

ПОИСК  $\alpha$ -РАСПАДА ПРИРОДНЫХ ИЗОТОПОВ ВОЛЬФРАМА

А.Ш.Георгадзе, Ф.А.Даневич, Ю.Г.Здесенко, В.В.Кобычев,  
Б.Н.Кропивянский, В.Н.Куц, В.В.Музалевский, А.С.Николайко,  
О.А.Понкратенко, В.И.Третьяк

Институт ядерных исследований НАН Украины

252028 Киев, Украина

Поступила в редакцию 3 мая 1995 г.

В эксперименте, проведенном в Солотвинской подземной лаборатории с использованием сцинтилляционных кристаллов вольфраматов кадмия и цинка, установлены нижние пределы времени жизни природных изотопов вольфрама относительно  $\alpha$ -распада на уровне  $10^{17} - 10^{19}$  лет.

Теоретически все пять природных изотопов вольфрама нестабильны по отношению к  $\alpha$ -распаду [1,2], однако ни для одного из них этот процесс достоверно не обнаружен [3-8]. В соответствии с расчетами [1,2] только  $\alpha$ -распад  $^{180}\text{W}$  может быть зарегистрирован при разумной чувствительности методики ( $T_{1/2} \approx 10^{18}$  лет), тогда как изучение остальных изотопов представляет интерес лишь в плане обнаружения каких-либо аномальных эффектов, не предсказываемых существующей теорией и способных на много порядков увеличить вероятность искомого явления (см. таблицу).

$\alpha$ -Распад природных изотопов вольфрама

Изотоп	Распростр. изотопа [9]	$Q_{\alpha}$ , кэВ [10]	Теория: $T_{1/2}$ , год [1]	Эксперимент: $\lim T_{1/2}$ , год	
				[6]	Наст. работа
$^{180}\text{W}$	0,13(4)%	2514(5)	$2,5 \cdot 10^{18}$ $7,5 \cdot 10^{17}$ [2]	$1 \cdot 10^{15}$ $9 \cdot 10^{14}$ [8]	$7,4 \cdot 10^{16}$
$^{182}\text{W}$	26,3(2)%	1773,5(29)	$1,6 \cdot 10^{33}$	$2,1 \cdot 10^{17}$	$8,3 \cdot 10^{18}$
$^{183}\text{W}$	14,3(1)%	1681,9(28)	$6,3 \cdot 10^{38}$	$1,1 \cdot 10^{17}$	$1,9 \cdot 10^{18}$ $1,0 \cdot 10^{19}(1/2^- \rightarrow 1/2^-)$
$^{184}\text{W}$	30,67(15)%	1658,3(28)	$3,2 \cdot 10^{36}$	$2,5 \cdot 10^{17}$ $3,0 \cdot 10^{17}$ [7]	$4,0 \cdot 10^{18}$
$^{186}\text{W}$	28,6(2)%	1123(7)	$2,5 \cdot 10^{57}$	$2,3 \cdot 10^{17}$	$6,5 \cdot 10^{18}$

В настоящей работе для поиска возможной  $\alpha$ -активности вольфрама использованы результаты измерений фонов сцинтилляционных кристаллов вольфрамата кадмия ( $\text{CdWO}_4$ : объем -  $56,8 \text{ см}^3$ , масса -  $452 \text{ г}$  и  $^{116}\text{CdWO}_4$ : объем

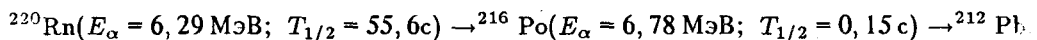
– 11,4 см<sup>3</sup>, масса – 91,5 г), полученные в исследованиях 2β-распада <sup>116</sup>Cd [11] и β-распада <sup>113</sup>Cd [12]. Дополнительно был измерен фон небольшого (объем – 0,6 см<sup>3</sup>, масса – 4,5 г) кристалла вольфрамата цинка ZnWO<sub>4</sub>.

Все исследования выполнены в Солотвинской подземной лаборатории, оборудованной в соляной шахте на глубине более 1000 м в.э. Подавление потока космических мюонов на этой глубине составляет 10<sup>4</sup>, а благодаря низкой радиоактивной загрязненности соли естественный γ-фон в соляной шахте примерно в 30–70 раз ниже, чем в других подземных лабораториях, построенных из обычных материалов [13].

