

# Gammaspektroskopie-Messungen von Edelstahl für das GERDA-Experiment

Werner Maneschg  
( für TG 11, GERDA-Kollaboration )

Max-Planck-Institut für Kernphysik

DPG-Tagung in Freiburg, 4. März 2008

# Überblick

- 1 **Einleitung**
  - Edelstahl im GERDA-Experiment
  - Reinheitsanforderungen an Edelstahl in GERDA
  - Edelstahlsuche
- 2 **Messvorgang**
  - Messtechnik: Low-Level- $\gamma$ -Spektroskopie
  - Messauswertung
- 3 **Messergebnisse**
  - Natürliche Radionuklide
  - Anthropogene Radionuklide
  - Kosmogene Radionuklide
- 4 **Zusammenfassung**

# Einsatz von Edelstahl im GERDA-Experiment

- **GERDA-Kryostat**

Aufbau: Halle A, LNGS

Maße	D [m]	h [m]
Äuß. Tank	4,2 m	7,55 m
Inn. Tank	4,0 m	6,25 m

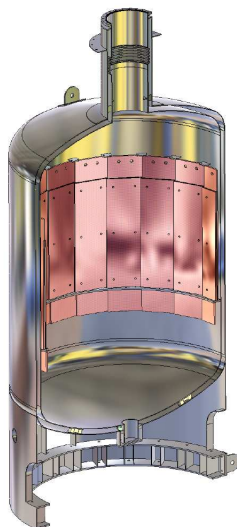
→ bis zu **100 t** Flüssig-Argon

- **LArGe**

Aufbau: ehem. LENS

Low-Background Facility, LNGS

→ bis zu **1 t** Flüssig-Argon



# Einsatz von Edelstahl im GERDA-Experiment

- **GERDA-Kryostat**

Aufbau: Halle A, LNGS

Maße	D [m]	h [m]
Äuß. Tank	4,2 m	7,55 m
Inn. Tank	4,0 m	6,25 m

→ bis zu **100 t** Flüssig-Argon

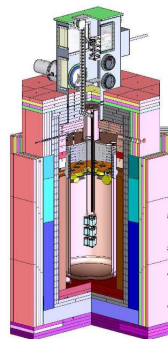
- **LArGe**

Aufbau: ehem. LENS

Low-Background Facility, LNGS

Maße	D [m]	h [m]
Dewar	1 m	2,2 m
Schild	2,5 m	3,6 m

→ bis zu **1 t** Flüssig-Argon



# Reinheitsanforderungen an Edelstahl in GERDA

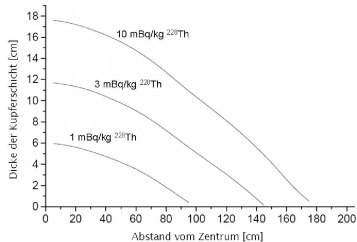
- Bisher gemessene Konzentrationen**

Material	K ( $^{228}\text{Th}$ )	K ( $^{226}\text{Ra}$ )	K ( $^{40}\text{K}$ )
Elektrolyt.Kupfer (LENS)	<19 $\mu\text{Bq/kg}$	<16 $\mu\text{Bq/kg}$	<88 $\mu\text{Bq/kg}$
Edelstahl (Borexino)	(5-12) mBq/kg	(5-17) mBq/kg	<40 mBq/kg

LENS: C. Arpesella et al., *Astropart. Phys.* 18, 1-25 (2002)

BX: G. Heusser et al., *Radionucl. in the Env.*, pp. 495-510 (2006)

- MC-Simulationen für den GERDA-Kryostaten:**



I. Barabanov et al., Paper in Vorbereitung (2008)

## Edelstahlsuche

- **Hersteller/Händler:** Outokumpu, Industeel, Ilsenburg, Ugine & Alz, Acroni
- **Edelstahltypen (Norm: DIN EN 10088):** 1.4571 (Bleche für LArGe und GERDA-Kryostat), 1.4430 (Schweißdrähte)
- **Spezifikation von 1.4571**

