



Findings of archaeological lead in Ukraine

Andriy NIKOLAIKO

Institute for Nuclear Research, Kiev, Ukraine

Low Radioactivity Techniques – Aussois, France, October, 2006

Authors

**F.A. Danevich¹, S.K. Kim², H.J. Kim³, A.B. Kostezh⁴,
V.V. Kobychhev¹, B.N. Kropivnyansky¹,
M. Laubenstein⁵, V.M. Mokina¹, S.S. Nagorny¹,
A.S. Nikolaiko¹,
S. Nisi⁵, D.V. Poda¹, V.I. Tretyak¹, S.A. Voronov⁶**

*¹Institute for Nuclear Research, Kiev,
Ukraine*

*²DMRC and School of Physics, Seoul National University, Seoul,
Republic of Korea*

*³Physics Department, Kyungpook National University, Daegu,
Republic of Korea*

*⁴Institute for Hydrometeorology Research, Kiev,
Ukraine*

*⁵Laboratori Nazionali del Gran Sasso, Assergi,
Italy*

*⁶Department of Underwater Heritage, Institute of Archaeology, Kiev,
Ukraine*

Trial to understand
history...

- **Dark Matter**
- **Processes on the Sun**
 - **Double β -decay**
and other rare and exotic decays
- **Elements and radioactivity in Cosmos**
 - **Role** of the Neutrino

...and progress of **Our Universe**

When?
now
and
in the
nearest
future

Where?

At underground labs

How???

with low-background installations



France

Modane ●

Italy

Gran Sasso ●

Ukraine

Solotvina ●



School map

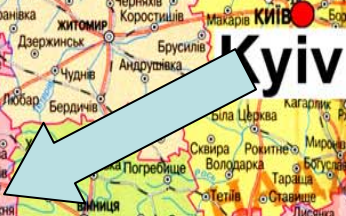


Україні
 Державний прапор України
 Державний малий герб України

Територія—603,7 тис. кв. км
 Населення—49 291,2 тис. осіб
 Столиця—місто Київ 2 628,8 тис. осіб

Адміністративний поділ—1 автономна республіка, 24 області та 2 міста, що мають спеціальний статус (Київ, Севастополь)
 Налічується 451 місто, 893 селища, 28 651 село

Державна мова—українська
 Дата проголошення незалежності України—24 серпня 1991р.



