

# Sviluppi di rivelatori $\text{CdWO}_4$ arricchiti in $^{116}\text{Cd}$ e $^{106}\text{Cd}$ per investigare il decadimento doppio beta



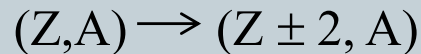
Barabash A.S.<sup>1</sup>, Belli P.<sup>2</sup>, Bernabei R.<sup>2;3</sup>, Boiko R.S.<sup>4</sup>, Brudanin V.B.<sup>5</sup>, Cappella F.<sup>6;7</sup>, **Caracciolo V.**<sup>8</sup>, Castellano S.<sup>8</sup>, Cerulli R.<sup>8</sup>, Chernyak D.M.<sup>4</sup>, Danevich F.A.<sup>4</sup>, d'Angelo S.<sup>2;3</sup>, Degoda V.Ya.<sup>9</sup>, Di Vacri M.L.<sup>8</sup>, Dossovitskiy A.E.<sup>10</sup>, Galashov E.N.<sup>11</sup>, Incicchitti A.<sup>6;7</sup>, Kobychhev V.V.<sup>4</sup>, Konovalov S.I.<sup>1</sup>, Kovtun G.P.<sup>12</sup>, Laubenstein M.<sup>8</sup>, Mikhlin A.L.<sup>10</sup>, Mokina V.M.<sup>4</sup> Nikolaiko A.S.<sup>4</sup>, Nisi S.<sup>8</sup>, Poda D.V.<sup>4</sup>, Podviyanuk R.B.<sup>4</sup>, Polischuk O.G.<sup>4;6</sup>, Shcherban A.R.<sup>12</sup>, Shlegel V.N.<sup>11</sup>, Solopikhin D.A.<sup>12</sup>, Tretyak V.I.<sup>4</sup>, Umatov V.I.<sup>1</sup>, Vasiliev Y.V.<sup>11</sup>, V.D. Virich V.D.<sup>12</sup>

- (1) Institute of Theoretical and Experimental Physics, Moscow, Russia
- (2) INFN, Sezione di Roma Tor Vergata
- (3) Dipartimento di Fisica, Università di Roma Tor Vergata
- (4) Institute for Nuclear Research, Kyiv, Ukraine
- (5) Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, Russia
- (6) INFN, Sezione di Roma La Sapienza
- (7) Dipartimento di Fisica, Università di Roma La Sapienza
- (8) INFN, Laboratori Nazionali del Gran Sasso, L'Aquila
- (9) Kyiv National Taras Shevchenko University, Ukraine
- (10) Joint Stock Company NeoChem, Moscow, Russia
- (11) Nikolaev Institute of Inorganic Chemistry, Novosibirsk, Russia
- (12) National Science Center Kharkiv Institute of Physics and Technology, Kharkiv, Ukraine

# IL DECADIMENTO DOPPIO BETA

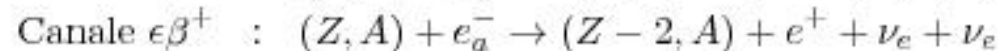
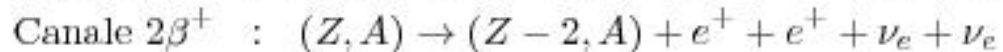
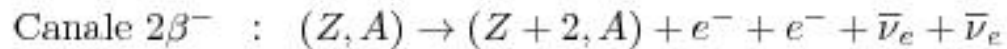


Il decadimento doppio beta è una transizione spontanea e rara di un nucleo, in cui il numero atomico  $Z$  cambia di due unità e la massa atomica  $A$  rimane invariata:

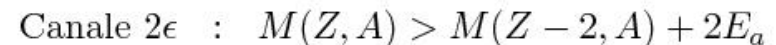
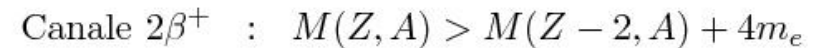
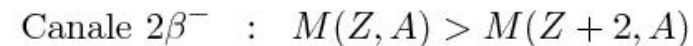


Il decadimento doppio beta con emissione di neutrini è un decadimento raro previsto dal MS delle particelle elementari

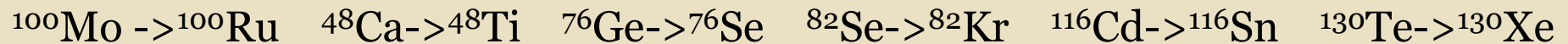
Canali possibili:



Condizioni energetiche



Risultati positivi sono stati ottenuti per modi di decadimento  $2\nu$  in una decina di isotopi su 69 isotopi candidati al decadimento doppio beta, esempi:



Attuali sensibilità per i canali:

$$2\nu 2\beta^- \quad T_{1/2} \sim 10^{18} - 10^{24} \text{ anni}$$

$$2\nu \beta^+ \beta^+ \quad T_{1/2} \sim 10^{16} - 10^{21} \text{ anni}$$

Interesse per la validazione di modelli nucleari

# IL DECADIMENTO DOPPIO BETA $0\nu$



Il decadimento doppio beta senza emissioni di neutrini non è previsto dal MS:  
apre scenari di nuova fisica

Attuali sensibilità per i diversi canali:

$$0\nu 2\beta^- \quad T_{1/2} \sim 10^{23}-10^{25} \text{ anni}$$

$$0\nu \beta^+ \beta^+ \quad T_{1/2} \sim 10^{16}-10^{21} \text{ anni}$$

Interesse per la fisica nucleare e subnucleare:

- Violazione del numero leptonico
- Natura del neutrino (Dirac, Majorana)
- Scala assoluta della massa del neutrino
- Gerarchia di massa del neutrino
- Fisica oltre il Modello Standard

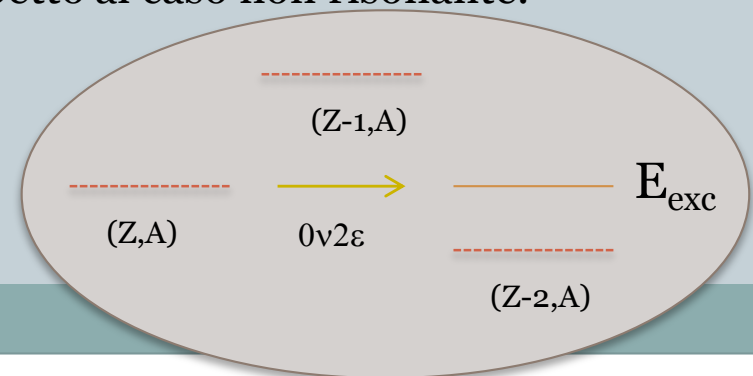


Per i decadimenti in canali positivi, c'è la possibilità del decadimento doppio beta  $0\nu 2\epsilon$  risonante.

