

***Contaminación radiactiva de materiales:  
ideas generales  
una situación real  
su medida con detectores de Ge***

L. Labarga, Dept. Física Teórica UAM, 20130130

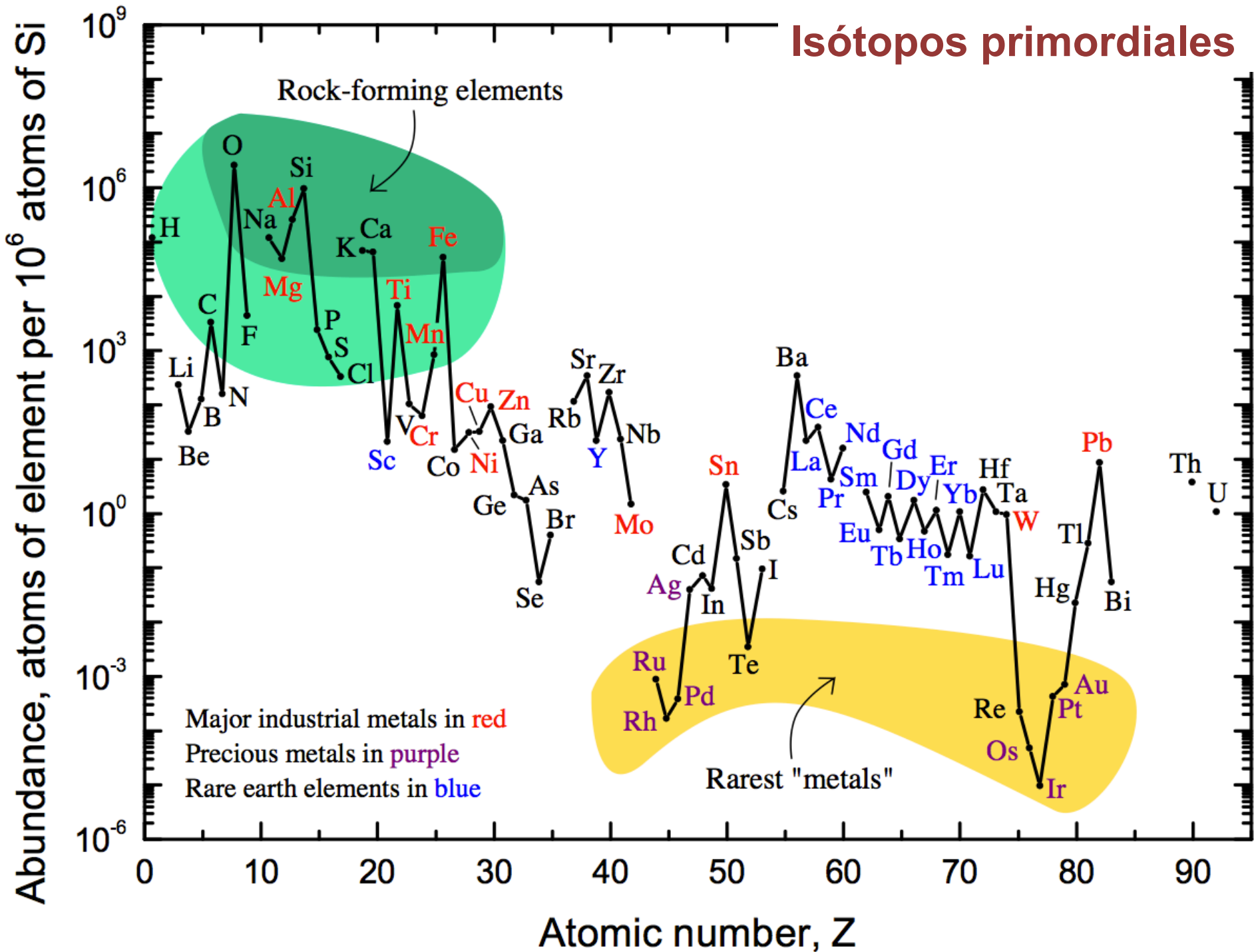
## Isótopos primordiales

Se suelen denominar isótopos primordiales a aquellos isótopos que se encuentran en la Tierra que han existido en su forma actual desde antes de la formación de la Tierra.