Ukraine

Solotvina

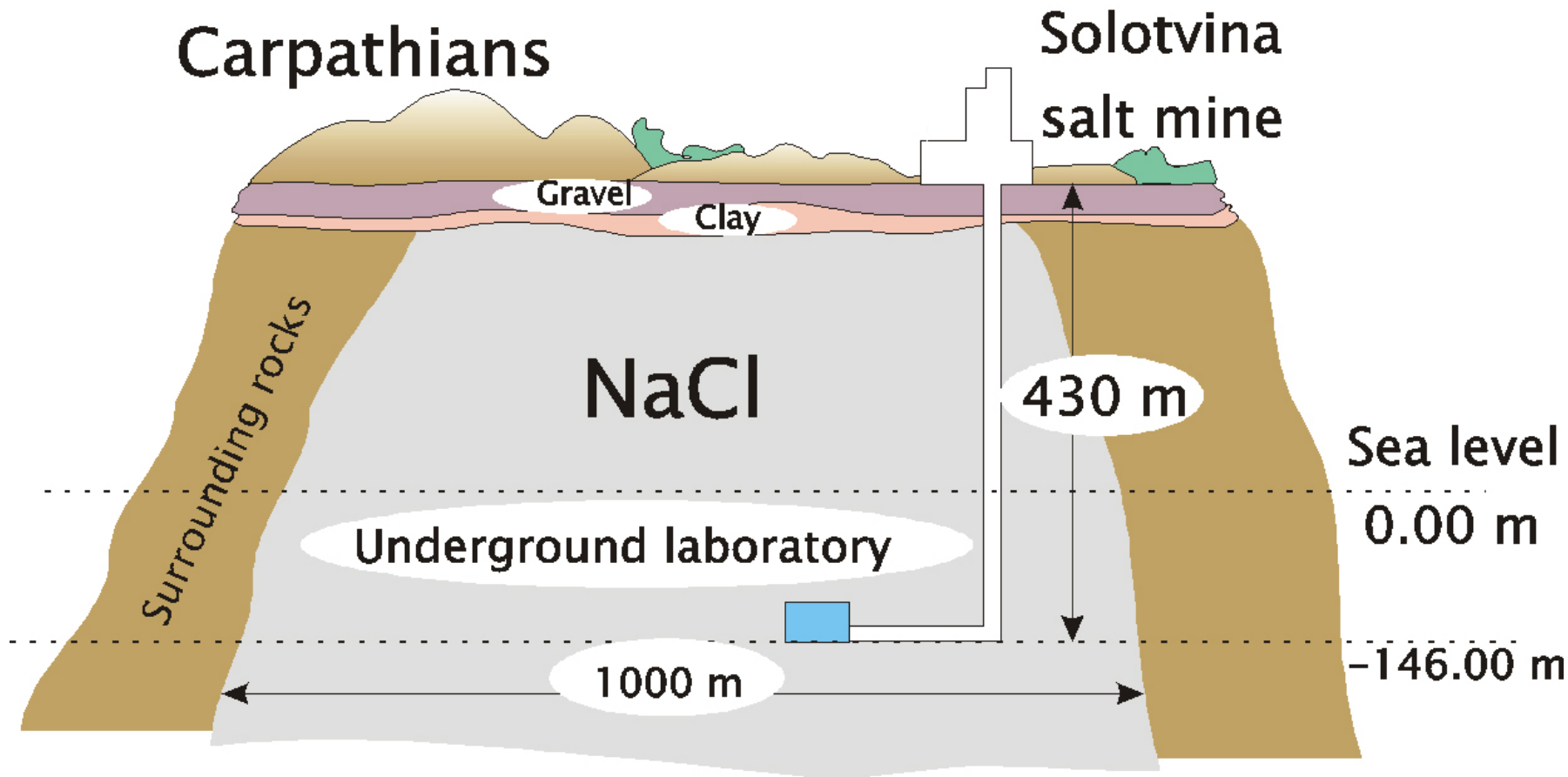
Black Sea

- УМОВНІ ПОЗНАЧЕННЯ**
- **КИЇВ** столиця держав
 - ⊙ **СИМФЕРОПОЛЬ** столиця Автономної Республіки Крим
 - ⊙ **ЛЬВІВ** центри областей України
 - ⊙ Фастів центри районів
 - ⊙ Ялта інші міста
 - Булу населені пункти за межами України
- КОРДОНИ ТА МЕЖІ**
- держав
 - Автономної Республіки Крим, областей України
- ШЛЯХИ СПОЛУЧЕННЯ**
- залізничні
 - автомобільні шляхи
 - морські шляхи, відстані в кілометрах
 - морські залізничні поромні переправи
 - морські порти
 - міжнародні аеропорти
- ТАВРІЯ** Історико-етнографічні землі
- Назви областей, однойменні з їхніми центрами, на карті не підписані

