

# Влияние перекристаллизации на радиоактивную загрязненность сцинтилляционных кристаллов $\text{CaWO}_4$

**Ф.А. Даневич, В.В. Кобычев, С.С. Нагорный, А.С. Николайко**

*Институт ядерных исследований НАНУ, Украина*

**И.К. Бейлифф**

*Университет Дурхем, Лаборатория люминесцентной дозиметрии, Великобритания*

**Х. Краус, В.Б. Михайлик**

*Оксфордский университет, Физический факультет, Великобритания*

**М. Лаубенштейн, С. Ниси**

*Национальный институт ядерной физики, Национальная лаборатория Гран Сассо, Италия*

**П. Лоаиза, Г. Вейрот**

*Подземная лаборатория Модан, Франция*

**И.М. Сольский**

*Научно-исследовательское предприятие „Карат“, Украина*

# Содержание

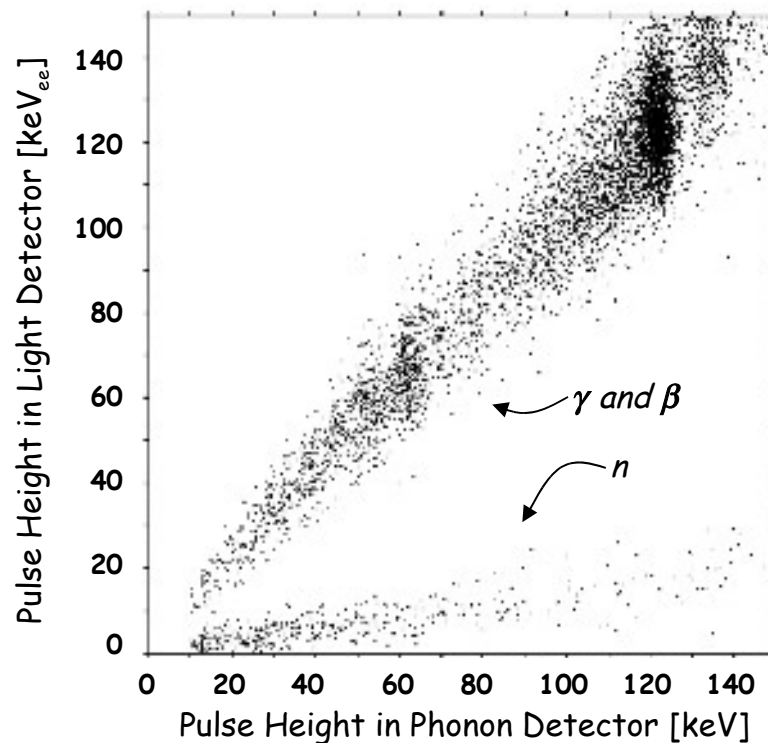
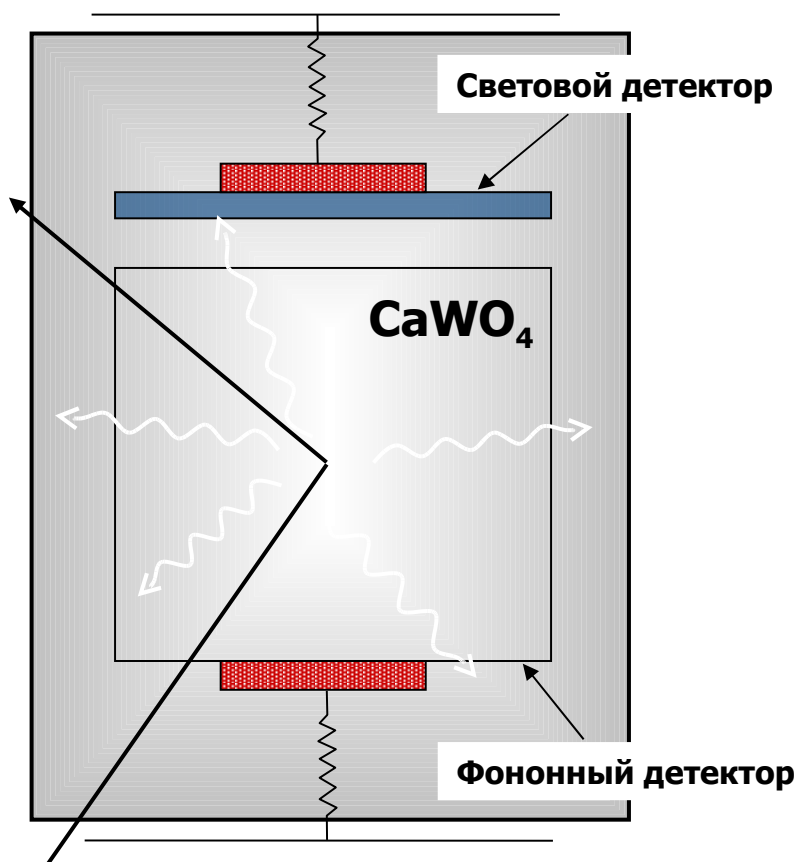
- Кристаллы  $\text{CaWO}_4$  для поиска  $2\beta$  распада и частиц темной материи
- Схема производства кристаллов
- Сцинтилляционные характеристики  $\text{CaWO}_4$
- Радиоактивная загрязненность  $\text{CaWO}_4$
- Характеристики улучшенной шихты
- Выводы и планы



