

Gammapektroskopie-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- γ -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

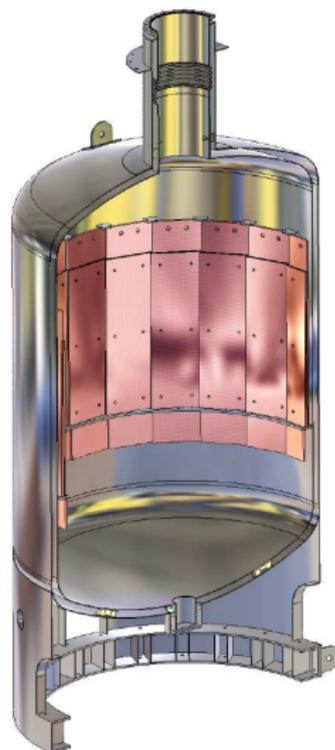
→ bis zu **100 t** Flüssig-Argon

- **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

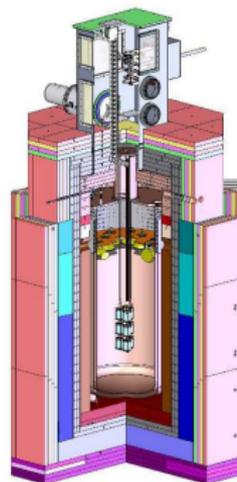
- **LArGe**

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

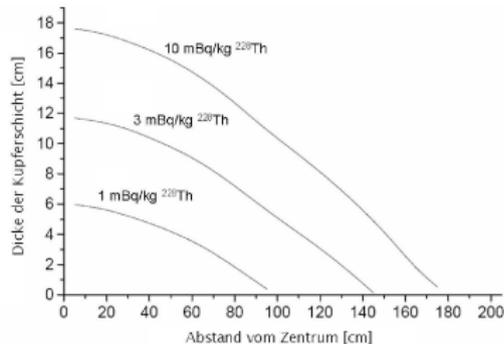
- Bisher gemessene Konzentrationen**

Material	K (^{228}Th)	K (^{226}Ra)	K (^{40}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**

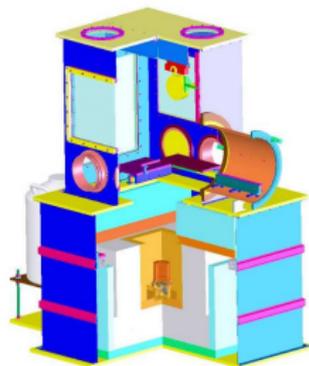
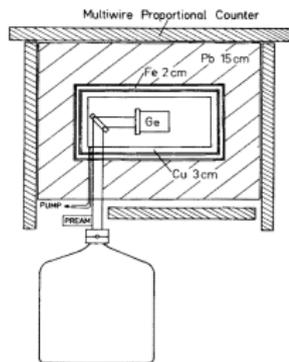
Standard: DIN EN 10088								
Material: X6CrNiMoTi17-12-2								
Material number: 1.4571								
C	Si	Mn	P_{MAX}	S	Cr	Mo	Ni	Ti
≤ 0.08	≤ 1.00	≤ 2.00	0.045	≤ 0.015	16.50 -18.50	2.00 -2.50	10.50 -13.50	min: (5 x C) max: 0.70

- **Maße von ES-Blechen (typ.):** (LxBxH) [cm³]:
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**

γ -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: ~ 3500 m w.e.