Низкофоновые установки, использованные в измерениях, подробно описаны ранее [11, 12]. В них применены пассивная защита из бескислородной меди (5–8 см), ртути (8–10 см), свинца (23 см) и полиэтилена (24 см). Кристаллы вольфрамата кадмия просматриваются с двух сторон двумя ФЭУ-110 через световоды из оргстекла длиной 25 см. Благодаря специальной форме световодов энергетическое разрешение детекторов практически не ухудшилось и для энергии 662 кэВ составляет 10,7% с кристаллом CdWO<sub>4</sub> (∅4 × 4,5 см) и ≈ 13% для <sup>116</sup>CdWO<sub>4</sub> и ZnWO<sub>4</sub>. Энергетическая калибровка спектрометров проводилась периодически с помощью источников <sup>137</sup>Cs, <sup>207</sup>Bi, <sup>232</sup>Th и <sup>241</sup>Am.

Система регистрации, применяемая в экспериментах, состоит из микро-ЭВМ, накопителя на магнитной ленте и крейта КАМАК с аналого-цифровыми преобразователями (АЦП) и таймером. Так как сцинтилляторы CdWO<sub>4</sub> и ZnWO<sub>4</sub> имеют время высвечивания 10–20 мкс, во всех измерениях были использованы специальные электронные блоки, интегрирующие анодные сигналы ФЭУ в течение ≈ 40 мкс и формирующие короткие выходные импульсы, необходимые для нормальной работы АЦП. В этих же блоках осуществляется режекция сцинтилляционных сигналов от шумовых импульсов ФЭУ на основе различия их временных характеристик, что понизило порог регистрации CdWO<sub>4</sub> до 30–40 кэВ.

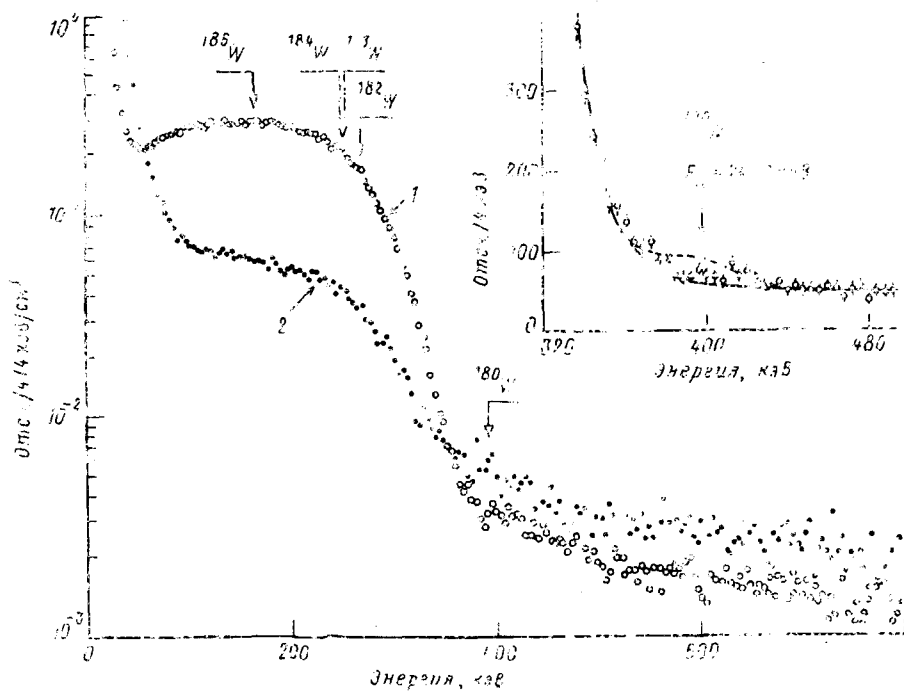
Для поиска α-распадов очень важным параметром используемых детекторов является зависящее от энергии отношение световых выходов для α- и β-частиц (так называемое α/β-отношение). Поскольку определение этой величины с помощью внешнего источника α-частиц сопряжено со значительными и трудноустраняемыми погрешностями (дефекты поверхностного слоя, самопоглощение α-частиц и пр.), указанное отношение было измерено по α-распадам нуклидов из семейств <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U и <sup>238</sup>U, присутствующих в используемых кристаллах из следовых количествах [11]. Для этого был разработан и применен метод анализа временных распределений фоновых событий [11]. В процессе его осуществления, например, поиск следующей цепочки двух α-распадов, входящих в семейство <sup>232</sup>Th:



В результате проведенного анализа установлена следующая приближенная функция, описывающая зависимость α/β-отношения от энергии α-частиц (E<sub>α</sub>, МэВ) для кристаллов CdWO<sub>4</sub> и <sup>116</sup>CdWO<sub>4</sub>: α/β = 0,14(3) + 0,009(5)E<sub>α</sub>. Аналогичная зависимость была получена и для кристаллов ZnWO<sub>4</sub>.