L'energia rilasciata è pari all'energia del livello energetico eccitato del nucleo figlio:

$$Q = Q_{2\beta} - E_{b1} - E_{b2} = E_{\text{exc}} \quad (Q_{2\beta} = \Delta M_a)$$

La possibilità di tale effetto risonante è stato discusso in letteratura. Esso può aumentare di alcuni ordini di grandezza il tasso del decadimento  $0\nu 2\epsilon$  risonante rispetto al caso non risonante.



# Motivazioni per la scelta di scintillatori arricchiti in $^{116}\text{Cd}$ e $^{106}\text{Cd}$



- $Q_{\beta\beta}$  molto alto  
( $Q_{\beta\beta} = 2770 \text{ keV}$  per  $^{106}\text{Cd}$ ;  $2813 \text{ keV}$  per  $^{116}\text{Cd}$ )
- *Abbondanza isotopica naturale relativamente alta*  
( $\delta = 1.25\%$  per  $^{106}\text{Cd}$  and  $7.49\%$  per  $^{116}\text{Cd}$ )
- Stime teoriche promettenti
- Ottime caratteristiche degli scintillatori di  $\text{CdWO}_4$  [1,2]
  - ✓ Tecnica della sorgente attiva
  - ✓ Bassa radioattività intrinseca
  - ✓ Ottime proprietà di scintillazione
  - ✓ Possibilità di implementare la PSD
  - ✓ Elevata stabilità operativa
  - ✓ Costi relativamente contenuti
- Disponibilità di materiale grezzo già arricchito nell'isotopo di interesse.

[1] ZPA 355 (1996) 433.  
[2] PRC 68 (2003) 035501.

## Caso del $^{106}\text{Cd}$

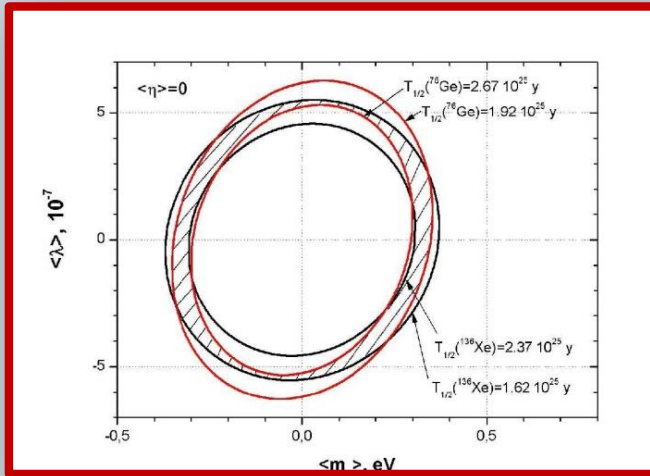
Esistono solo 6 nuclei, uno dei quali è il  $^{106}\text{Cd}$ , che manifestano tutti i 3 modi di decadimento  $2\beta^+$  (ed anche effetto risonante).

Transizione	$Q_{\beta\beta}$ (keV)	Abbondanza naturale (%)
$^{78}\text{Kr} \rightarrow ^{78}\text{Se}$	2866.0 (7)	0.35(0.01)
$^{96}\text{Ru} \rightarrow ^{96}\text{Mo}$	2719(8)	5.54(0.14)
$^{106}\text{Cd} \rightarrow ^{106}\text{Pd}$	2771(8)	1.25(0.06)
$^{124}\text{Xe} \rightarrow ^{124}\text{Te}$	2865.6(2.2)	0.09(0.01)
$^{130}\text{Ba} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$	2611(7)	0.106(0.001)
$^{136}\text{Ce} \rightarrow ^{136}\text{Ba}$	2400(50)	0.185(0.002)

# Motivazioni per la scelta di scintillatori arricchiti in $^{116}\text{Cd}$ e $^{106}\text{Cd}$



$2\beta^-$



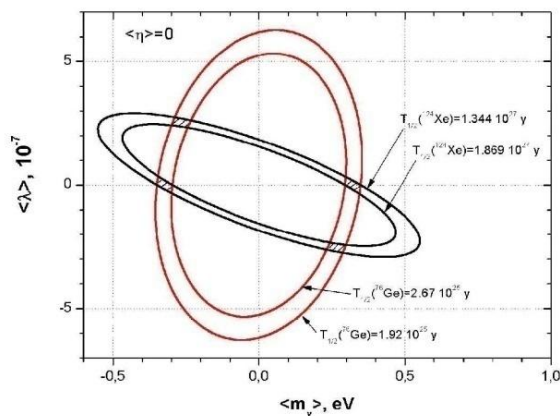
Regione dei parametri permessi per un decadimento  $0\nu 2\beta^-$  da  $^{76}\text{Ge}$  e da  $^{136}\text{Xe}$

Caso del  $^{106}\text{Cd}$

Esistono solo 6 nuclei, uno dei quali è il  $^{106}\text{Cd}$ , che manifestano tutti i 3 modi di decadimento  $2\beta^+$  (ed anche effetto risonante).