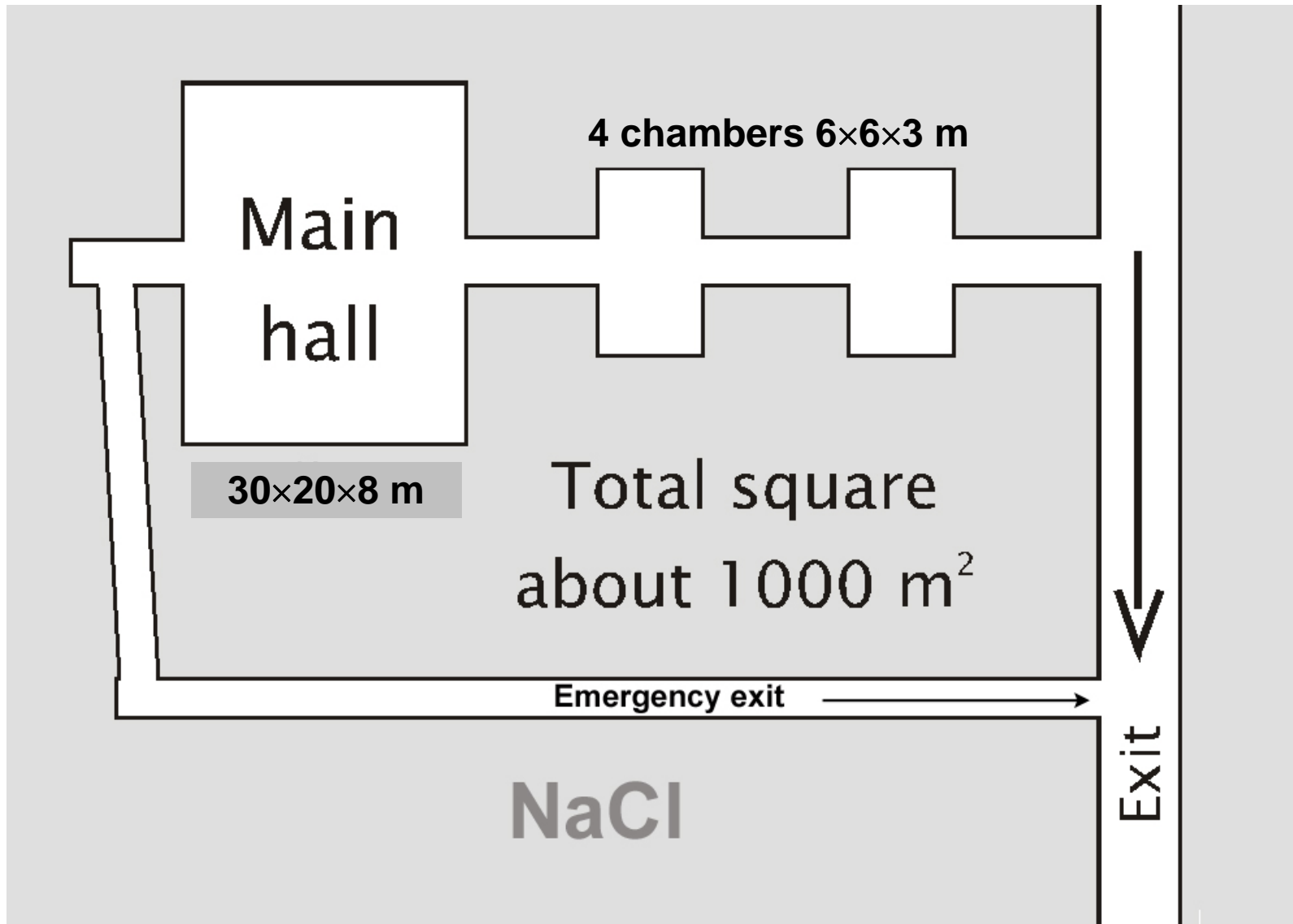


Solotvina Underground Laboratory

Institute for Nuclear Research (Kiev, Ukraine)



Plan of Solotvina Lab





We plan to build a clean room of 10 000 class up to the end of 2006

Why lead?

1. An **excellent shield** against external γ -activity
2. Clean **PbWO₄** or **PbMoO₄** crystal scintillators
3.

But in modern lead

²¹⁰Pb \Rightarrow 22.3 years, β^- (17.61 keV) + γ (46 keV)

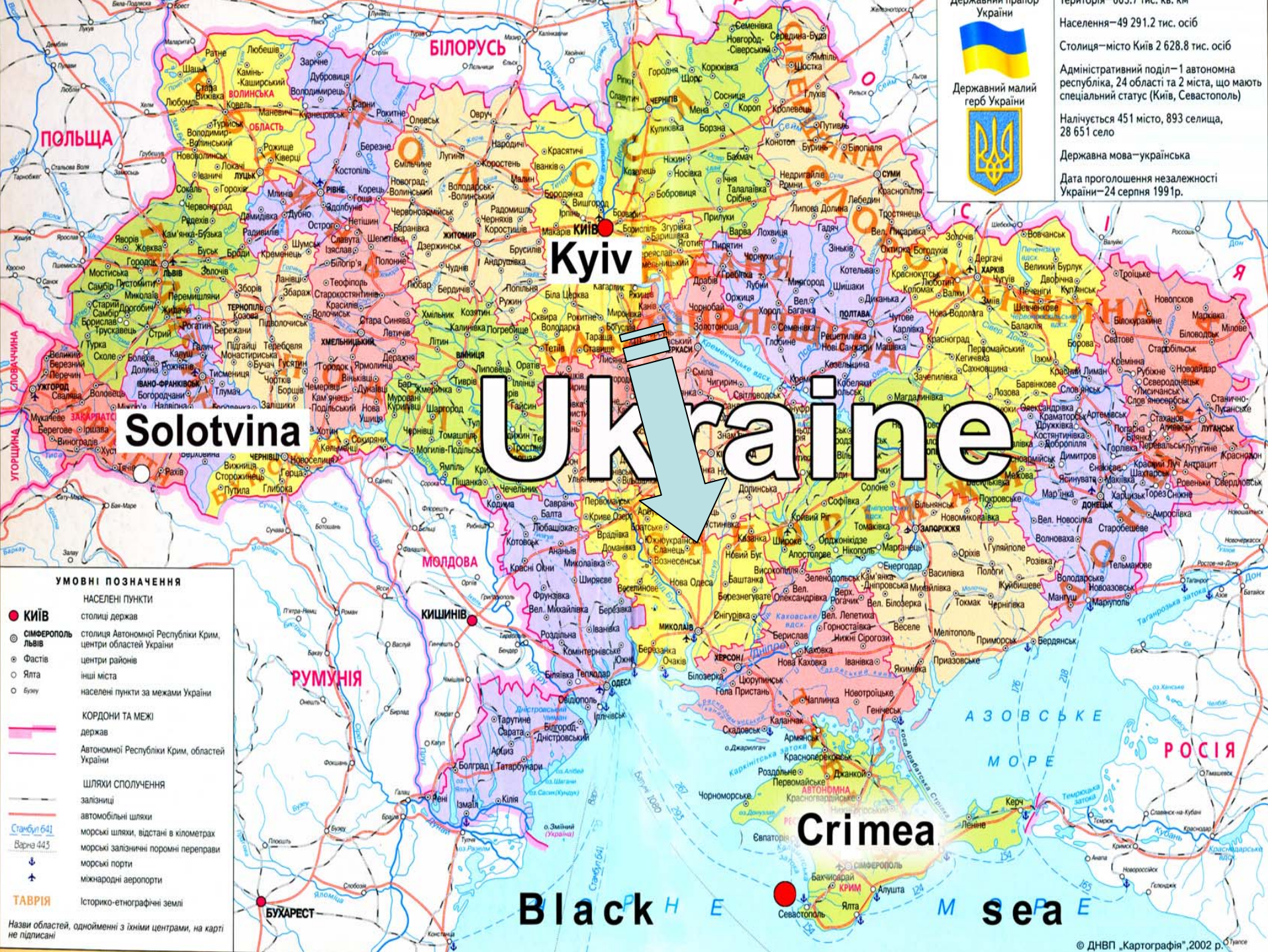
²¹⁰Bi \Rightarrow 5.01 days, β^- (1162 keV) + γ (305, 266 KeV)