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



Durchführung der γ -Spektroskopie-Messungen

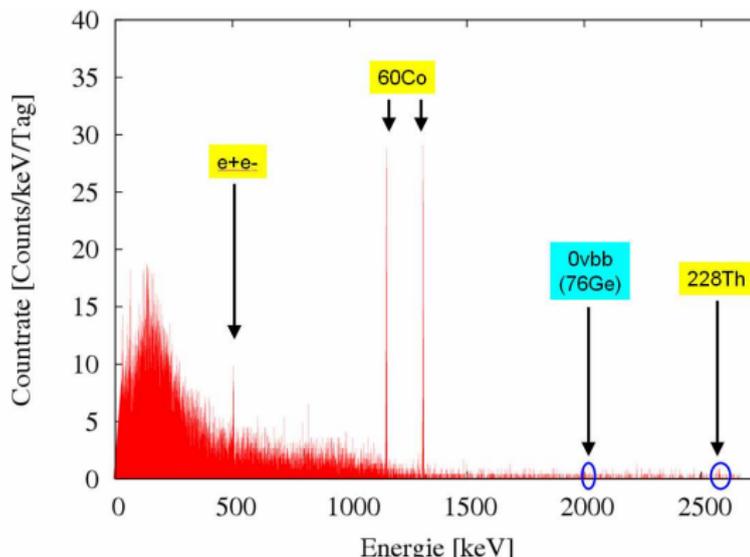
- **Proben-Präparierung:** 1,5 h/Probe,
Kombination aus: Biolog.-, Laugen-, Ultraschallbad
- **Proben-Insertion:** Blech, Drahtrolle, Schweißstifte



- **Messung (typ.):**
Wartezeit: (1-3) d (Zerfall von ^{222}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
²²⁸ Ra	< 3.0	< 3.5	< 3.6	< 3.8	< 1.8	< 1.4	< 4.2
²²⁸ Th	3.4 ± 1.0	< 1.7	< 1.9	< 1.8	< 1.1	< 0.8	< 1.0
²²⁶ Ra	< 2.6	< 2.0	< 0.9	< 1.6	< 1.5	< 0.6	< 1.4
^{234m} Pa	< 155	< 100	< 84	< 53	< 76	< 38	< 152
⁴⁰ 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
²²⁸ Ra	< 2.6	< 0.86	< 1.0	< 3.0	1.0 ± 0.5	< 1.1	1.9 ± 1.0
²²⁸ Th	< 0.20	< 0.11	< 0.41	5.1 ± 0.5	1.5 ± 0.2	< 0.27	5.2 ± 0.5
²²⁶ Ra	< 1.3	< 0.24	< 0.74	< 1.3	1.0 ± 0.6	< 0.35	3.9 ± 1.6
^{234m} Pa	< 94	< 12	< 45	< 41	54 ± 16	< 38	< 56
²³⁵ U	< 2.6	< 0.63	< 1.5	< 1.9	2.5 ± 1.5	< 1.5	< 3.9
⁴⁰ 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=Ilsenburg, A=Acroni, U=Ugine&Alz

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

Konzentrationen an natürlichen Radionukliden (2)

- **Konzentrationen an ^{228}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}Ra : $< 3,8$ mBq/kg,
 - ^{226}Ra : $< 5,5$ mBq/kg, ^{40}K : $< 7,2$ mBq/kg
- **Weitere Testproben u. LArGe-Proben**
 - ähnliche Messergebnisse
- ^{228}Th -Vergleich: GERDA \Leftrightarrow Borexino

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

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

→ GERDA: ~ 1 Größenordnung besser

Konzentrationen an natürlichen Radionukliden (2)

- **Konzentrationen an ^{228}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}Ra : $< 3,8$ mBq/kg,
 - ^{226}Ra : $< 5,5$ mBq/kg, ^{40}K : $< 7,2$ mBq/kg
- **Weitere Testproben u. LArGe-Proben**
→ ähnliche Messergebnisse
- **^{228}Th -Vergleich: GERDA \Leftrightarrow Borexino**