# Поиск частиц темной материи

European Underground Rare Event Calorimeter Array

$\text{CaWO}_4$  – сцинтилляционно-фононный детектор частиц темной материи



**100% разделение сигналов ядер отдачи от фона благодаря одновременной регистрации светового и фононного сигналов**

**$^{48}\text{Ca}$**

**$Q_{\beta\beta} = 4.272 \text{ МэВ}$**

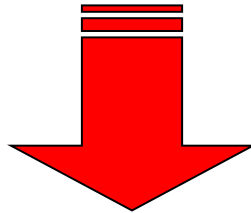
**$\delta = 0.187\%$**

**CARVEL**

**$^{48}\text{CaWO}_4$ , 100 кг, 10 лет,  $\delta = 100\%$ , 2,5% @  $Q_{\beta\beta}$ , PSD**

**$T_{1/2} \sim 10^{27}$  лет,  $m_\nu \sim 0,04 - 0,09$  эВ**

**Активность нуклидов U ряда  $\approx 0,5$  Бк/кг**



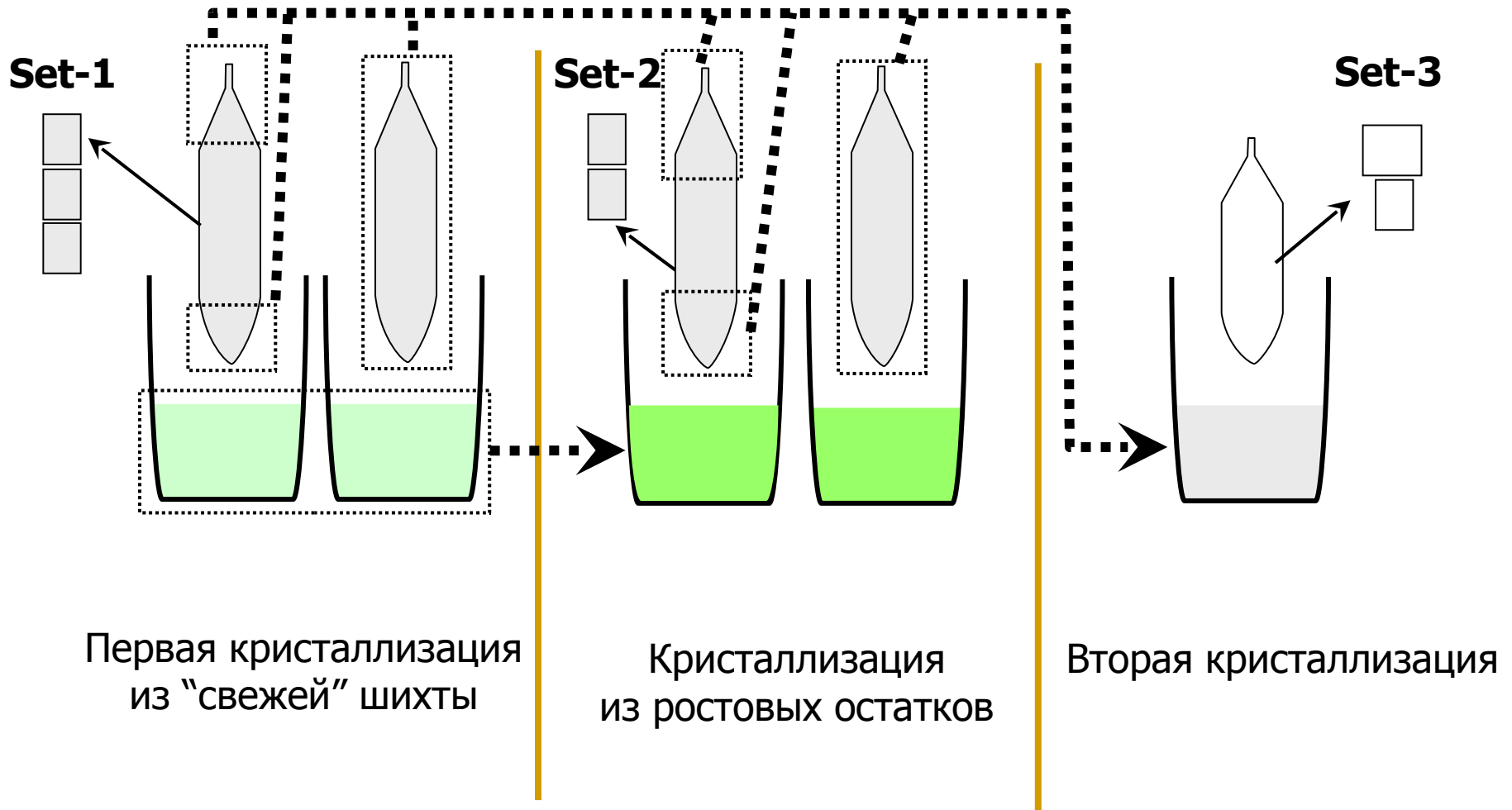
**Необходимо достичь  $\approx 10$  мкБк/кг**