Son residuos de explosiones de Supernovas que ocurrieron antes de la formación del Sistema Solar, con suficiente vida media como para sobrevivir en la *nebulosa solar* primordial y la *acreción planetaria* hasta el presente.

Se conocen 289 isótopos primordiales. De ellos 254 son estables (todos los isótopos estables conocidos). Los 35 inestables tienen vidas medias suficientemente largas para sobrevivir desde la formación de la Tierra.

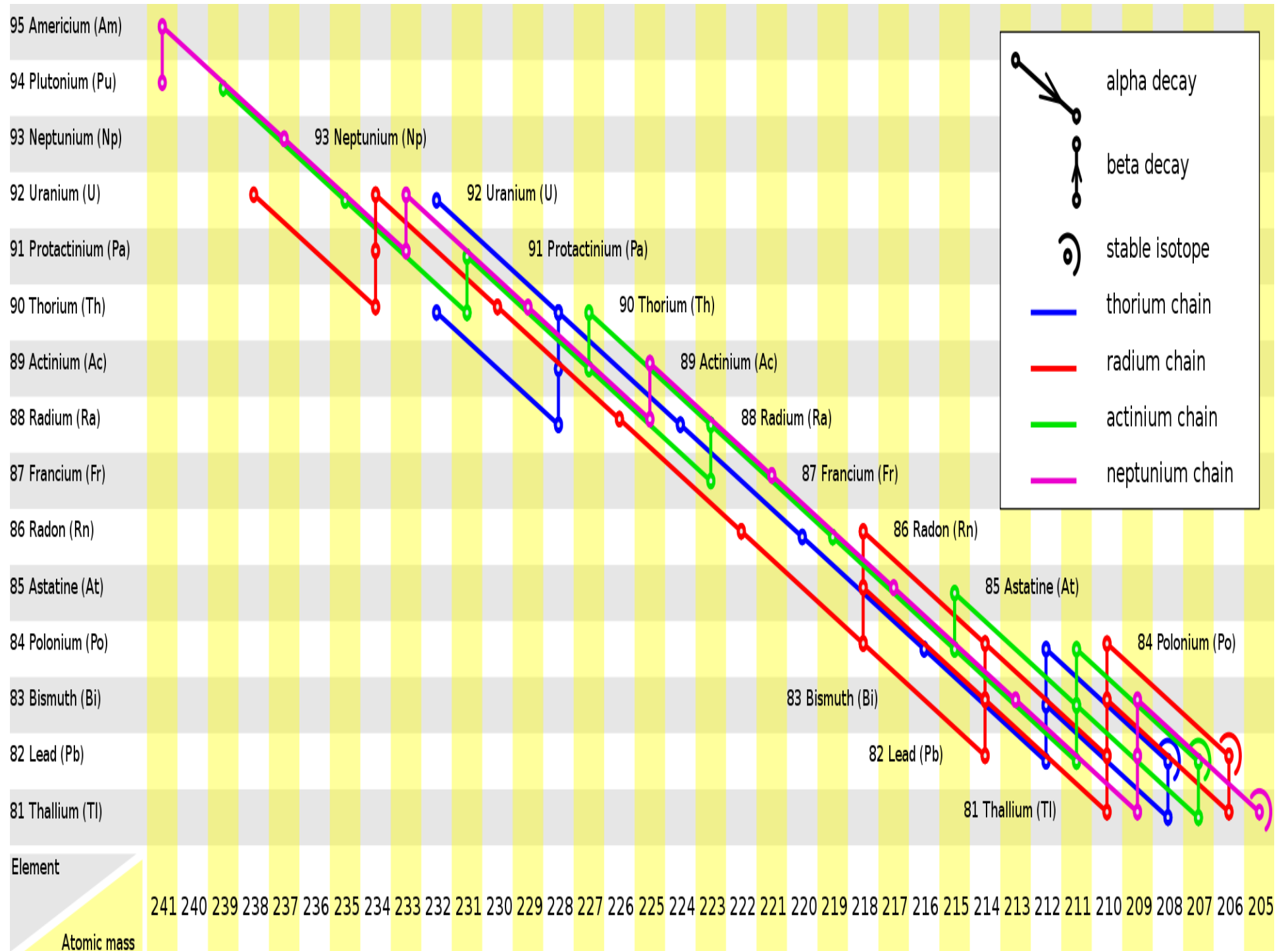
Los 35 radio isótopos corresponden a 28 elementos distintos; 3 de ellos en dos isótopos [ $^{113}\text{Cd}$ ,  $^{116}\text{Cd}$ ], [ $^{144}\text{Nd}$ ,  $^{150}\text{Nd}$ ], [ $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ] y dos en 3 isótopos primordiales [ $^{123}\text{Te}$ ,  $^{128}\text{Te}$ ,  $^{130}\text{Te}$ ] y [ $^{146}\text{Sm}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{148}\text{Sm}$ ]