²¹⁰Po \Rightarrow 138 days, α (5304 keV) \Rightarrow ²⁰⁶Pb

In modern lead used in underground experiments this contamination is around **200-20 Bq/kg**

²¹⁰Pb contributes to most of the background in experiments searching **low energy events** like direct interactions of WIMP's.

In June-August 2006 a research expedition
with the aim to look for archaeological
low-radioactive lead
at the bottom of Black Sea
near Crimea (Ukraine)
was organized by the
Korean-Ukrainian collaboration.



Державний прапор України
 Державний малий герб України

Населення—49 291,2 тис. осіб
 Столиця—місто Київ 2 628,8 тис. осіб
 Адміністративний поділ—1 автономна республіка, 24 області та 2 міста, що мають спеціальний статус (Київ, Севастополь)
 Налічується 451 місто, 893 селища, 28 651 село
 Державна мова—українська
 Дата проголошення незалежності України—24 серпня 1991р.

Solotvina

Ukraine

Kyiv

- УМОВНІ ПОЗНАЧЕННЯ**
- **КИЇВ** столиця держав
 - ◎ **СИМФЕРОПОЛЬ** столиця Автономної Республіки Крим
 - ◎ **ЛЬВІВ** центри областей України
 - Фастів центри районів
 - Ялта інші міста
 - Булу населені пункти за межами України
- КОРДОНИ ТА МЕЖІ**
- держав
 - Автономної Республіки Крим, областей України
- ШЛЯХИ СПОЛУЧЕННЯ**
- залізничні
 - автомобільні шляхи
 - морські шляхи, відстані в кілометрах
 - морські залізничні поромні переправи
 - морські порти
 - міжнародні аеропорти
- ТАВРІЯ** Історико-етнографічні землі
- Назви областей, однойменні з їхніми центрами, на карті не підписані

OK!