На рисунке изображены фоновые спектры кристаллов CdWO<sub>4</sub> (∅4 × 4,5 см) и <sup>116</sup>CdWO<sub>4</sub> (∅2,8 × 1,8 см), измеренные за 433 и 951 ч, соответственно. Присутствующий в них резкий подъем ниже энергии 350 кэВ является спектром

четырекратно запрещенного  $\beta$ -распада  $^{113}\text{Cd}$  ( $T_{1/2} = (9,3 \pm 1,9) \cdot 10^{15}$  лет, граничная энергия – 316 кэВ [10]), содержание которого в обогащенном кристалле равно 2,15(20)% [11], а в натуральном – 12,22(4)% [9]. Период полураспада и форма  $\beta$ -спектра  $^{113}\text{Cd}$ , играющие существенную роль при построении модели фона, были уточнены в уже упомянутых измерениях с кристаллом  $\text{CdWO}_4$  [12]:  $T_{1/2} = (7,7 \pm 0,3) \cdot 10^{15}$  лет.



Спектры фона кристаллов: 1 –  $\text{CdWO}_4$  ( $\varnothing 4 \times 4,5$  см, время измерения 433 ч) и 2 –  $^{116}\text{CdWO}_4$  ( $\varnothing 2,8 \times 1,8$  см, время измерения 951 ч). На вставке – участок спектра детектора  $\text{CdWO}_4$  и его аппроксимация. Площадь исключаемого с 90% доверительной вероятностью сигнала  $^{180}\text{W}$  (числ. отсчетов) соответствует  $\lim T_{1/2}(^{180}\text{W}) = 7,4 \cdot 10^5$  лет.

Так как отсутствие в фоновых спектрах каких-либо особенностей, указывающих на  $\alpha$ -активность вольфрама очевидно, полученные данные были использованы для оценки граничной вероятности этого процесса. При этом значение предела периода полураспада  $\lim T_{1/2}$  вычислялось с помощью известной формулы:  $\lim T_{1/2} = \ln 2 \epsilon t N_0 / \lim S_0$ , где  $N_0$  – количество ядер исследуемого изотопа,  $\epsilon$  – полная эффективность регистрации,  $t$  – время измерения,  $\lim S_0$  – предельное число событий эффекта, гипотеза о присутствии которых в экспериментальном спектре может быть исключена с заданной доверительной вероятностью. Оценки последней величины были выполнены по методу максимального правдоподобия с учетом рекомендаций Particle Data Group [14]. При этом принято, что экспериментальный спектр кристаллов  $\text{CdWO}_4$  и  $^{116}\text{CdWO}_4$  в интервале 100–600 кэВ описывается суммой трех функций, две из которых соответствуют фону ( $\beta$ -спектр  $^{113}\text{Cd}$  и экспонента), а третья – сигналу от этого эффекта (гауссиан). Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц в кристаллах равна практически 100%. Положение центра тяжести сигнала неизвестно,

энергии  $\alpha$ -частиц для каждого изотопа W, однако варьируется с учетом неопределенностей коэффициентов приведенной выше зависимости  $\alpha/\beta$ -отношения от энергии. Путем максимизации функции правдоподобия удается найти набор параметров (и их погрешностей), соответствующий максимальной вероятности наблюдения (в рамках принятой модели) измеренного спектра. В качестве свободных параметров при подгонке служили амплитуда и константа экспоненты, а также площадь  $\alpha$ -пика.

Применение описанной процедуры к спектрам кристаллов  $\text{CdWO}_4$  (для  $^{180}\text{W}$ ) и  $^{116}\text{CdWO}_4$  (для остальных изотопов W) приводит с учетом времени измерений и числа ядер ( $^{180}\text{W} - 9,9 \cdot 10^{20}$ ;  $^{182}\text{W} - 4,00 \cdot 10^{22}$ ;  $^{183}\text{W} - 2,18 \cdot 10^{22}$ ;  $^{184}\text{W} - 4,65 \cdot 10^{22}$ ;  $^{186}\text{W} - 4,35 \cdot 10^{22}$ ) к следующим пределам  $T_{1/2}$  относительно  $\alpha$ -распада изотопов вольфрама (доверительная вероятность 90%):

$$\lim T_{1/2}(^{180}\text{W}) = 7,4 \cdot 10^{16} \text{ лет}; \quad \lim T_{1/2}(^{182}\text{W}) = 8,3 \cdot 10^{18} \text{ лет};$$