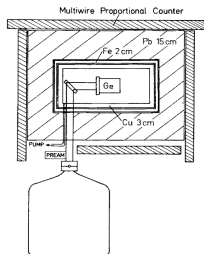
Standard: DIN EN 10088								
Material: X6CrNiMoTi17-12-2								
Material number: 1.4571								
C	Si	Mn	$P_{MAX}$	S	Cr	Mo	Ni	Ti
≤ 0.08	≤ 1.00	≤ 2.00	0.045	≤ 0.015	16.50 -18.50	2.00 -2.50	10.50 -13.50	min: (5 x C) max: 0.70

- **Maße von ES-Blechen (typ.):** (LxBxH) [cm<sup>3</sup>]:  
1290 x 200 x 1.2 ⇒ **2,5 t**, 2,5 x 4,8 x 1,2 ⇒ **1,1 t**
- **Probenentnahme (typ.):** **(40-60) kg**

# $\gamma$ -Spektroskopie mit Germanium-Detektoren

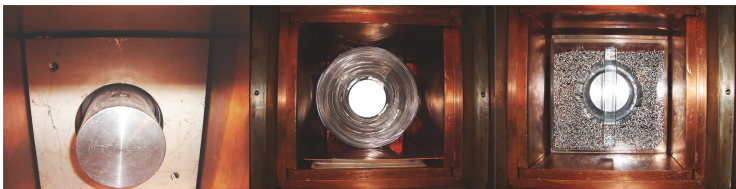
- Messungen mit 2 **hochsensitiven Ge-Detektoren**:
  1. **DARIO** am LLL (MPI-K), Heidelberg: 15 m w.e.
  2. **GeMPI** am LNGS, Assergi:  $\sim 3500$  m w.e.

Detektor	DARIO	GeMPI
Aktive Masse [kg]	0,83	2,2
Probenkammer [dm <sup>2</sup> ]	11,0	15,0
Sensitivität	<sup>226</sup> Ra: 0,6 mBq/kg <sup>228</sup> Th: 0,5 mBq/kg <sup>40</sup> K: 1,7 mBq/kg	<sup>226</sup> Ra: 16 $\mu$ Bq/kg <sup>228</sup> Th: 19 $\mu$ Bq/kg <sup>40</sup> K: 88 $\mu$ Bq/kg



## Durchführung der $\gamma$ -Spektroskopie-Messungen

- **Proben-Präparierung:** 1,5 h/Probe,  
Kombination aus: Biolog.-, Laugen-, Ultraschallbad
- **Proben-Insertion:** Blech, Drahtrolle, Schweißstifte

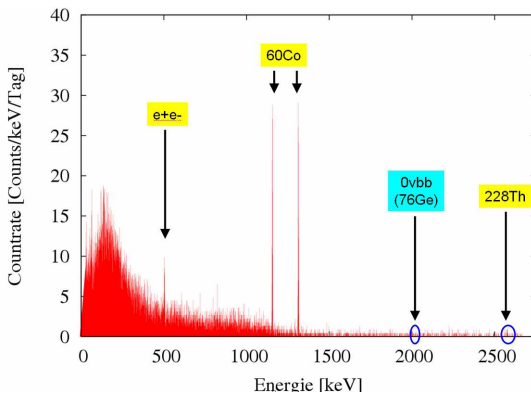


- **Messung (typ.):**  
Wartezeit: (1-3) d (Zerfall von  $^{222}\text{Rn}$  & Töchtern abwarten)  
Messzeit: (3,0-19,6) d (**i.A. lange Exposition!**)



# Messauswertung

## ● Edeltahlspektrum: Bs: Probe D3



- **Auswertung:** Abziehen des Untergrundes von Spektrallinien und Korrektur auf Detektoreffizienz (nach DIN-25482-5)
- **Effizienzberechnung:** durch Monte-Carlo-Simulationen

## Konzentrationen an natürlichen Radionukliden (1)

## Beispiel: Edelstahl für den GERDA-Kryostaten

Probe	D1	D2	D3	D4	D5	D6	D7
Exposition	158.5	243.2	384.8	443.6	241.8	521.3	217.56
Hersteller	IS	IB	IB	IB	IB	IB	IB
<sup>228</sup> Ra	< 3.0	< 3.5	< 3.6	< 3.8	< 1.8	< 1.4	< 4.2
<sup>228</sup> Th	3.4 ± 1.0	< 1.7	< 1.9	< 1.8	< 1.1	< 0.8	< 1.0
<sup>226</sup> Ra	< 2.6	< 2.0	< 0.9	< 1.6	< 1.5	< 0.6	< 1.4
<sup>234m</sup> Pa	< 155	< 100	< 84	< 53	< 76	< 38	< 152
<sup>40</sup> K	< 4.0	< 4.7	< 3.4	< 3.3	< 3.2	< 1.8	< 7.2