---

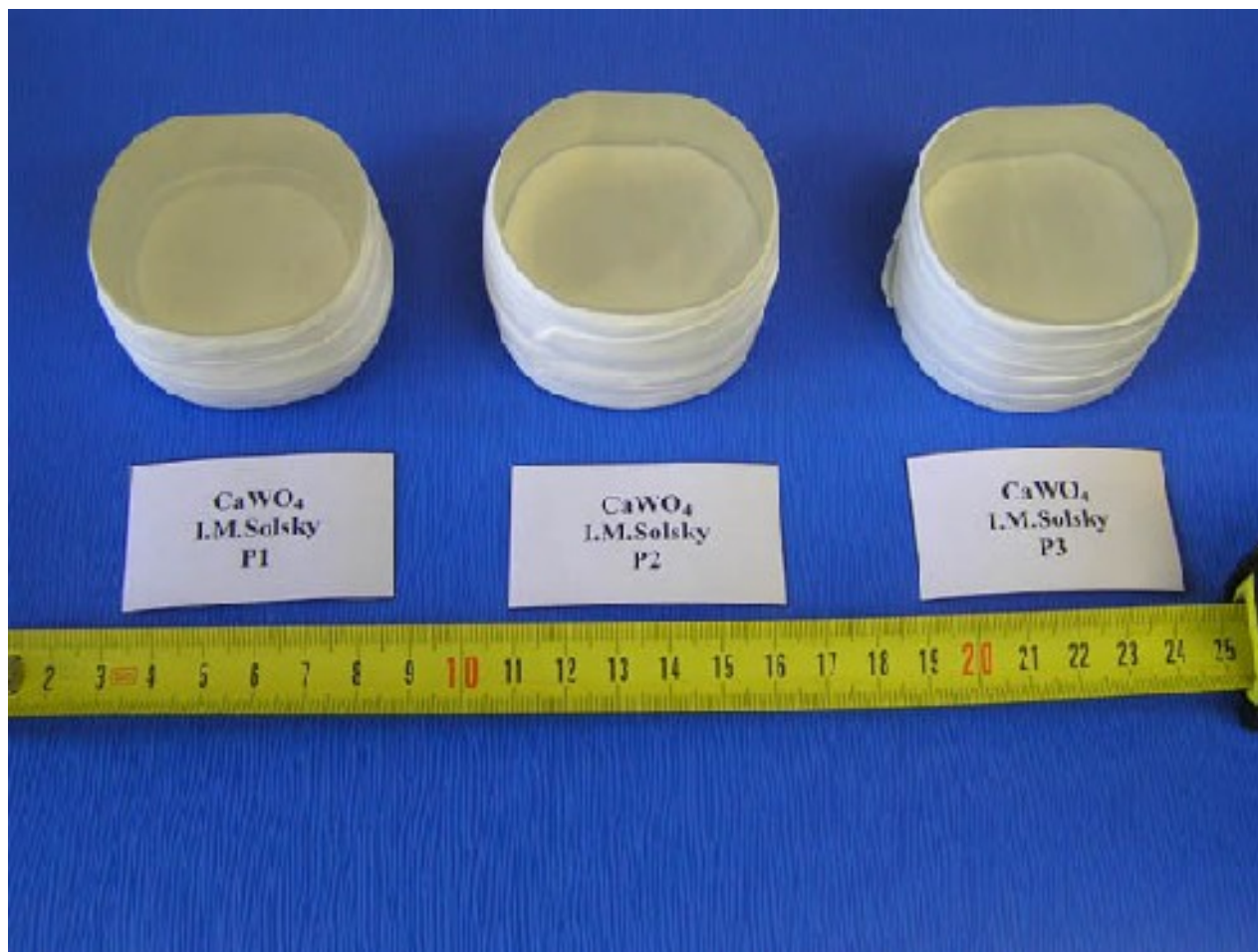
## **Цель работы:**

- изучить влияние перекристаллизации на величину и характер внутренней радиоактивной загрязненности кристаллов  $\text{CaWO}_4$
- разработать рекомендации по изготовлению кристаллов  $\text{CaWO}_4$  с уровнем активности  $< 10$  мкБк/кг

# Схема изготовления 3-х партий $\text{CaWO}_4$



# Сцинтилляционные кристаллы $\text{CaWO}_4$ (1 партия)

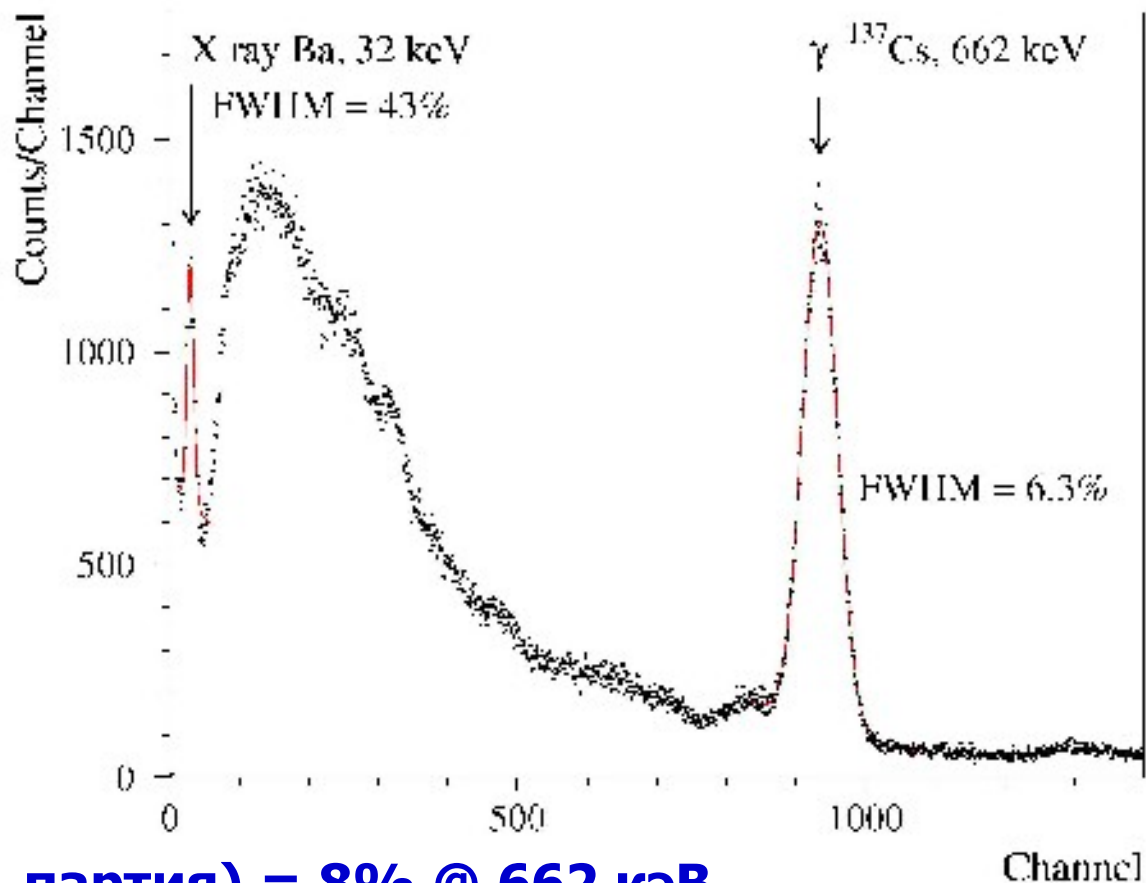


# Определение примесей в шихте и кристаллах $\text{CaWO}_4$

масс-спектрометр на индуктивно связанной плазме (ICP-MS)  
Национальная лаборатория Гран Сассо (Италия)

Элемент	Концентрация ( $10^{-6}$ г/г)	
	Шихта	Кристалл (1 партия)
Be	$\leq 20$	
K	$\leq 20$	$\leq 3$
Fe	$\leq 75$	3,5
Sr	3,3	2,5
Ba	1,6	0,25
Pb	0,1	0,3
Th	$\leq 0,001$	$\leq 0,0005$
U	0,006	0,008