Transizione	$Q_{\beta\beta}$ (keV)	Abbondanza naturale (%)
$^{78}\text{Kr} \rightarrow ^{78}\text{Se}$	2866.0 (7)	0.35(0.01)
$^{96}\text{Ru} \rightarrow ^{96}\text{Mo}$	2719(8)	5.54(0.14)
$^{106}\text{Cd} \rightarrow ^{106}\text{Pd}$	2771(8)	1.25(0.06)
$^{124}\text{Xe} \rightarrow ^{124}\text{Te}$	2865.6(2.2)	0.09(0.01)
$^{130}\text{Ba} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$	2611(7)	0.106(0.001)
$^{136}\text{Ce} \rightarrow ^{136}\text{Ba}$	2400(50)	0.185(0.002)

M.Hirsch et al., Z. Phys.A 347 (1994) 151; M.Hirsch Nucl.Phys. A577 (1994)



$\beta^+ \text{EC}$

Regione dei parametri permessi per un decadimento  $0\nu 2\beta^+$  da  $^{76}\text{Ge}$  e per un decadimento  $0\nu \epsilon \beta^+$  da  $^{124}\text{Xe}$

$$\Gamma_{0\nu, \alpha}^{(0^+ \rightarrow 0^+)} = \left[ C_{mm}^\alpha \left( \frac{\langle m_\nu \rangle}{m_e} \right)^2 + C_{\lambda\lambda}^\alpha \langle \lambda \rangle^2 + C_{\eta\eta}^\alpha \langle \eta \rangle^2 + C_{m\lambda}^\alpha \frac{\langle m_\nu \rangle}{m_e} \langle \lambda \rangle + C_{m\eta}^\alpha \frac{\langle m_\nu \rangle}{m_e} \langle \eta \rangle + C_{\eta\lambda}^\alpha \langle \lambda \rangle \langle \eta \rangle \right]$$

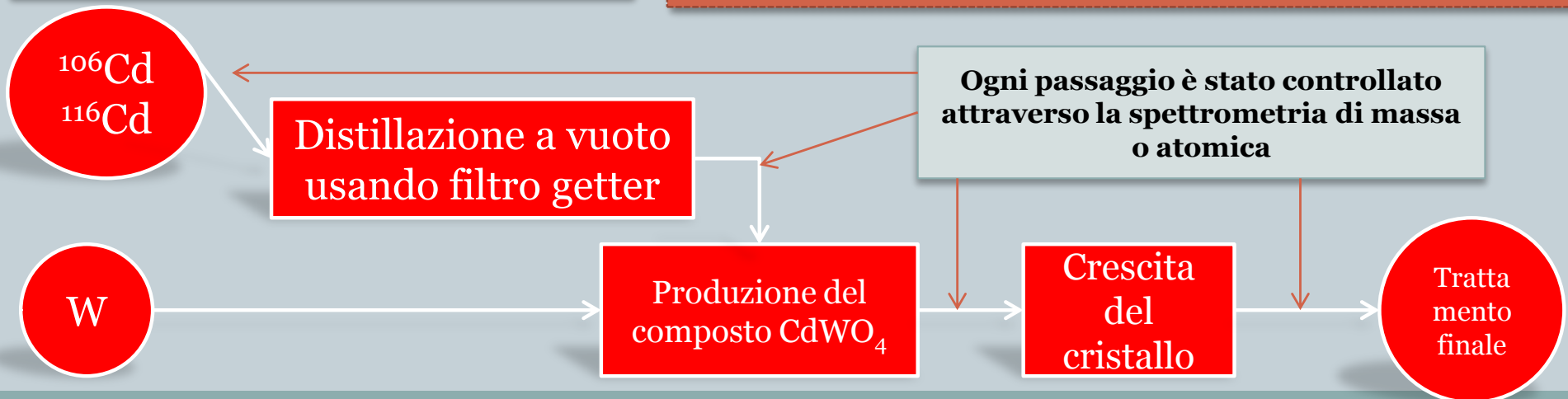
# Processo di sviluppo dei cristalli scintillatori $^{106,116}\text{CdWO}_4$

## Requisiti per lo sviluppo di cristalli scintillatori:

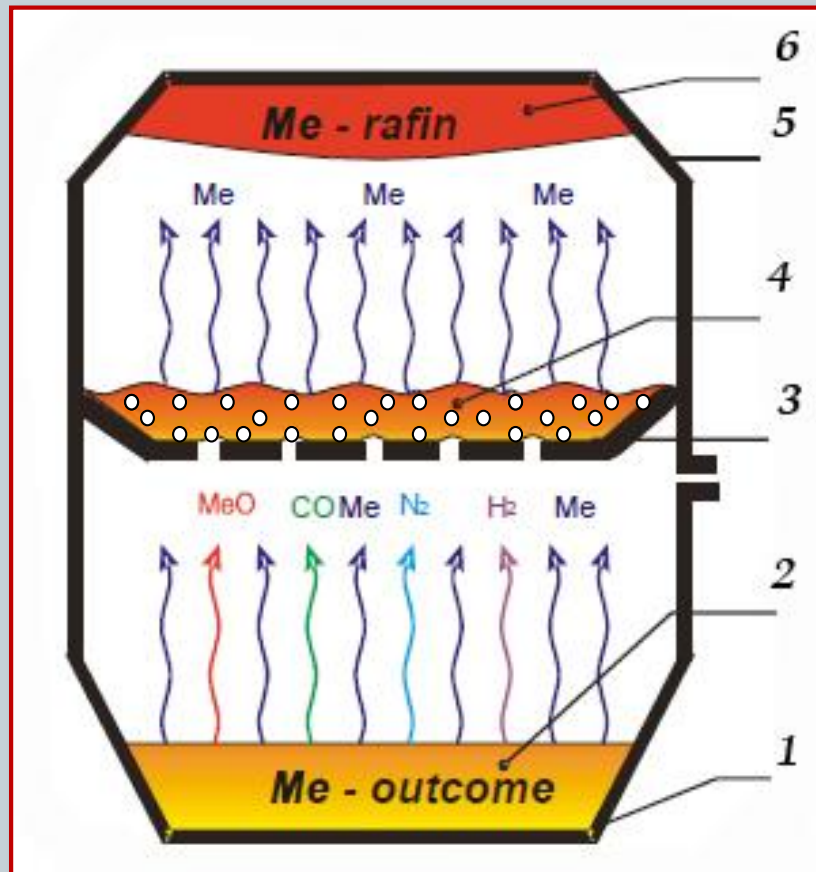
- **Minimizzare le perdite del materiale arricchito nell'isotopo di interesse**
- **Massimizzare la produzione di luce dello scintillatore**
- **Minimizzare la presenza di impurità**