Probe	G1	G2	G3	G4	G5	G6	G7
Exposition	174.9	1072.4	178.9	195.6	510.1	294.1	331.3
Hersteller	IB	IB	U	A	A	IB	A
<sup>228</sup> Ra	< 2.6	< 0.86	< 1.0	< 3.0	1.0 ± 0.5	< 1.1	1.9 ± 1.0
<sup>228</sup> Th	< 0.20	< 0.11	< 0.41	5.1 ± 0.5	1.5 ± 0.2	< 0.27	5.2 ± 0.5
<sup>226</sup> Ra	< 1.3	< 0.24	< 0.74	< 1.3	1.0 ± 0.6	< 0.35	3.9 ± 1.6
<sup>234m</sup> Pa	< 94	< 12	< 45	< 41	54 ± 16	< 38	< 56
<sup>235</sup> U	< 2.6	< 0.63	< 1.5	< 1.9	2.5 ± 1.5	< 1.5	< 3.9
<sup>40</sup> K	< 2.8	< 0.93	< 1.1	< 1.7	< 0.81	< 1.1	< 1.7

**Bezeichnung:** D (Dario), G (GeMPI), **Numerierung:** zeitliche Reihenfolge

**Hersteller:** IN=Industeel, IS=Ilseburg, A=Acroni, U=Ugine&Alz

**Exposition:** [kg·h], **Konzentration:** [mBq/kg]

## Konzentrationen an natürlichen Radionukliden (2)

- **Konzentrationen an  $^{228}\text{Th}$ :**
  - Alle 13 Proben  $< 5,7$  mBq/kg
  - 10  $< 2$  mBq/kg, 6 Proben  $< 1$  mBq/kg
  - Beste Probe: G2:  $< 0,11$  mBq/kg
- **Die anderen Konzentrationen:**
  - $^{228}\text{Ra}$ :  $< 3,8$  mBq/kg,
  - $^{226}\text{Ra}$ :  $< 5,5$  mBq/kg,  $^{40}\text{K}$ :  $< 7,2$  mBq/kg
- **Weitere Testproben u. LArGe-Proben**  
→ ähnliche Messergebnisse
- $^{228}\text{Th}$ -Vergleich: GERDA  $\Leftrightarrow$  Borexino

Probe Exposition	G2
$^{228}\text{Ra}$	$< 0.86$
$^{228}\text{Th}$	$< 0.11$
$^{226}\text{Ra}$	$< 0.24$
$^{234m}\text{Pa}$	$< 12$
$^{235}\text{U}$	$< 0.63$
$^{40}\text{K}$	$< 0.93$

Probe (BX)	Nr 1	Nr 2	Nr 3	Nr 4
$^{228}\text{Th}$	$4,6 \pm 0,9$	$6,2 \pm 1,2$	$17 \pm 3$	$5 \pm 1$
$^{226}\text{Ra}$	$11,4 \pm 1,1$	$6,5 \pm 1,6$	$3,8 \pm 2,6$	$5 \pm 2$
$^{40}\text{K}$	$< 14$	$< 13$	$< 19$	$4 \pm 2$

→ GERDA:  $\sim 1$  Größenordnung besser

## Konzentrationen an natürlichen Radionukliden (2)

- **Konzentrationen an  $^{228}\text{Th}$ :**
  - Alle 13 Proben  $< 5,7$  mBq/kg
  - 10  $< 2$  mBq/kg, 6 Proben  $< 1$  mBq/kg
  - Beste Probe: G2:  $< 0,11$  mBq/kg
- **Die anderen Konzentrationen:**
  - $^{228}\text{Ra}$ :  $< 3,8$  mBq/kg,
  - $^{226}\text{Ra}$ :  $< 5,5$  mBq/kg,  $^{40}\text{K}$ :  $< 7,2$  mBq/kg
- **Weitere Testproben u. LArGe-Proben**  
→ ähnliche Messergebnisse
- **$^{228}\text{Th}$ -Vergleich: GERDA  $\Leftrightarrow$  Borexino**