# Энергетическое разрешение кристалла $\text{CaWO}_4$ $\varnothing 42 \times 40$ мм (3 партия)



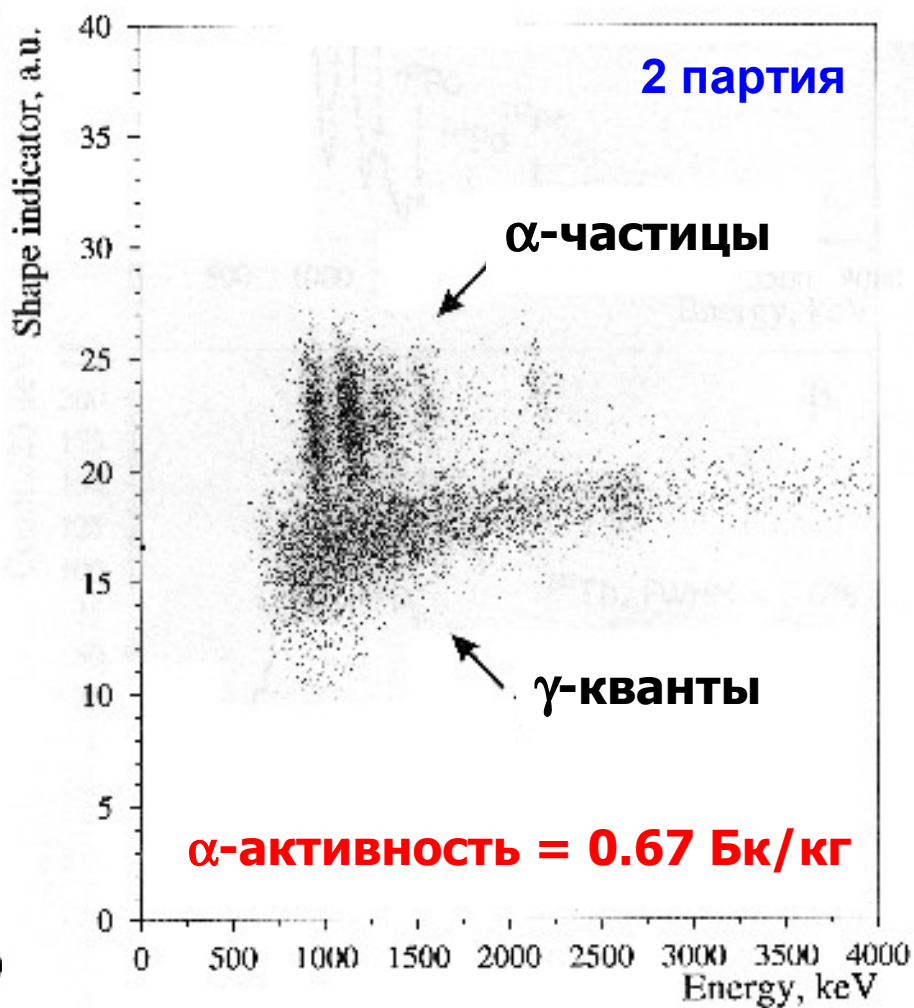
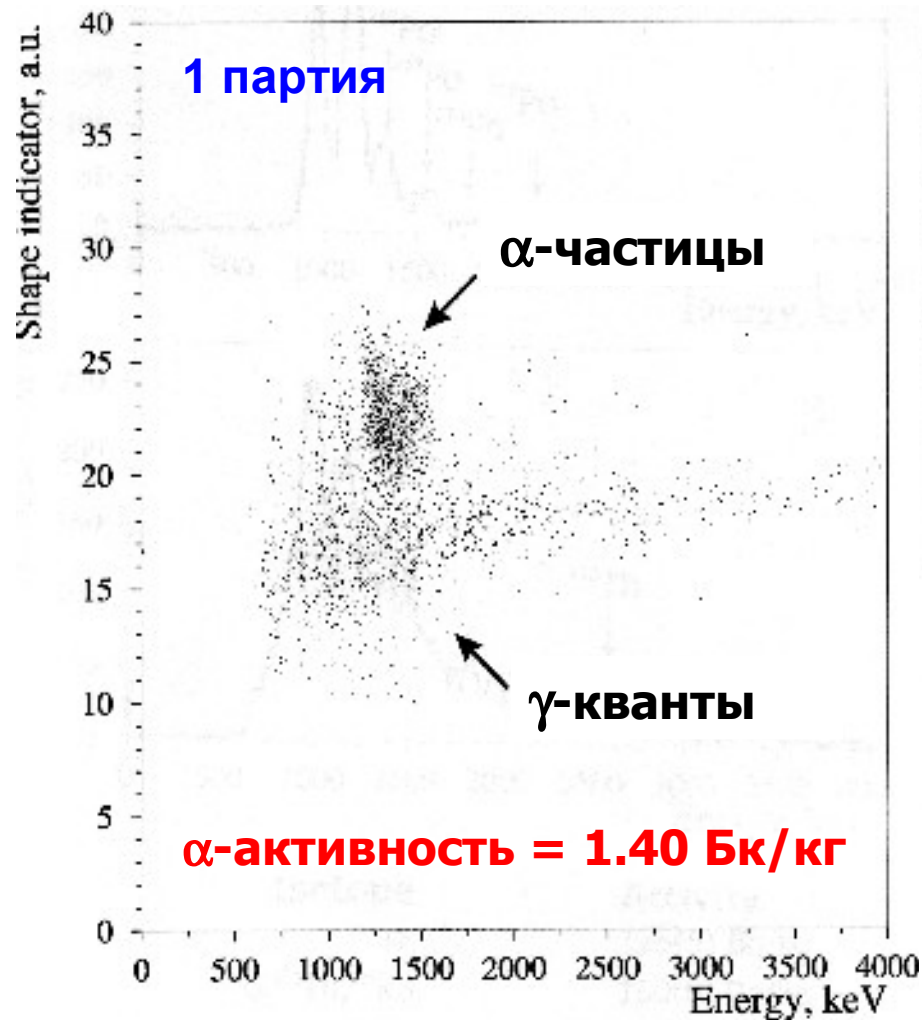
**FWHM (1 партия) = 8% @ 662 кэВ**