## Procedura seguita:

- Purificazione di un campione di cadmio metallico ottenuta mediante la tecnica di distillazione a vuoto con filtro getter.
- Purificazione chimica e sintesi del composto di tungstato di cadmio.
- Crescita del cristallo.
- Tagli degli elementi scintillatori e loro trattamento ottico



# La purificazione del materiale arricchito $^{106,116}\text{Cd}$



1. crogiolo; 2. materiale iniziale;
3. piastra del filtro; 4. getter;
5. condensatore; 6. materiale purificato

## Tecnica della distillazione a vuoto con filtro getter

Il vapore metallico passata attraverso il filtro getter riscaldato alla temperatura di vaporizzazione del metallo [1].

Materiali impiegati per il filtro getter [1]:

- frammenti di **lega Zr-Fe**;
- frammenti di **Zr ultra puro**;
- frammenti di **grafite ultra pura**.

La tecnica impiegate ha permesso di purificare il campione di cadmio metallico con perdite minime del Cd arricchito <1/% e con un impoverimento isotopico delle impurità del Cd ad un livello di (1 – 0.1) ppm [2,3]:

Impurità	ppm
<b>Ni, Cu</b>	<b>&lt; 0.2</b>
<b>Fe, Mg, Mn, Cr, V, Co</b>	<b>&lt; 1</b>
<b>Th, U, Ra, K, Rb, Bi, Pb, Lu, Sm</b>	<b>&lt; 0.1</b>

[1] Kovtun, G.P., et al., 2011. Functional Materials 18, 121–127.

[2] P.Belli, et al., Nucl. Instr. & Meth. A615 (2010), 301.

[3] A.S. Barabash, et al., J. of Instr. 06 (2011) Po8011.

# Sintesi del composto di $^{106,116}\text{CdWO}_4$

L'elevato costo del cadmio arricchito, ha limitato la scelta del metodo per la purificazione aggiuntiva.

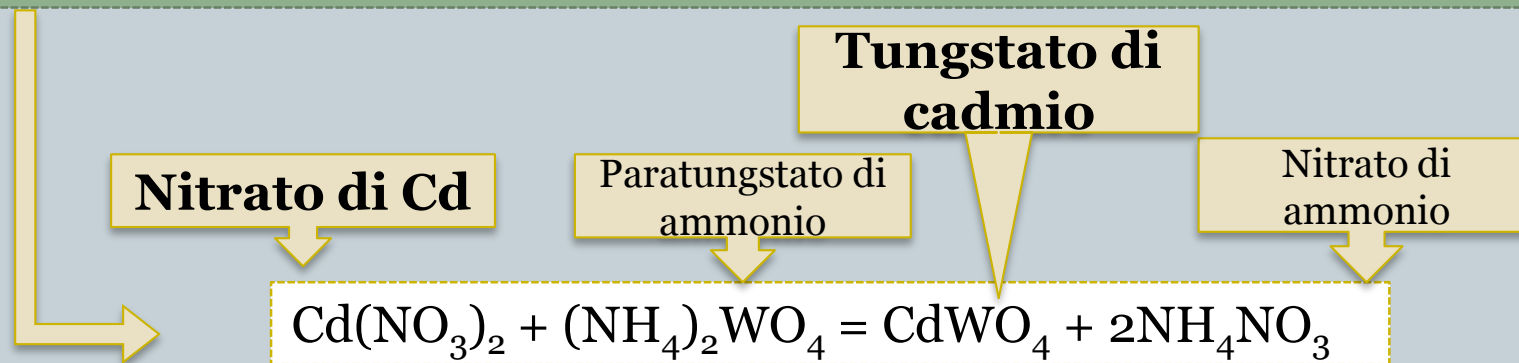
Il metodo della *ricristallizzazione*, tipicamente usato per la purificazione di sali di cadmio, non è stato impiegato a causa della bassa efficienza, circa l'85%.

Tutte le operazioni sono state eseguite usando *oggetti di quarzo o polipropene* ed impiegando composti a *basso livello* di contaminazioni *radioattive*. Ad esempio, i reagenti usati avevano concentrazioni di metalli inferiori a **0.01 ppm**.

I materiali impiegati per la crescita dei cristalli sono stati prodotti dalla compagnia NeoChem (Mosca, Russia).

## Tecnica impiegata:

Il cadmio è stato disciolto in acido nitrico ed è stato purificato tramite la coprecipitazione in un collettore.

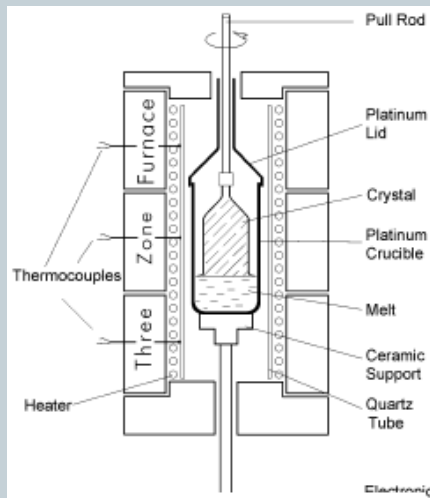




# Crescita dei cristalli scintillatori

## Tecnica Czochralski a basso gradiente termico (LTG Cz)

Sagomatura e trattamento ottico dei cristalli

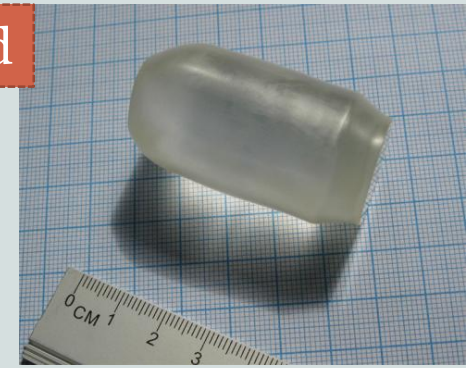


231 g,  $\varnothing 27 \times 60$  mm



$^{106}\text{Cd}$

216 g,  $\varnothing 27 \times 50$  mm



87% del materiale iniziale (solo Cz  $\approx$  30%)