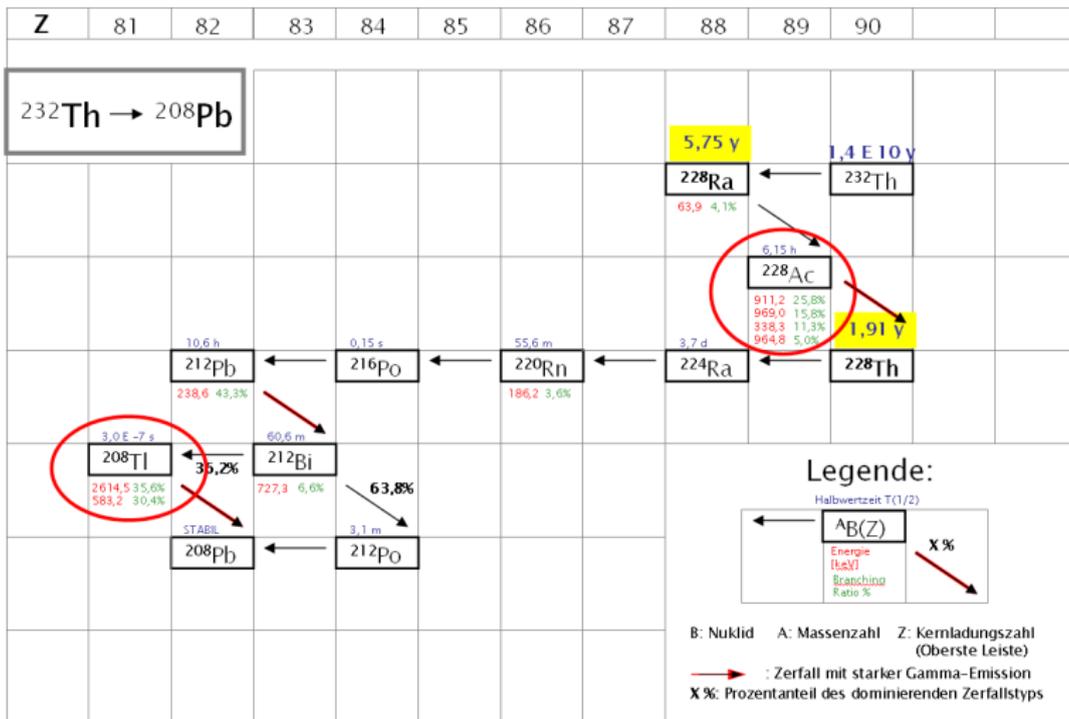
Probe (BX)	Nr 1	Nr 2	Nr 3	Nr 4
^{228}Th	$4,6 \pm 0,9$	$6,2 \pm 1,2$	17 ± 3	5 ± 1
^{226}Ra	$11,4 \pm 1,1$	$6,5 \pm 1,6$	$3,8 \pm 2,6$	5 ± 2
^{40}K	< 14	< 13	< 19	4 ± 2



→ GERDA: ~ 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
^{228}Ra	< 3.0	1.0 ± 0.5	1.9 ± 1.0
^{228}Th	5.1 ± 0.5	1.5 ± 0.2	5.2 ± 0.5
^{226}Ra	< 1.3	1.0 ± 0.6	3.9 ± 1.6
^{234m}Pa	< 41	54 ± 16	< 56

- **Gleichgewichtsherstellung:** für ^{228}Th : erst nach 30 Jahren
- **Ursachen:** Edelstahltyp ausgeschlossen
→ Schmelzverfahren(?), Ausgangsmaterial(?),...
- **Problematisch für Massenspektroskopie:** ICPMS sieht nur Mutternuklide! \Leftrightarrow 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
⁶⁰ 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
⁶⁰ 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
¹³⁷ Cs	0.77 ± 0.43	< 0.16	< 0.26	< 0.36	< 0.1	< 0.39	< 0.6

- **¹³⁷C:** ~1 mBq/kg und darunter
- **⁶⁰Co:** (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
 - **⁶⁰Co-Untergrund:** **unproblem.**, da kurzreichweitig in LAr

Kosmogene Radionuklide: Konzentrationen im Edelstahl

● Messergebnisse: (nur für GeMPI-Proben)

Probe Exposition Hersteller	G1	G2	G3	G4	G5	G6	G7
	174.9	1072.4	178.9	195.6	510.1	294.1	331.3
	IB	IB	U	A	A	IB	A
⁷ Be	< 3.9	< 3.0	< 5.7	9.6 ± 2.9	4.8 ± 1.7	13.6 ± 2.5	< 5.9
⁵⁴ 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
⁵⁸ 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
⁵⁶ Co	< 0.32	0.17 ± 0.06	< 0.62	< 0.71	0.28 ± 0.10	< 0.42	< 0.6
⁴⁶ Sc	< 0.35	0.24 ± 0.06	< 0.54	< 0.67	0.47 ± 0.14	< 0.31	0.61 ± 0.26
⁴⁸ 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

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

Zusammenfassung

Radionuklid-Konzentrationen im GERDA-Edelstahl

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

Störung des sekulären Gleichgewichts

- 1 Erstmalige Beobachtung bei Edelstahl
- 2 Problem für ICPMS \Rightarrow γ -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)