**FWHM (3 партия) = 6,3% @ 662 кэВ**

**FWHM (3 партия) = 3,6% @ 2615 кэВ**

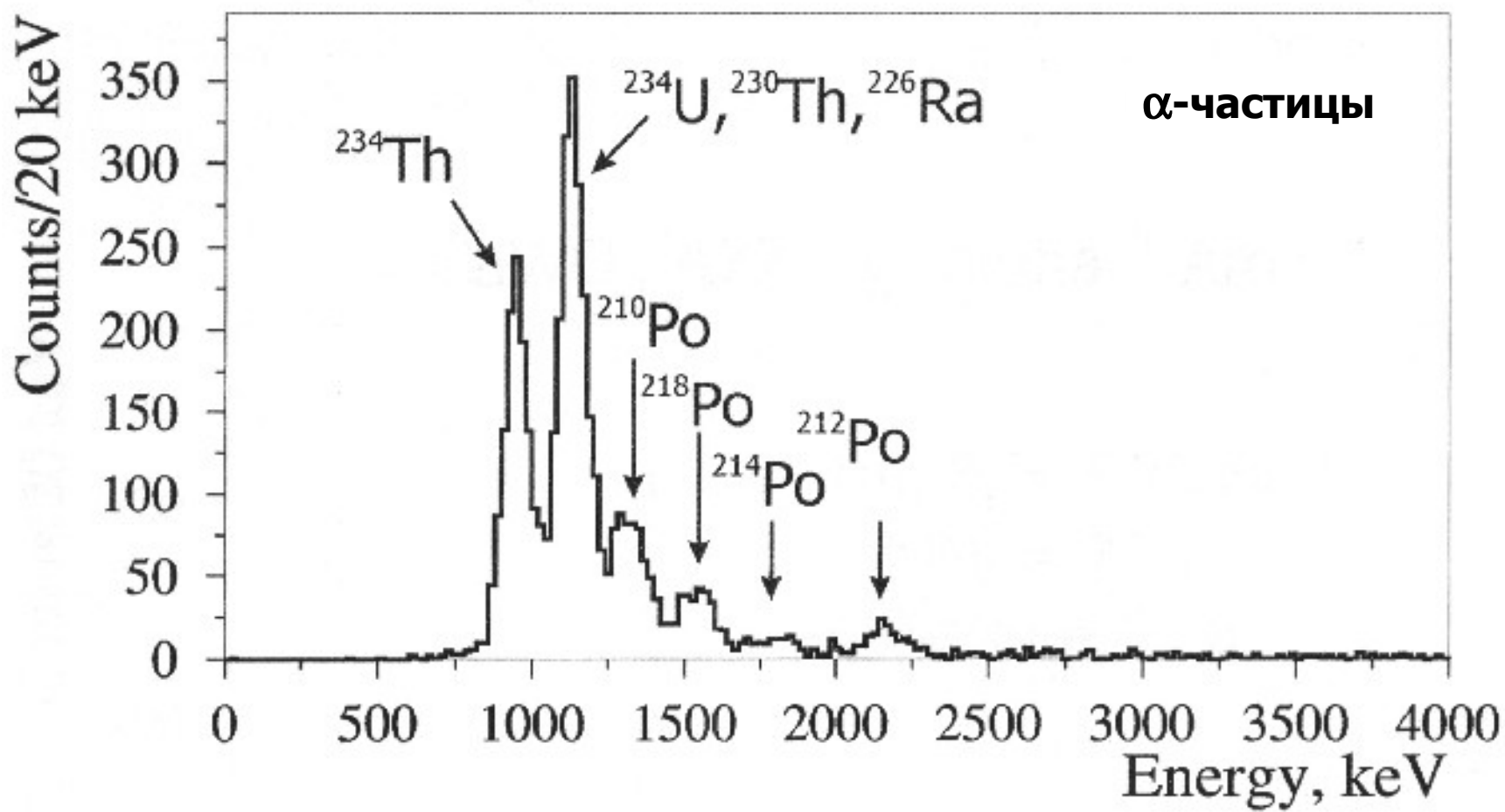


# Разделение $\alpha$ частиц от $\gamma(\beta)$ с помощью анализа формы сигналов



# Спектр $\alpha$ -частиц

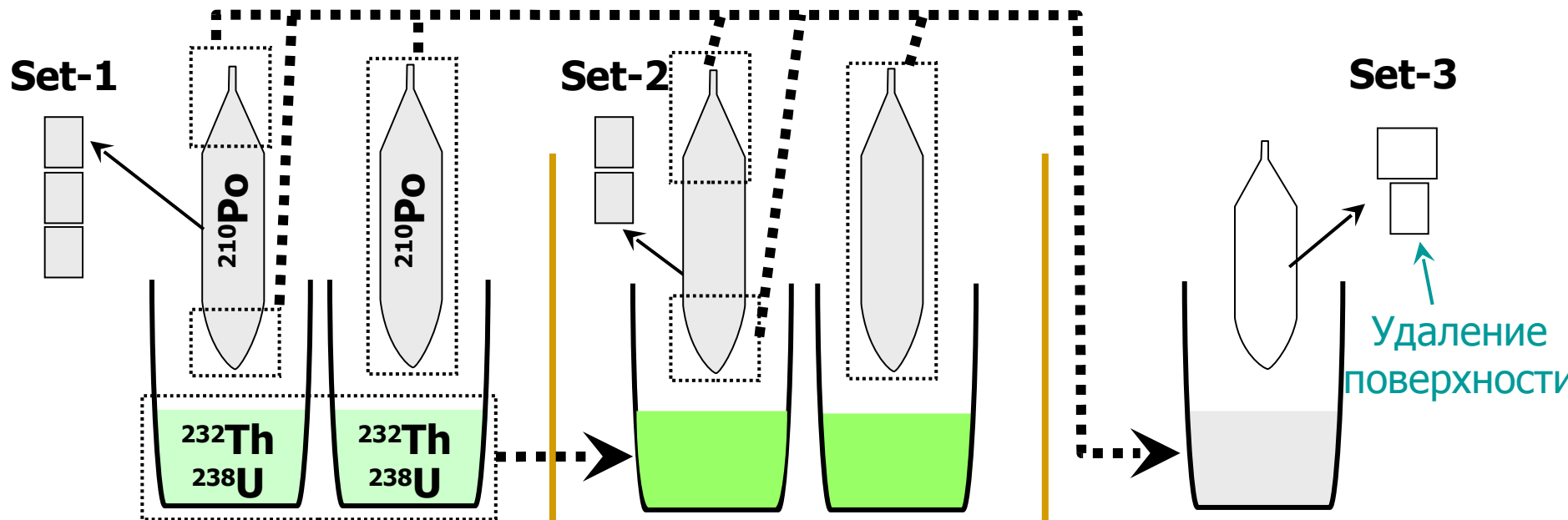
$\text{CaWO}_4$  (2 партия) 484 г, 17 часов