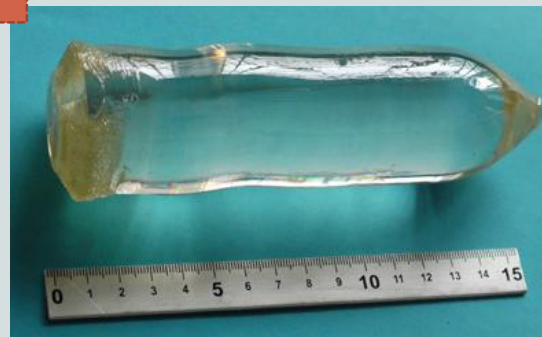
Nikolaev Institute of Inorganic Chemistry, Novosibirsk, Russia

P.Belli, et al., Nucl. Instr. & Meth. A615 (2010), 301.

A.S. Barabash, et al., J. of Instr. 06 (2011) P08011.

$^{116}\text{Cd}$

1868 g,  $\varnothing 45 \times 147$  mm



326 g

589 g

586 g

# Caratteristiche finali dei cristalli scintillatori $^{106,116}\text{CdWO}_4$



	$^{106}\text{CdWO}_4$ [1]	$^{116}\text{CdWO}_4$ [2]
<b>Lunghezza di attenuazione (<math>\lambda = 480</math> nm)</b>	<b>(60 <math>\pm</math> 7) cm *</b>	<b>(31 <math>\pm</math> 5) cm</b>
<b>FWHM</b>		
<b>662 keV del <math>^{137}\text{Cs}</math></b>	<b>10.0%</b>	<b>10.1%</b>
<b>2615 keV del <math>^{208}\text{Tl}</math></b>	<b>8.4%</b>	<b>6.7%</b>
<b>Arricchimento (Abbondanza naturale)</b>	<b>66.4% del <math>^{106}\text{Cd}</math> (1.25%)</b>	<b>82.2% del <math>^{116}\text{Cd}</math> (7.49%)</b>

\* Migliore risultato in letteratura  $\text{CdWO}_4$

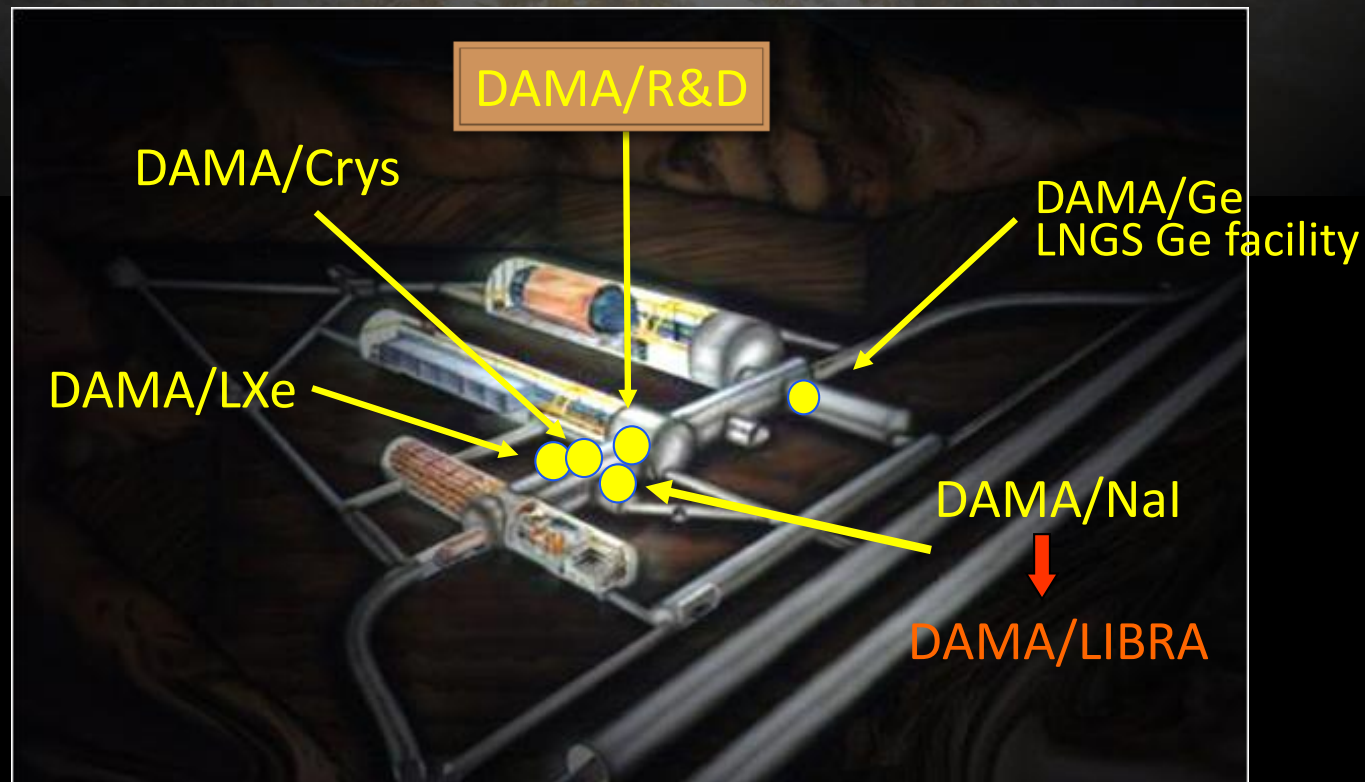
[1] P. Belli et al., Nucl. Instr. Meth. A 615 (2010) 301.