$$\lim T_{1/2}(^{183}\text{W}) = 1,9 \cdot 10^{18} \text{ лет}; \quad \lim T_{1/2}(^{184}\text{W}) = 4,0 \cdot 10^{18} \text{ лет};$$

$$\lim T_{1/2}(^{186}\text{W}) = 6,5 \cdot 10^{18} \text{ лет}.$$

Как пример на рисунке (вставка в линейном масштабе) показана аппроксимация участка фонового спектра детектора  $\text{CdWO}_4$  в области  $\alpha$ -распада  $^{180}\text{W}$ . Площадь приведенного там  $\alpha$ -пика (исключаемого с 90% доверительной вероятностью) равна 460 отсчетам и соответствует  $\lim T_{1/2} = 7,4 \cdot 10^{16}$  лет.

Также была предпринята попытка обнаружения  $\alpha$ -перехода  $^{183}\text{W}$  на метастабильный ( $T_{1/2} = 18,7$  с, энергия - 375 кэВ) уровень ядра  $^{179}\text{Hf}$ , признаком которого является наличие второго задержанного после излучения  $\alpha$ -частицы события, причем распределение длительности интервалов между ними должно соответствовать  $T_{1/2} = 18,7$  с. С этой целью методика временного анализа была применена к результатам измерений в течение 526 ч фона кристалла вольфрамата цинка  $\text{ZnWO}_4$  ( $\varnothing 1,4 \times 0,4$  см, число ядер  $^{183}\text{W}$  равно  $1,24 \cdot 10^{21}$ ). При временном окне 0,1 - 60 с (в нем заключено  $\approx 90\%$  распадов  $^{179m}\text{Hf}$ ) в измеренном спектре не было обнаружено ни одной пары событий, удовлетворяющей всем критериям  $\alpha$ -распада  $^{183}\text{W}$  на метастабильный уровень  $^{179}\text{Hf}$ . Эффективность регистрации этого перехода была рассчитана по методу Монте-Карло с помощью пакета программ GEANT 3,15 [15] и составила 0,45. Принимая, что исключаемое число событий эффекта равно 2,3 (согласно [14]), получаем следующий предел  $T_{1/2}$  относительно  $\alpha$ -распада  $^{183}\text{W}$  на метастабильный уровень  $^{179}\text{Hf}$  (доверительная вероятность 90%):

$$\lim T_{1/2}(1/2^- \rightarrow 1/2^-) = 1,0 \cdot 10^{19} \text{ лет}.$$

Все полученные пределы  $T_{1/2}$  приведены в таблице. Сравнение с предыдущими результатами показывает, что в представленной работе достигнут прогресс по каждому изотопу вольфрама в  $\approx 20 - 50$  раз, и что чувствительность методики вплотную приблизилась к уровню, необходимому для наблюдения  $\alpha$ -распада  $^{180}\text{W}$ . В настоящее время подготавливается новый эксперимент, в котором планируется превзойти этот уровень путем дальнейшего снижения фона и увеличения объема детектора.

2. B.Al-Bataina and J.Janecke, Phys. Rev. C **37**, 1667 (1988).
3. W.Porschen and W.Riezler, Z. Naturforsch. **8a**, 502 (1953).
4. W.Porschen and W.Riezler, Z. Naturforsch. **11a**, 143 (1956).
5. W.K.Panofsky and D.Reagan, Phys. Rev. **87**, 543 (1956).
6. G.B.Beaard and N.H.Kelly, Nucl. Phys. **16**, 591 (1960).
7. G.Graeffe and M.Nurmia, Ann. Acad. Sci. Fennicae, Ser. A **V1**, N77 (1961).
8. R.D.Mac-Farlane and T.P.Kohman, Phys. Rev.**121**, 1758 (1961).
9. I.L.Barnes, T.L.Chang, T.B.Coplen et al., Pure and Appl. Chem. **63**, 991 (1991).
10. G.Audi and A.H.Wapstra, Nucl. Phys. A **565**, 1 (1993).
11. F.A.Danevich, A.Sh.Georgadze, V.V.Kobychev et al., Phys. Lett. B **344**, 72 (1995).
12. А.Ш.Георгадзе, Ф.А.Даневич, Ю.Г.Здесенко и др., Ядерная физика, в печати (1995).
13. Yu.G.Zdesenko, B.N.Kropivnyansky, B.N.Kuts et al., Proc. Int. Symp. Underground Phys., Baksan Valley, USSR, 1987, (Moscow, Nauka, 1988) p. 291.
14. Particle Data Group, Phys. Rev. D **45**, part II (1992).
15. R.Brun, F.Bruyant, M.Maire et al., GEANT User's Guide, Geneva, CERN, 1992.