## isótopos presentes en la Tierra no primordiales

Algunos isótopos inestables presentes de forma natural en la Tierra no son primordiales sino que están siendo producidos de forma constante:

- por radiación cósmica, p. ej. los isótopos cosmogénicos  $^{14}\text{C}$  ó  $^3\text{H}$
- por transmutación geo-nuclear, p. ej. el  $^{239}\text{Pu}$  a partir de la captura de un neutrón por el  $^{238}\text{U}$  y subsecuentes desintegraciones  $\beta$
- por creación en las cadenas radioactivas de los isótopos primordiales  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{232}\text{Th}$ : Radon, Polonio, Radio etc.



Aquí nos ocupa que los productos de desintegración de estos núcleos radioactivos puedan enmascarar / confundir / suplantar / "ensuciar" los estados finales que estamos investigando

Veamos primero con cierto detalle:

## **Modos de desintegración**

**Tipos de radiación más relevantes**

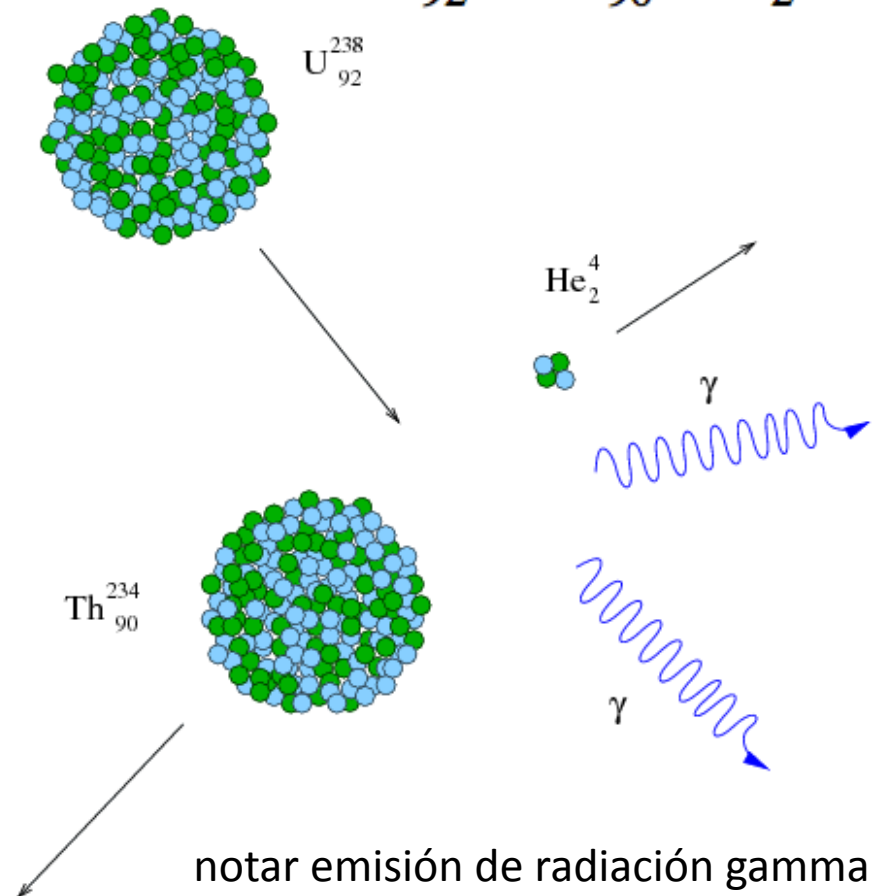
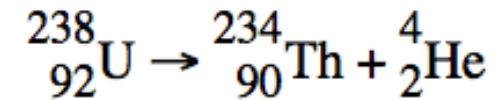
# Desintegración $\alpha$