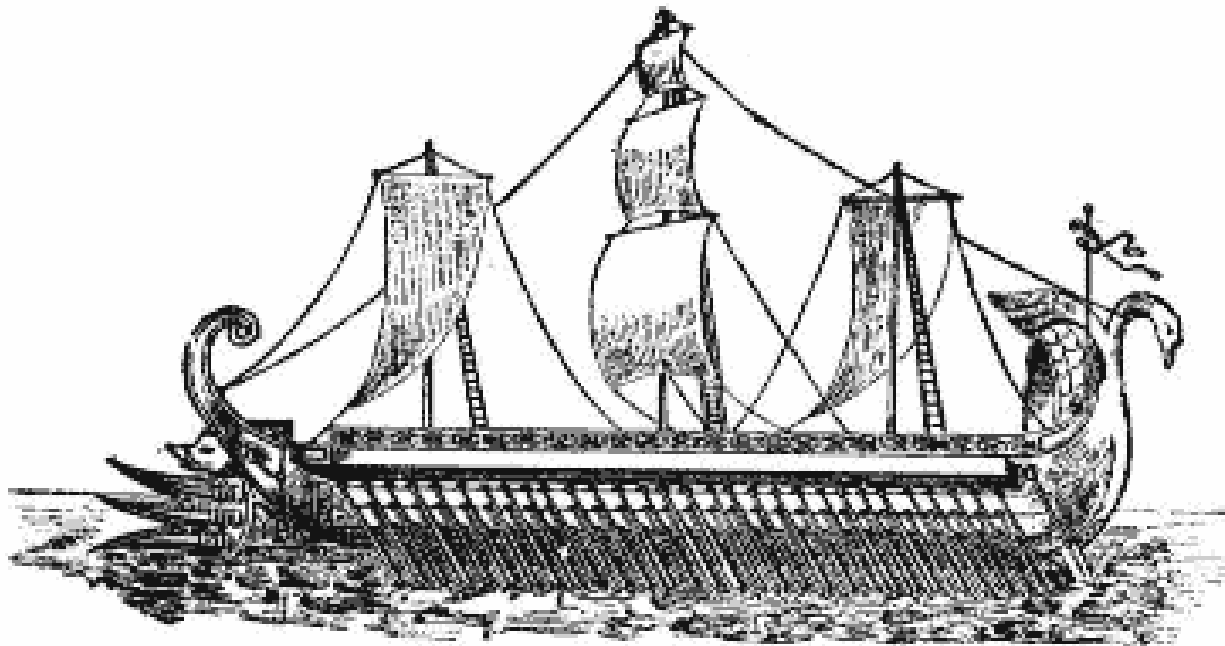
The first samples with total mass ~0.2 tons

have been located at a depth of 28 m among the relics of a sank Greek ship.

Their age is dated to the I century B.C.

This lead was used as ballast of the 30 meters long ship.

The age was preliminary determined by amphoras and other subjects situated near the ship



First was Professor Ettore Fiorini

in the past century

- 2 roman ships sank at 28 m depth (near Sardinia) and at 95 m depth (near Africa)

A.Alessandrello et al. (E.Fiorini group)

Measurements of internal radioactive contamination in samples of Roman lead to be used in experiments on rare events

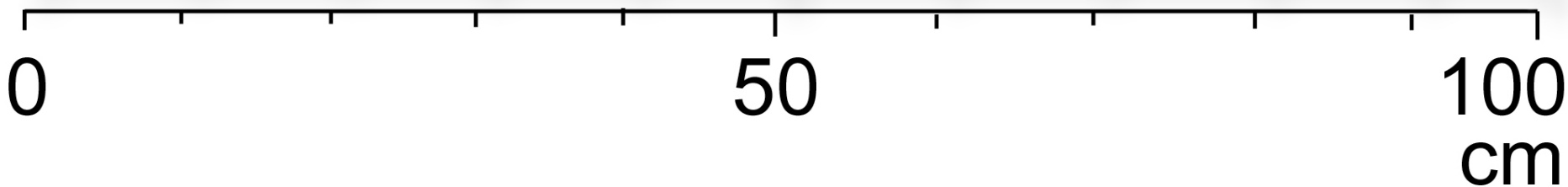
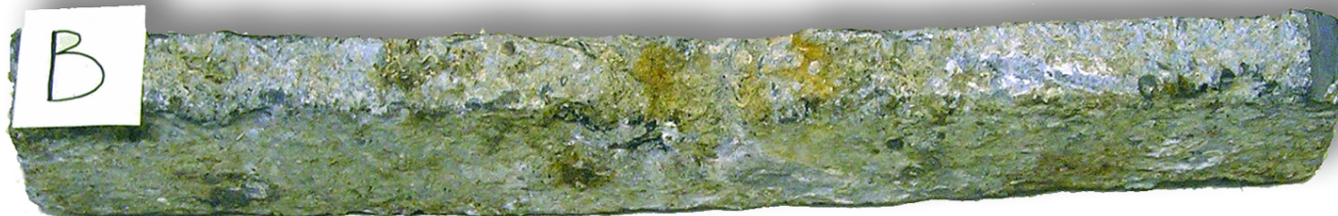
NIM B142 (1998), 163-172

^{210}Pb is expected to be
totally absent in ancient lead
as the one found in wrecks of Roman ships
sunk in the Mediterranean sea [1]
or near Britain [2].

