди, свинца, кадмия и парафина. В результате анализа данных 26831 часов измерений было получено самое точное значение периода полураспада нуклида  $^{116}\text{Cd}$  относительно  $2\nu 2\beta$ -распада на основной уровень дочернего ядра:  $T_{1/2} = (2.63 \pm 0.01(\text{stat})_{-0.12}^{+0.11}(\text{syst})) \times 10^{19}$  лет. Был определен уровень радиоактивной загрязненности сцинтилляторов  $^{116}\text{CdWO}_4$  на уровне  $0.22 \pm 0.09$  мБк/кг ( $^{40}\text{K}$ ),  $0.023 \pm 0.002$  мБк/кг ( $^{228}\text{Th}$ ),  $0.58 \pm 0.04$  мБк/кг ( $^{238}\text{U}$ ),  $0.6 \pm 0.1$  мБк/кг ( $^{234}\text{U}$ ),  $0.70 \pm 0.04$  мБк/кг ( $^{210}\text{Pb}$ ),  $2.14 \pm 0.02$  мБк/кг (общая активность альфа-радиоактивных нуклидов в кристаллах), а также ограничены активности других радионуклидов уран-ториевых рядов,  $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$  и  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ :  $\leq (0.002 - 0.13)$  мБк/кг.

Исследована радиоактивная загрязненность сцинтилляционных кристаллов вольфрамата цинка, выращенных методом Чохральского с низким градиентом температуры. Общая альфа-активность находится в пределах  $0.16 - 1.4$  мБк/кг; активность  $^{228}\text{Th}$  в лучших образцах не превышает  $0.17$  мкБк/кг. Это позволяет в дальнейшем применять сцинтилляционные кристаллы  $\text{ZnWO}_4$  в экспериментах по поиску редких ядерных процессов.

Ключевые слова: двойной бета-распад, низкофоновый эксперимент, спектрометрия ядерных излучений, сцинтилляционный детектор, полупроводниковый детектор.