Gobernada por una relación de fuerzas entre las interacciones nuclear fuerte y electromagnética “en busca” de estabilidad nuclear

El núcleo atómico emite una partícula  $\alpha$  (núcleo de Helio) transformándose en un nuevo núcleo con masa atómica 4 unidades menor y número atómico 2 unidades menor

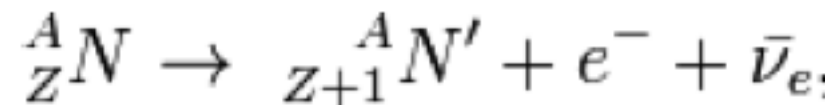
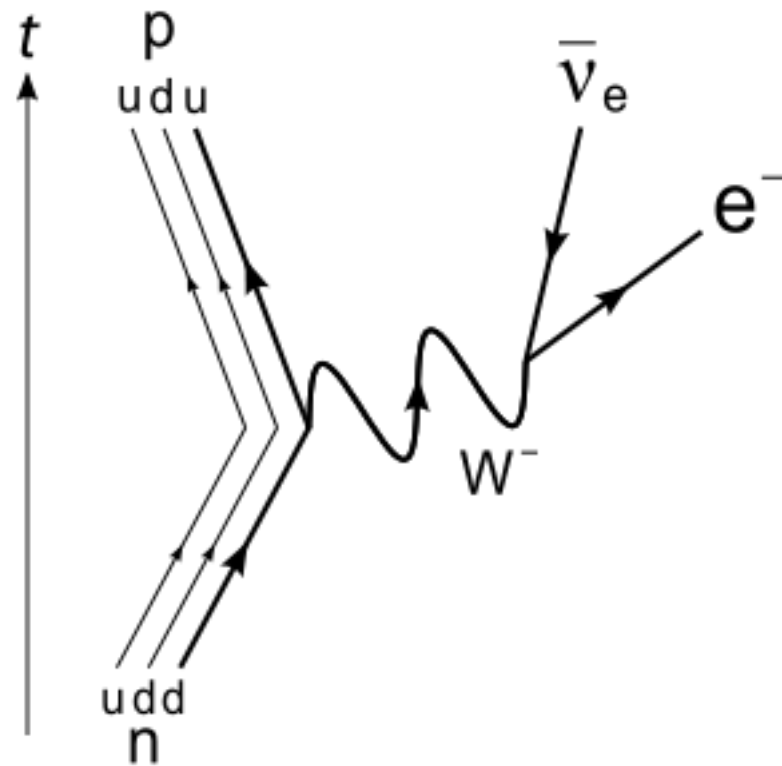
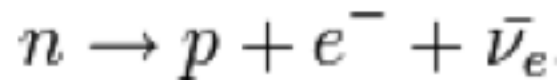
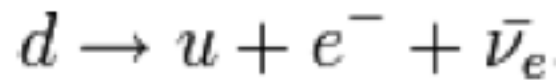
La desintegración en una partícula  $\alpha$  es debido a su pequeña masa y su enorme energía de ligadura