In addition, the overburden of water has prevented
the lead, and even more its chemical
contamination, to be activated by cosmic ray
neutrons [3].

1. A. Alessandrello et al, Nucl. Instr, and Meth. B 61 (1991) 06
2. M. L'Hour, Rev. Archeol. Ouest 4 (1987) 113.
3. E. Fiorini et al., Measurements on the flux of environmental neutrons in the Mediterranean sea, I.N.F.N.TC. 92/13, (1992).

Samples of ancient lead found in Ukraine



**Real possibility
to enlarge
the mass of ancient lead exists**

There is about 1 meter
of sediments at this place
and additional equipment (like aspirator) is
needed to found and take the rest of lead.

And there are other ancient ships sank
near Crymea at rather small depth.

Estimation is >1-2 tons

Chemical composition of Roman lead (ppb)

Element	Sample 1		Sample 2	
Se	0.98 (0.10)	1.4 (0.2)	2.0 (0.5)	<1
Zn	0.5(0.1)	<20	10-20	<20
As	0.5(0.2)	0.012 (0.004)	15(5)	40 (5)
Sb	0.09(0.01)	0.1 (0.01)	900 (30)	900(140)
As	45.0(2.5)	58(5)	140(30)	240(40)
Ni	4.5(0.5)	3.0(0.2)	30(10)	18 (6)
Cu	-	1270 (100)	-	600 (30)
W	<0.02	-	0.3(0.1)	-

A.Alessandrello et al. , NIM B142 (1998), 163-172

The element composition (%)

of the lead samples was **preliminary checked** by means
of X-ray fluorescence

(Philips X'Unic II spectrometer)

Element	Sample		
	A	B	C
Pb	99.52	99.53	99.59
Cu	0.36-0.16	0.20	0.116
Al	0.020	-	0.037
Si	0.095	0.061	0.094
Zn	-	0.023	-

Chemical composition of ancient lead by ICP-MS analysis at LNGS (ppb)

very preliminary results (semi-quantitative analysis)

Element	Lead A	Lead B	Lead C
²⁴ Mg	1200	1500	1100
²⁷ Al	1200	1000	1100
⁴³ Ca	4700	3900	3100
⁶⁰ Ni	4300	9100	1000
⁶³ Cu	130000	330000	180000
⁷⁵ As	<100	<100	95000
¹⁰³ Rh	11000	10000	12000
¹⁰⁷ Ag	16000	38000	99000
¹²¹ Sb	8200	15000	330000
⁹⁵ Mo	<1000	2400	<1000
²³²Th	≤10	≤10	≤10
²³⁸U	≤10	≤10	≤10