# Внутренняя загрязненность кристаллов $\text{CaWO}_4$ (Бк/кг)

Нуклид		1 партия			2 партия		3 партия	
		1	2	3	1	2	1	2
$^{232}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$	$\leq 0.009$	$\leq 0.014$	$\leq 0.022$	$\leq 0.048$	$\leq 0.025$	$\leq 0.03$	$\leq 0.04$
	$^{228}\text{Th}$	$\leq 0.006$	$\leq 0.014$	$\leq 0.011$	$\leq 0.01$	$\leq 0.012$	$\leq 0.008$	$\leq 0.013$
$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	0.038	0.054	0.067	0.330	0.268	0.051	0.048
	$^{234}\text{U}$ $^{230}\text{Th}$ $^{226}\text{Ra}$	0.029	0.026	0.039	0.321	0.260	0.037	0.040
	$^{210}\text{Pb}$	4.50	4.80	4.50	$\leq 0.19$	$\leq 0.36$	$\leq 0.59$	$\leq 0.69$
	$^{226}\text{Ra}$	$\leq 0.010$	$\leq 0.011$	$\leq 0.037$	0.072	0.107	$\leq 0.021$	$\leq 0.015$
	$^{210}\text{Po}$	1.25	1.32	1.24	0.03	0.06	0.15	0.18
	$\Sigma \alpha$ U/Th	1.30	1.40	1.34	0.67	0.58	0.24	0.26
$^{40}\text{K}$		$\leq 0.04$	$\leq 0.04$	$\leq 0.04$	$\leq 0.05$	$\leq 0.10$	$\leq 0.02$	$\leq 0.03$
$^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$		$\leq 0.05$	$\leq 0.05$	$\leq 0.05$	$\leq 0.05$	$\leq 0.12$	$\leq 0.03$	$\leq 0.04$