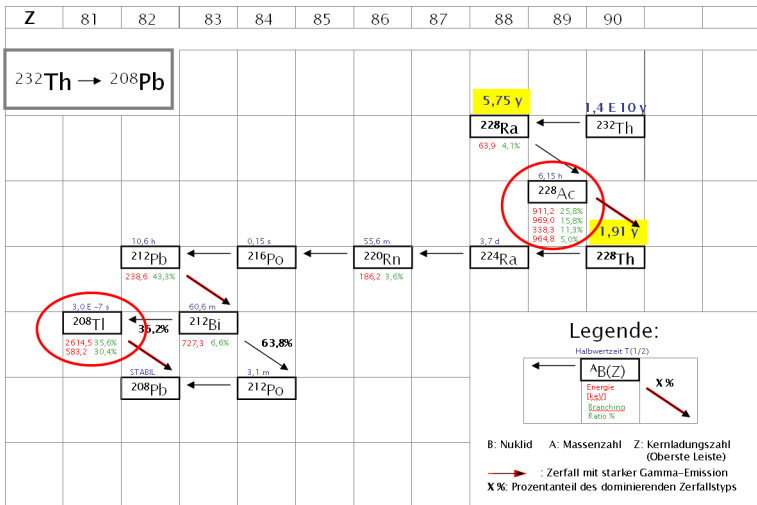
Probe (BX)	Nr 1	Nr 2	Nr 3	Nr 4
$^{228}\text{Th}$	$4,6 \pm 0,9$	$6,2 \pm 1,2$	$17 \pm 3$	$5 \pm 1$
$^{226}\text{Ra}$	$11,4 \pm 1,1$	$6,5 \pm 1,6$	$3,8 \pm 2,6$	$5 \pm 2$
$^{40}\text{K}$	$< 14$	$< 13$	$< 19$	$4 \pm 2$



→ GERDA:  $\sim 1$  Größenordnung besser

# Störung des sekulären Gleichgewichts: Prinzip

## Darstellung: Th-Zerfallsreihe



## Störung des sekulären Gleichgewichts: Beobachtung

- **Betroffene Proben:** G4, G5, G7

Sample	G4	G5	G7
Exposure	195.6	510.1	331.3
Vendor	A	A	A
<sup>228</sup> Ra	< 3.0	1.0 ± 0.5	1.9 ± 1.0
<sup>228</sup> Th	5.1 ± 0.5	1.5 ± 0.2	5.2 ± 0.5
<sup>226</sup> Ra	< 1.3	1.0 ± 0.6	3.9 ± 1.6
<sup>234m</sup> Pa	< 41	54 ± 16	< 56

- **Gleichgewichtsherstellung:** für <sup>228</sup>Th: erst nach 30 Jahren
- **Ursachen:** Edelstahltyp ausgeschlossen  
→ Schmelzverfahren(?), Ausgangsmaterial(?),...
- **Problematisch für Massenspektroskopie:** ICPMS sieht nur Mutternuklide! ⇔ γ-Spektroskopie

## Repräsentativität der Einzelmessungen

- **Situation:** GERDA-Kryostat: 13 Proben, insg. ~600 kg; Einsatz an Edelstahl beim Kryostaten: ~25 t
- **Homogenität der Schmelze:** plausibel, → Arbeitshypothese
- **Edelstahl-Produktion:**  
**Stratifikation:** 1. Schmelze, 2. Schlacke, 3. Abgase  
Prozente der Partitionierung:

Element	Schmelze [%]	Schlacke [%]	Abgase [%]
Tc	10-100	0-10	0-100
Co	20-100	0-1	0-80
Ba, Y, Zr Ra, Ac, Th, Pa, U Np, Pu, Am, Cu	0-1	95-100	0-5