[2] A.S. Barabash et al., J. Instrum. 6 (2011) P08011.

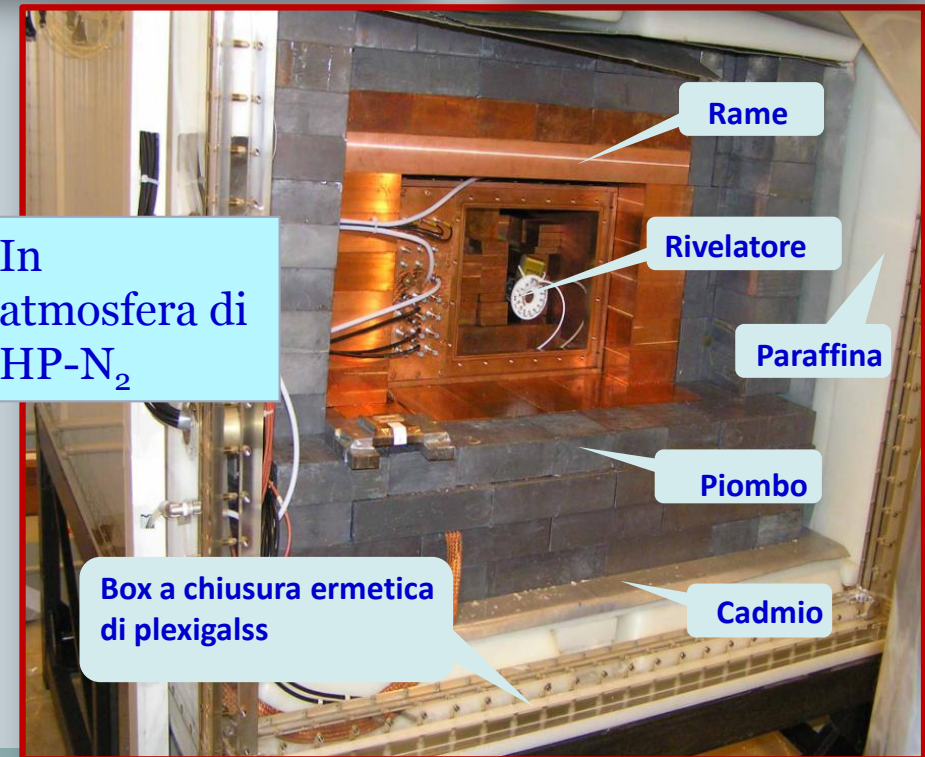
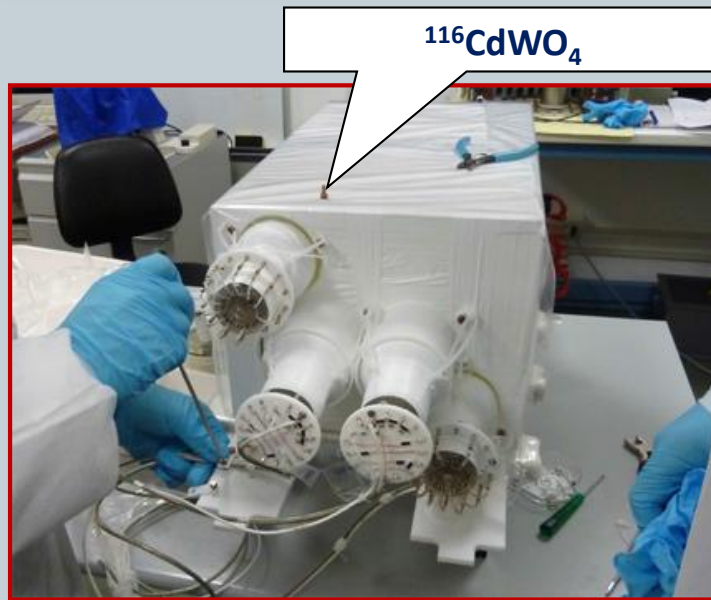
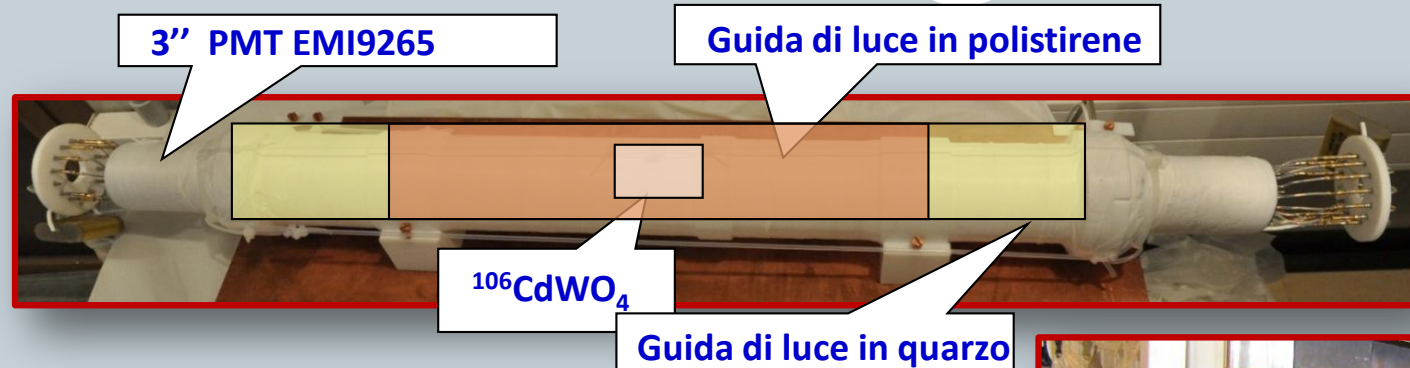
# IL SITO SPERIMENTALE