Content of K, Zn, Pt, Au and many other elements are under level of sensitivity

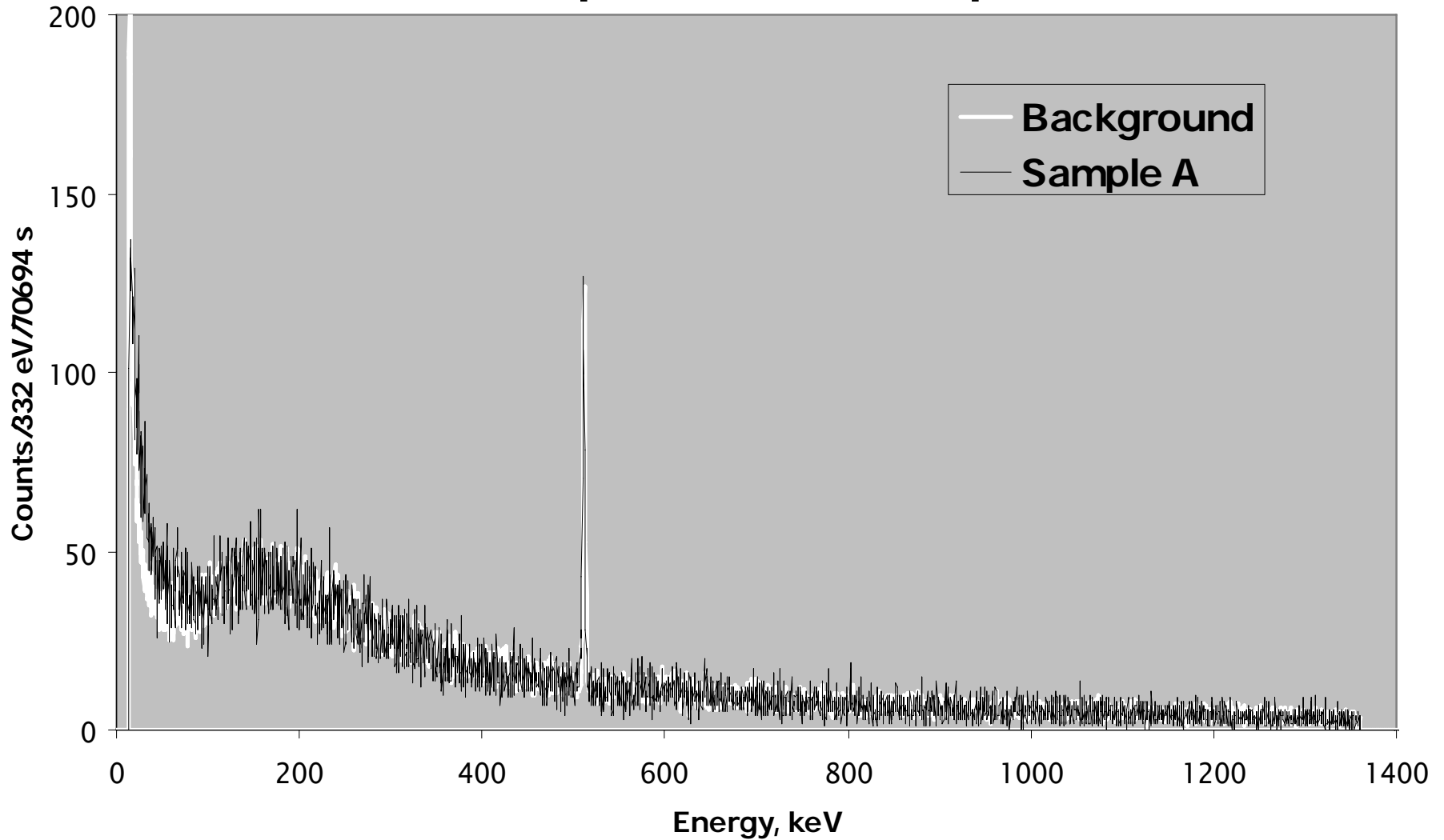
Radioactivity measurements

3 samples from different pieces A, B, C
(with mass 4.77; 3.56 and 3.50 g)
in the form of “tube” with wall thickness
0,4 mm were measured in Kiev
with well-type **low-background**
HPGe-spectrometer ORTEC GWL-100/210

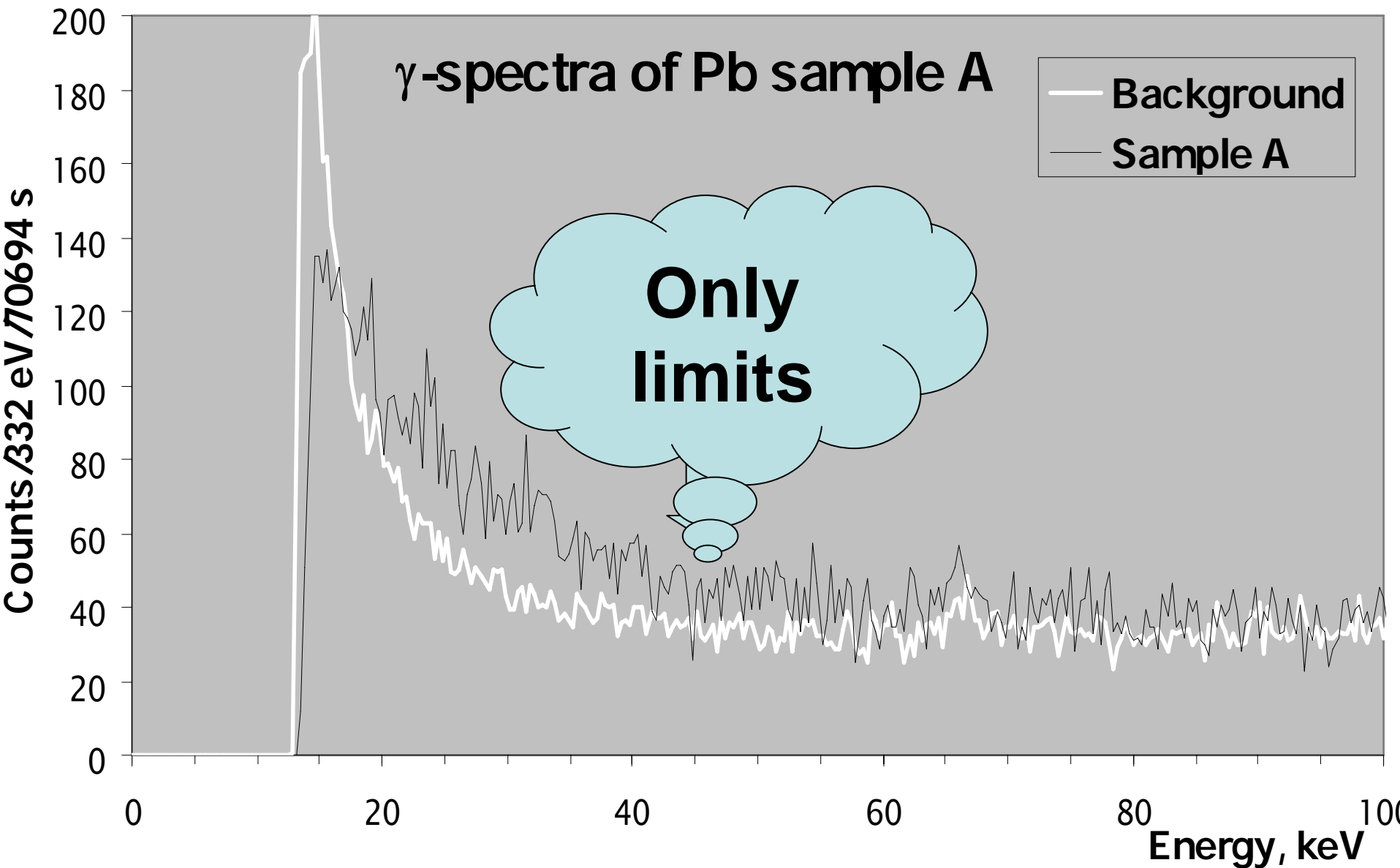
**Institute for Hydrometeorology Research, Kiev*