*Ejemplo importante:*



## Desintegración $\beta$

pura reacción básica  
de interacción débil

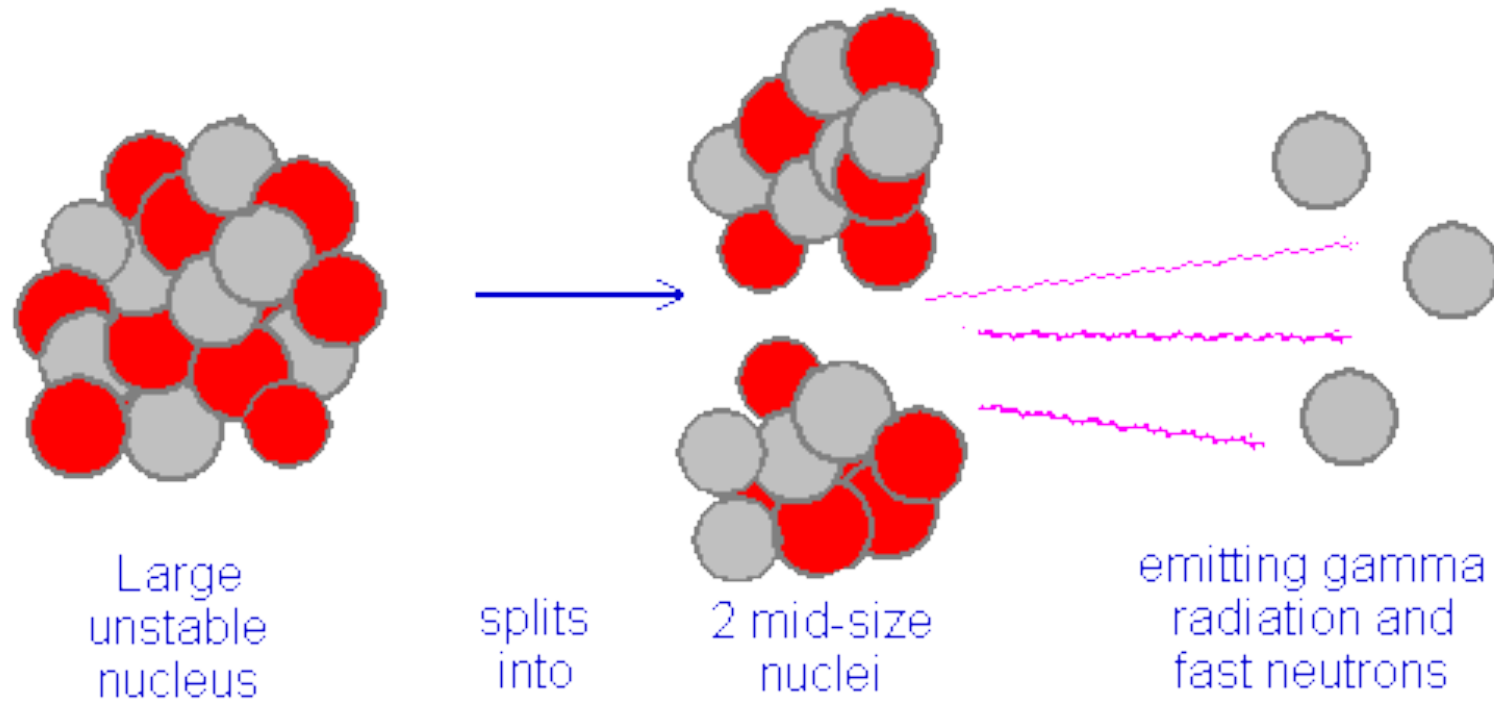


Proceso fundamental para la estabilidad de la materia:  
permite al núcleo el alcanzar su razón óptima de protones  
y neutrones



## Fisión espontánea

Principalmente  $^{238}\text{U}$  (también aunque despreciable  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ...)