# Схема изготовления 3-х партий $\text{CaWO}_4$



Первая кристаллизация  
из "свежей" шихты

$^{232}\text{Th} \leq 0,020$  Бк/кг

$^{238}\text{U} \ 0,067$  Бк/кг

$^{210}\text{Po} \ 1,32$  Бк/кг

$\Sigma \alpha \ 1,40$  Бк/кг

Кристаллизация  
из ростовых остатков

$^{232}\text{Th} \leq 0,05$  Бк/кг

$^{238}\text{U} \ 0,33$  Бк/кг

$^{210}\text{Po} \ 0,03$  Бк/кг

$\Sigma \alpha \ 0,67$  Бк/кг

Вторая кристаллизация

$^{232}\text{Th} \leq 0,04$  Бк/кг

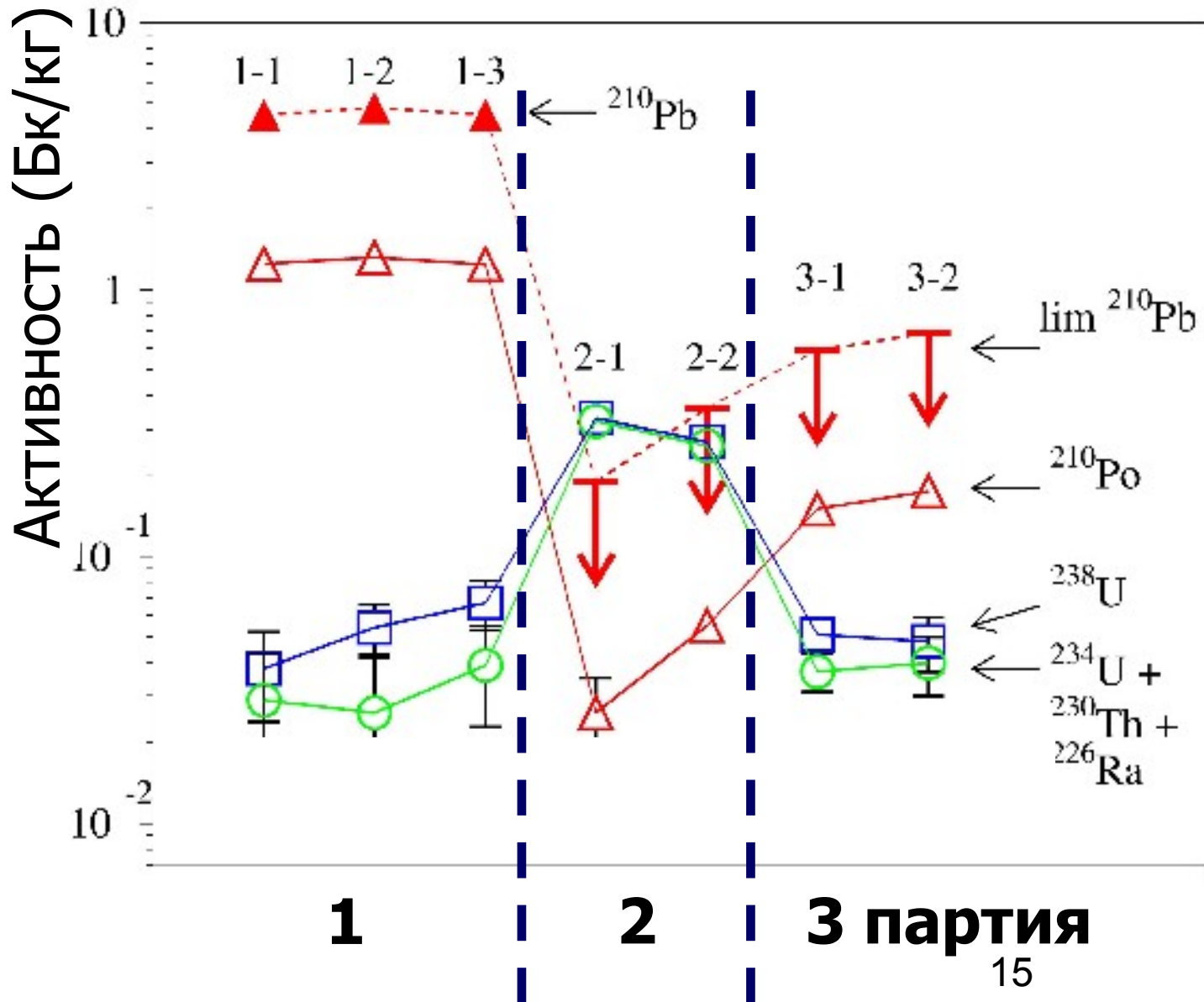
$^{238}\text{U} \ 0,05$  Бк/кг

$^{210}\text{Po} \ 0,16$  Бк/кг

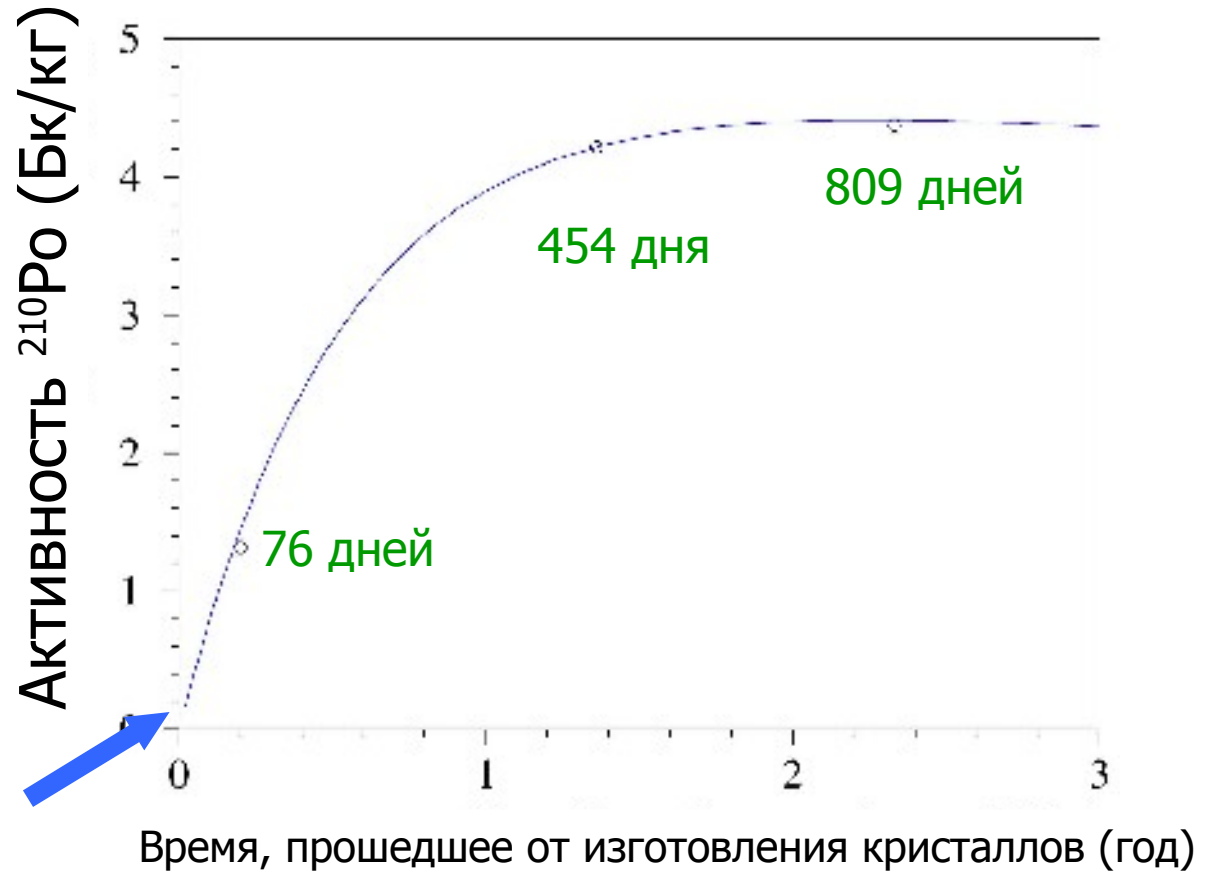
$\Sigma \alpha \ 0,25$  Бк/кг

**Загрязненность**  
 **$\text{He}^{14}$  на поверхности !**

# $\alpha$ Активность в кристаллах $\text{CaWO}_4$



# Зависимость активности $^{210}\text{Po}$ в кристалле 1-2 от времени, прошедшего от изготовления кристалла



$A_0(\text{Po}) \approx 0.05 \text{ Бк/кг}$

$T_{1/2}(\text{Po}) = 138.4 \text{ дня}$

$T_{1/2}(\text{Pb}) = 22.3 \text{ лет}$

$A(\text{Po}) = A(\text{Pb}) = 4.8 \pm 0.2 \text{ Бк/кг}$

# Низкофоновый планарный $\gamma$ -спектрометр Canberra, $V = 600 \text{ см}^3$ Подземная лаборатория Модан, Франция



# Внутренняя загрязненность кристалла $\text{CaWO}_4$ 1-1 142.2 г, 116 часов измерений

Нуклид		Активность (мБк/кг)
$^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Ra}$	< 6
	$^{228}\text{Th}$	< 7
$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	< 165
	$^{226}\text{Ra}$	$4 \pm 2$
	$^{210}\text{Pb}$	$4740 \pm 570$
$^{40}\text{K}$		< 36
$^{60}\text{Co}$		< 4

$= A(\text{Po}) = 4.8 \pm 0.2 \text{ Бк/кг}$

# Загрязненность шихты $\text{CaWO}_4$ (2 партия)

## $\gamma$ -активными нуклидами

Нуклид		E(кэВ)	Активность (мБк/кг)
$^{210}\text{Pb}$		46,5	< 47
$^{234}\text{Th}$		63	< 31
$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	352	$19 \pm 5$
$^{228}\text{Ra}$	$^{228}\text{Ac}$	338	< 19
$^{228}\text{Th}$	$^{212}\text{Pb}$	238	< 7
$^{40}\text{K}$		1460	< 123
$^{60}\text{Co}$		1173	< 7
		1332	

# Загрязненность шихты $\text{CaWO}_4$ (2 партия)

## $\alpha$ -активными нуклидами

Университет Дурхем,  
Лаборатория люминесцентной  
дозиметрии



Нуклид	Активность (Бк/кг)
$^{210}\text{Po}$	<b><math>3,6 \pm 0,4</math></b>

$\alpha$ -спектрометр Canberra  
модель 7401VR,  $S = 1200 \text{ мм}^2$   
Лаборатория Гран Сассо

Нуклид	Активность (Бк/кг)
$^{210}\text{Po}$	<b><math>5 \pm 2</math></b>

# Загрязненность шихты $\text{CaWO}_4$ (2 партия) $\alpha$ -активными нуклидами, измеренная через 2 года

Подземная лаборатория Гран Сассо  
 $\alpha$ -спектрометр Canberra,  $S = 400 \text{ мм}^2$   
3,7 г шихты, 113 часов измерений