Cheng et al. (2000) u. Nieves et al. (1995), NCRP Report No. 141

- **"Hot-Spots":** unwahrscheinlich, aber nicht ausgeschlossen

# Anthropogene Radionuklide: Konzentrationen im Edelstahl

## ● Messergebnisse:

Probe	D1	D2	D3	D4	D5	D6	D7
Exposition	158.5	243.2	384.8	443.6	241.8	521.3	217.56
Hersteller	IS	IB	IB	IB	IB	IB	IB
<sup>60</sup> Co	6.6 ± 1.1	14.4 ± 2.1	15.4 ± 2.2	14.8 ± 2.1	16.8 ± 2.5	16.8 ± 2.4	17.5 ± 2.6
Probe	G1	G2	G3	G4	G5	G6	G7
Exposition	174.9	1072.4	178.9	195.6	510.1	294.1	331.3
Hersteller	IB	IB	U	A	A	IB	A
<sup>60</sup> Co	45.5 ± 2.1	14.0 ± 0.1	13.8 ± 0.7	20 ± 1	18.3 ± 0.7	13 ± 0.6	42.1 ± 1.9
<sup>137</sup> Cs	0.77 ± 0.43	< 0.16	< 0.26	< 0.36	< 0.1	< 0.39	< 0.6

- **<sup>137</sup>C:** ~1 mBq/kg und darunter
- **<sup>60</sup>Co:** (6,6-45,5) mBq/kg! Mittel: 19 mBq/kg (13 Proben)  
 ⇔ ähnlich zu 13 mBq/kg (10 Proben) von Köhler et al.
  - **Ursache:** u.a. durch Recycling von Edelstahlschrott
  - **<sup>60</sup>Co-Untergrund:** **unproblem.**, da kurzreichweitig in LAr



# Kosmogene Radionuklide: Konzentrationen im Edelstahl

## ● Messergebnisse: (nur für GeMPI-Proben)

Probe	G1	G2	G3	G4	G5	G6	G7
Exposition	174.9	1072.4	178.9	195.6	510.1	294.1	331.3
Hersteller	IB	IB	U	A	A	IB	A
<sup>7</sup> Be	< 3.9	< 3.0	< 5.7	9.6 ± 2.9	4.8 ± 1.7	13.6 ± 2.5	< 5.9
<sup>54</sup> Mn	1.3 ± 0.4	1.5 ± 0.1	0.92 ± 0.24	2.0 ± 0.3	1.7 ± 0.2	1.4 ± 0.2	1.6 ± 0.3
<sup>58</sup> Co	0.67 ± 0.34	0.99 ± 0.12	0.56 ± 0.23	0.71 ± 0.26	0.69 ± 0.16	0.59 ± 0.20	0.54 ± 0.27
<sup>56</sup> Co	< 0.32	0.17 ± 0.06	< 0.62	< 0.71	0.28 ± 0.10	< 0.42	< 0.6
<sup>46</sup> Sc	< 0.35	0.24 ± 0.06	< 0.54	< 0.67	0.47 ± 0.14	< 0.31	0.61 ± 0.26
<sup>48</sup> V	0.30 ± 0.11	0.36 ± 0.07	0.27 ± 0.11	0.31 ± 0.13	0.22 ± 0.09	0.40 ± 0.12	0.39 ± 0.13

- <sup>54</sup>Mn, <sup>58</sup>Co, <sup>56</sup>Co, <sup>46</sup>Va, <sup>48</sup>V: ~1 mBq/kg und darunter
- <sup>7</sup>Be: 4 Proben: < 6 mBq/kg, bei 3 Proben: (6-35),mBq/kg
  - **Ursache** für erhöhte Konzentration: unbekannt
  - <sup>7</sup>Be-Untergrund: **unproblem.**, da kurzlebig ( $\tau_{1/2}=53,2$  d) u. kurzreichweitig in LAr

## Zusammenfassung

### Radionuklid-Konzentrationen im GERDA-Edelstahl

- 1 U, Th, K:  $\sim 1$  mBq/kg und darunter  
 $\Rightarrow$  mind. 1 Größenordnung besser als bisheriges Material!
- 2 Kosmogene und anthropogene Radionuklide: ähnlich geringe Konzentrationen; Ausnahme:  $^{60}\text{Co}$ :  $\sim 19$  mBq/kg

### Störung des sekulären Gleichgewichts

- 1 Erstmalige Beobachtung bei Edelstahl
- 2 Problem für ICPMS  $\Rightarrow$   $\gamma$ -Spektroskopie direkteste Methode!

### Weitere Details in:

D. Budjáš et al., "Measurements of extremely low radioactivity levels in stainless steel for GERDA", Paper in Vorbereitung, NIM (2008)