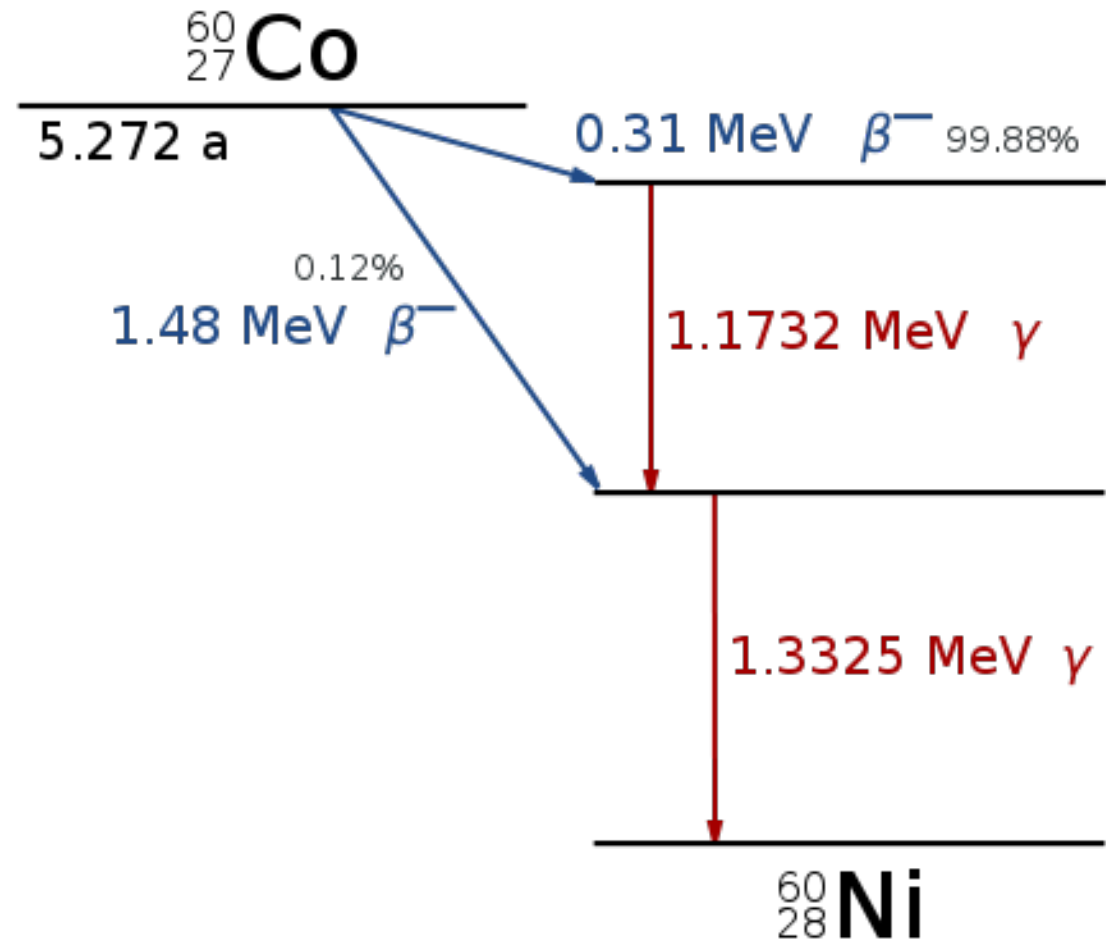
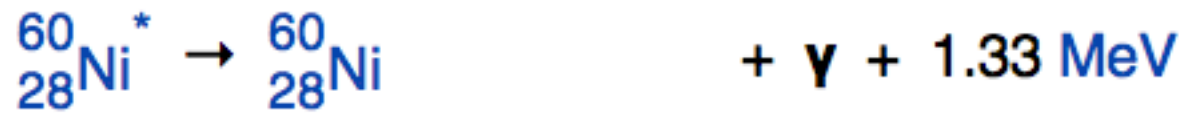
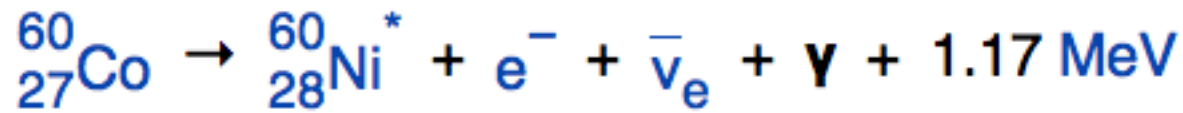