Measurements in Kiev

γ -spectra of Pb sample A



Lowenergy part of spectrum



Limits on radioactive contamination of archaeological lead (Bq/kg)

from Kiev measurements

Isotope	Lead sample		
	A	B	C
^{210}Pb	≤ 77	≤ 37	≤ 15
^{40}K	≤ 22	≤ 20	≤ 13
^{60}Co	$\leq 1,2$	$\leq 1,1$	$\leq 0,9$
^{137}Cs	$\leq 1,2$	$\leq 1,1$	$\leq 0,8$
^{208}Tl	$\leq 0,9$	$\leq 3,3$	$\leq 0,3$



Laboratori Nazionali del Gran Sasso
Servizio di Chimica e Impianti Chimici

3 samples of lead
($\approx 10\text{g}$ each) are under
measurement in **Gran Sasso**
with a low-background
 α -detector

VERY preliminary limits on the ^{210}Pb
in the samples:
 $\leq 0.2 \text{ Bq/kg}$

The measurements of ^{210}Pb , ^{40}K , Th/U and other radionuclides are soon starting at the Laboratori Nazionali del

Gran Sasso (Italy),
prepared at the underground laboratory in
Solotvina (Ukraine).

And very soon they will start also at
Yangyang (Republic of Korea)

Improvement of the sensitivity

E.Fiorini's group applied the technique of **cryogenic detection** and found for the two samples **upper limits for contamination of ^{210}Pb of 4 and 7 mBq/kg**, the lowest ever determined for any type of lead.

We plan to check the radiopurity of the lead
at the level of **$\mu\text{Bq/kg}$**
with the help of
 PbWO_4 or PbMoO_4 crystal scintillators
using the lead from samples
as raw material for crystal growth.

Radioactive contaminations in PbWO_4 and CdWO_4 crystal scintillators.

Chain	Source	Activity (mBq/kg)	
		PbWO_4	CdWO_4
^{232}Th	^{228}Th	≤ 13	0.004-0.039(2)
^{238}U	^{226}Ra	≤ 10	0.004
	^{210}Pb	$(53-79) \times 10^3$	0.4

150000 times

New possibility:



a detector to search for 2β of Molybdenum
without the background from Ca, as it would be
the case of CaMoO_4 crystal

SUMMARY

- The first samples of ancient lead in Ukraine with total mass ~0.2 tons were obtained and their **study is ongoing**.
- Real possibility exists **to enlarge this quantity** up to 1-2 tons.
- Preliminary checks show that this lead is **clean from radioactivity** at a level of less than few hundreds of mBq/kg.
- Improvement of measurements sensitivity **is in progress**.
- Possibility of **new clean scintillation crystal growth** is real:
 - PbWO₄** is very promising
 - PbMoO₄** is certainly interesting

**Grand merci to personnel
of Laboratoire Souterrain du Modane
and all organizers of this meeting!**