# DAMA: un osservatorio per processi rari @LNGS



# Gli apparati sperimentali



# Contaminazioni radioattive dei cristalli scintillatori



Sorgenti	Attività mBq/kg		
	$^{116}\text{CdWO}_4$ [1]	$^{116}\text{CdWO}_4$ [2]	$^{106}\text{CdWO}_4$ [3]
	Scintillatore	Scintillatore	Scintillatore
$^{232}\text{Th}$	$\leq 0.08$	<b>0.053(9)</b>	$\leq 0.07$
$^{228}\text{Ra}$	$\leq 0.2$	$\leq 0.004$	–
$^{228}\text{Th}$	<b>0.041(6)–0.072(8)</b>	<b>0.039(2)</b>	<b>0.042(4)</b>
$^{227}\text{Ac}$	$\leq 0.002$	<b>0.0014(9)</b>	–
$^{238+234}\text{U}$	$\leq (0.4–0.6)$	$\leq 0.6$	$\leq 0.6$
$^{226}\text{Ra}$	$\leq 0.005$	$\leq 0.004$	<b>0.012(3)</b>
$\alpha$	<b>2.1(2)–2.9(3)</b>	<b>1.4(1)</b>	<b>2.1(2)</b>
$^{40}\text{K}$	$\leq 0.9$	<b>0.3(1)</b>	$\leq 1.4$
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	<b>0.12(4)</b>	–	$\leq 0.06$
$^{113}\text{Cd}$	<b>100(10)</b>	<b>91(5)</b>	<b>182</b>
$^{113\text{m}}\text{Cd}$	<b>460(20)</b>	<b>1.1(1)</b>	<b>116(4) · 10<sup>3</sup></b>
$^{137}\text{Cs}$	$\leq 0.3$	<b>0.43(6)</b>	–

[1] A.S. Barabash et al., JINST 6 (2011) Po8011.

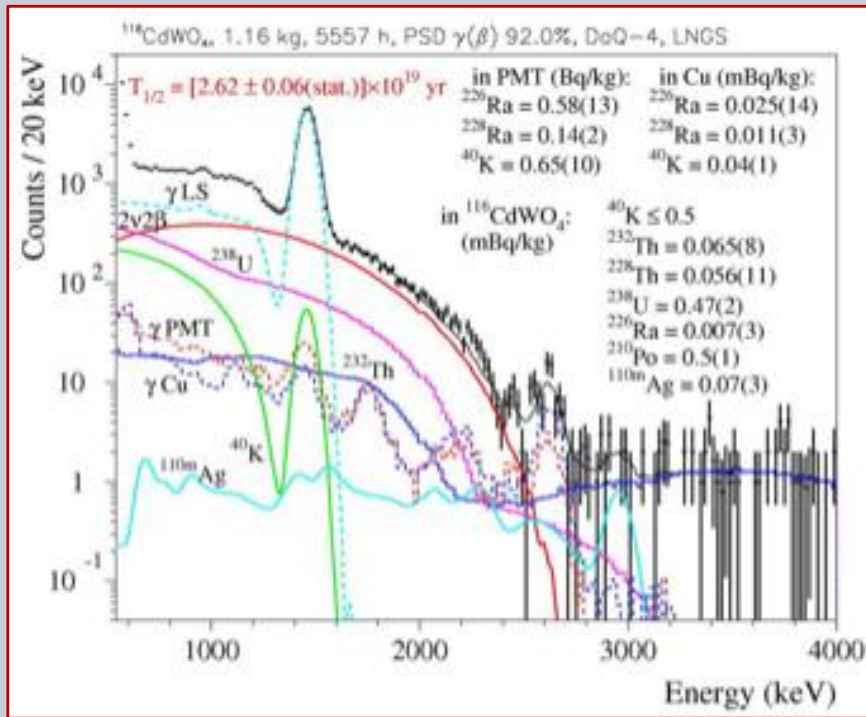
[2] F.A. Danevich et al., Phys. Rev. C 68 (2003) 035501.

[3] P. Belli et al., Phys. Rev. C 85 (2012) 044610.

# Risultati sperimentali per lo studio di modi di decadimento doppio beta in $^{106,116}\text{CdWO}_4$

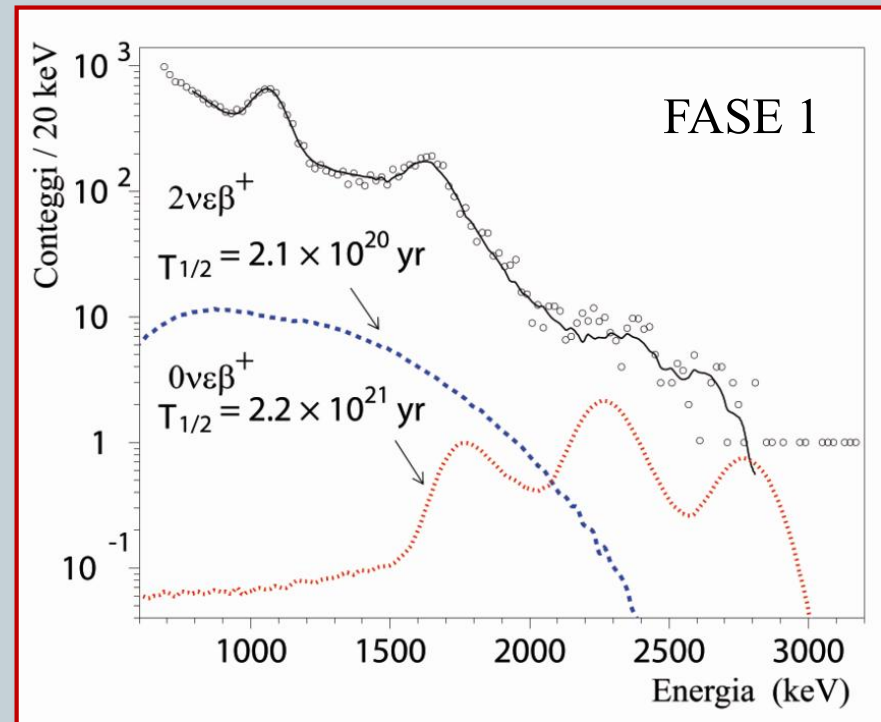


**$^{116}\text{CdWO}_4$ , 1.16 kg, 5557 h [1]**



$T_{1/2}^{2\nu 2\beta} = 2.62(0.06) \cdot 10^{19}$  anni (preliminare)  
 $T_{1/2}^{\beta\beta} (^{116}\text{Sn}^*) \geq 10^{21}$  anni  
 6 nuovi risultati per il  $\beta\beta$  del  $^{116}\text{Cd}$