Нуклид	Активность (Бк/кг)
$^{210}\text{Po}$	<b>&lt; 1,8</b>

Осаждение Po на серебрянную  
пластинку,  
166 часов измерений

Нуклид	Активность (Бк/кг)
$^{210}\text{Po}$	<b>&lt; 0,2</b>



Более эффективная очистка шихты  $\text{CaWO}_4$  (партия 2)  
относительно Pb

## Выводы

- Перекристаллизация приводит к уменьшению (**на порядок**) концентрации **U, Po** в кристаллах  $\text{CaWO}_4$
- Суммарная  $\alpha$ -активность уменьшается с каждой последующей перекристаллизацией в  **$\sim 2$  раза**
- Радиоактивная загрязненность равномерно распределена по объему кристаллов, а не сосредоточена на поверхности. Зависимости активности радионуклидов по длине кристаллической були не наблюдается
- Коэффициент сегрегации для U  $\approx 0.3$
- Перекристаллизация улучшает энергетическое разрешение  $\text{CaWO}_4$

# Программа дальнейшего уменьшения концентрации радионуклидов в кристаллах $\text{CaWO}_4$

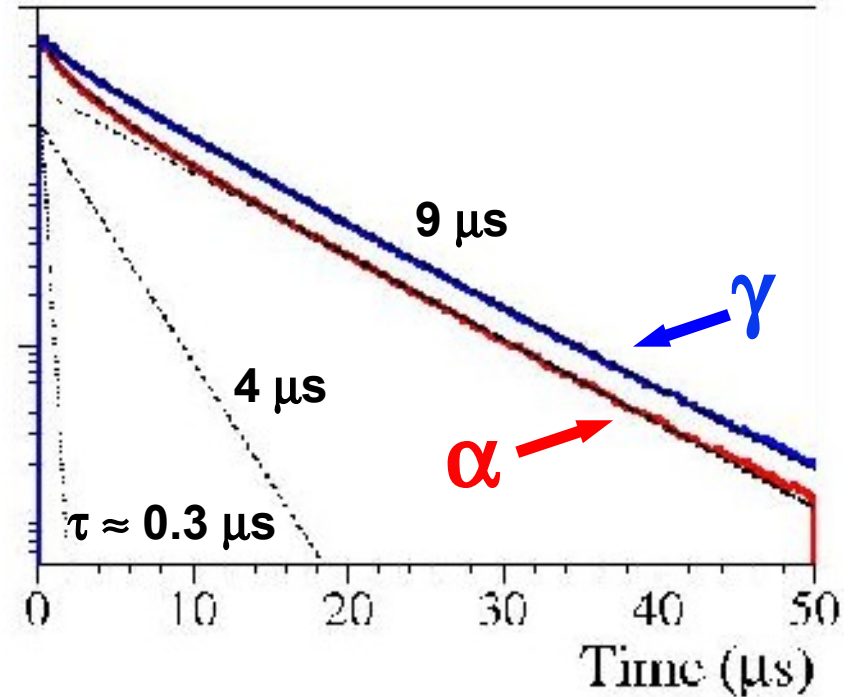
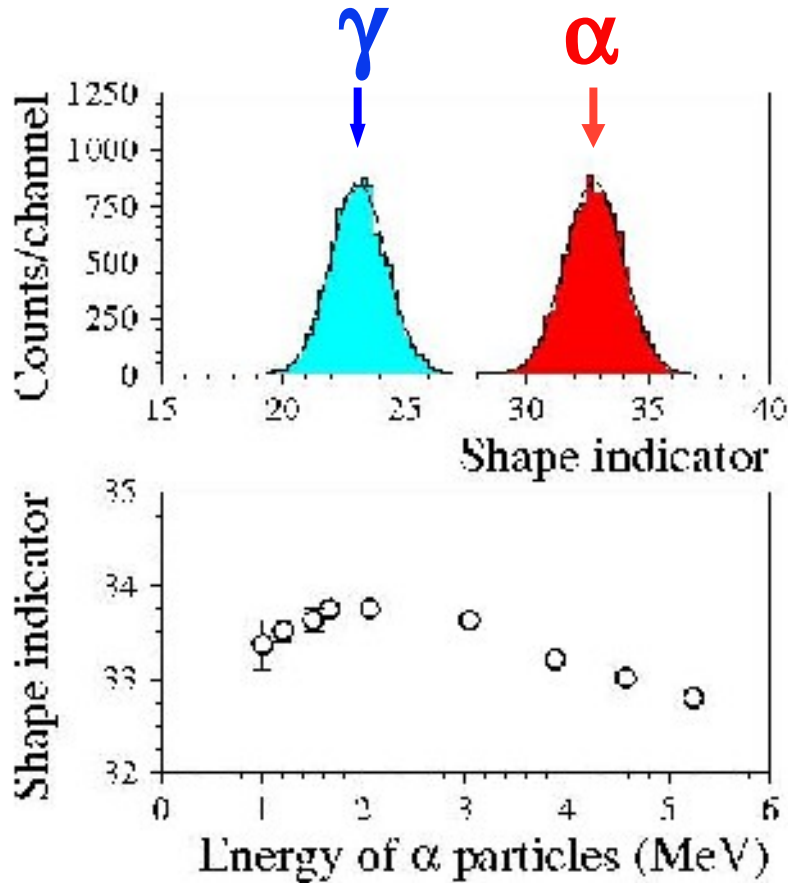
- “Глубокая” очистка компонент шихты
- Проверка компонент шихты с помощью низкофоновых  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -спектрометров
- 2-х, 3-х разовая перекристаллизация с проверкой концентрации радионуклидов после каждого роста
- Использование реагентов, посуды, воды высокой степени чистоты, и проведение всех химических процедур в “чистой комнате” в атмосфере азота



# Висновки

- Радіоактивна забрудненість шихти для росту  $\text{CaWO}_4$  була перевірена методами низькофонової  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -спектрометрії
- Показано, що перекристалізація призводить до конкуруючої сегрегації нуклідів U/Th рядів
- Сумарна  $\alpha$ -активність зменшується на порядок з кожною наступною перекристалізацією
- Радіоактивна забрудненість рівномірно розподілена по об'єму кристалів, а не зосереджена на поверхні, або на кінці чи початку ростової булі
- Радіоактивна забрудненість не привноситься до кристалу з хімічного та ростового обладнання
- Компоненти шихти, що містять Ca, необхідно ретельно перевіряти перед ростом та очищувати
- Показано, що перекристалізація покращує енергетичну роздільну здатність та світловихід сцинтиляційних кристалів

# Дискримінація частинок різного типу з кристалами $\text{CaWO}_4$



# Сцинтиляційні кристали $\text{CaWO}_4$ (2 партія)