**$^{106}\text{CdWO}_4$ , 215 g, 6590 h [2]**

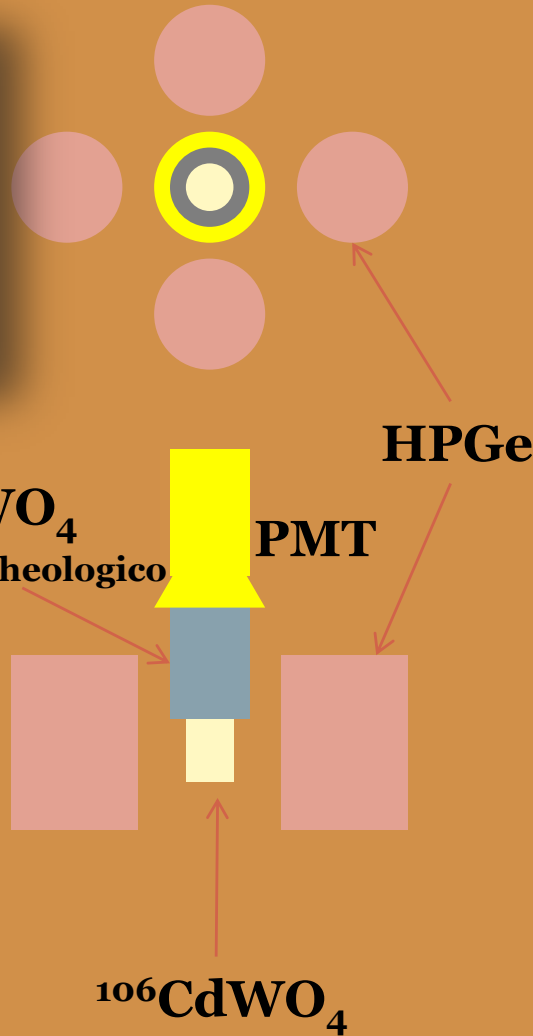


$T_{1/2}^{\beta\beta} (^{106}\text{Cd} \rightarrow ^{106}\text{Pd}) \geq 10^{19-21}$  anni  
 27 nuovi risultati per lo studio del decadimento doppio beta di cui 9 per la prima volta.

[1] R. Bernabei et al., Talk at Int. Conf. MEDEX-2013, June 11–14, Prague, Czech Republic.

[2] P. Belli et al., Phys. Rev. C 85 (2012) 044610.

# $^{106}\text{CdWO}_4$ - fase 2



- $^{106}\text{CdWO}_4$  in coincidenza o anticoincidenza con un sistema  $4\pi$  HP-Ge

Sensibilità attesa per lo studio di modi di decadimento  $2\nu\epsilon\beta^+$  e  $2\nu2\beta^+$  del  $^{106}\text{Cd}$ :

$$T_{1/2} \sim (1-10) \cdot 10^{20} \text{ anni}$$

Previsioni  $T_{1/2}$  [1-4]:

$$2\nu2K : (1-50) \cdot 10^{20} \text{ anni}$$

$$2\nu\epsilon\beta^+ : (8-400) \cdot 10^{20} \text{ anni}$$

Ulteriore possibile passo futuro:

Produzione di  $^{106}\text{CdWO}_4$  impoverito da  $^{113}\text{Cd}$  per abbattere il fondo dovuto alla presenza del  $^{113\text{m}}\text{Cd}$

[1] see in V.I. Tretyak and Yu.G. Zdesenko, At. Data Nucl. Data Tables 80 (2002) 83.

[2] S. Stoica and H. V. Klapdor-Kleingrothaus, Eur. Phys. J. A 17 (2003) 529.

[3] A. Shukla et al., Eur. Phys. J. A 23 (2005) 235.

[4] P. Domin et al., Nucl. Phys. A 753 (2005) 337.

# Conclusioni



Sviluppata tecnica efficace per la realizzazione di scintillatori  $\text{CdWO}_4$  arricchito in  $^{106,116}\text{Cd}$  con l'uso di quasi la totalità del Cd metallico arricchito  $^{106}\text{CdWO}_4$  (231 g; 66% di  $^{106}\text{Cd}$ ) &  $^{116}\text{CdWO}_4$  (1.9 kg; 82% di  $^{116}\text{Cd}$ )

Il materiale perso durante le fasi di purificazioni del Cd arricchito non eccede il 3%

- **Gli scintillatori sviluppati esibiscono ottime proprietà ottiche, di scintillazione ed elevati livelli radiopurezza, specie per la presenza di Th e Ra.**
- **Sono stati realizzati esperimenti presso il Laboratorio Nazionale del Gran Sasso, che hanno *migliorato i limiti sperimentali di diversi canali di decadimento doppio beta o posto nuovi limiti in  $^{106,116}\text{Cd}$ , raggiungendo sensibilità di  $T_{1/2} \sim 10^{19-21}$  anni ( $^{106}\text{Cd}$ ).***
- **E' stato, inoltre, misurato il decadimento doppio beta  $2\nu 2\beta$  in  $^{116}\text{Cd}$  con  $T_{1/2} = (2.62 \pm 0.06) \cdot 10^{19}$  anni (preliminare).**
- **E' in presa dati un nuovo setup sperimentale che usa il cristallo scintillatore di  $^{106}\text{CdWO}_4$  con un sistema  $4\pi$ -HP-Ge .**





GRAZIE PER L'ATTENZIONE