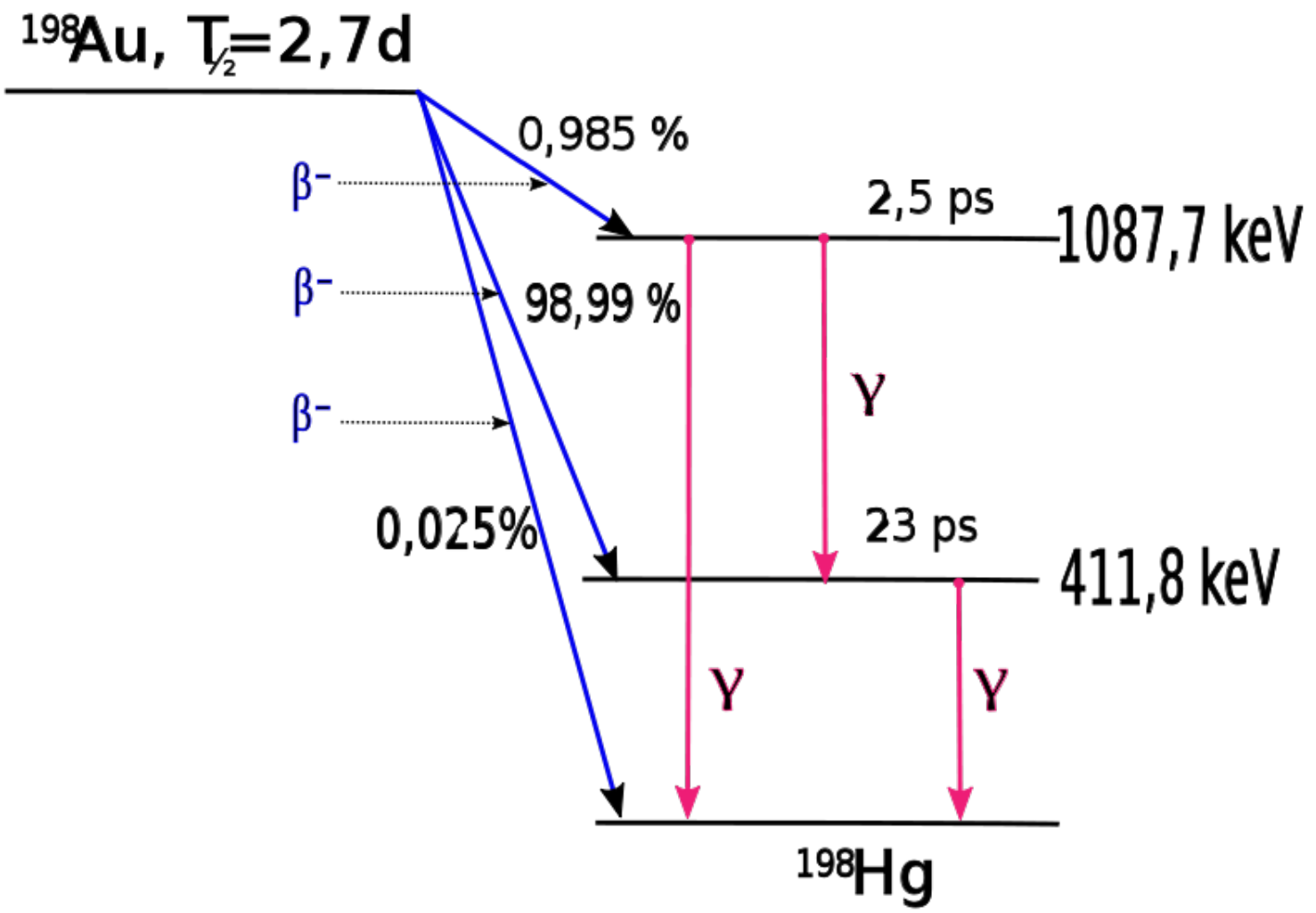
## Tipos de radiación más relevantes

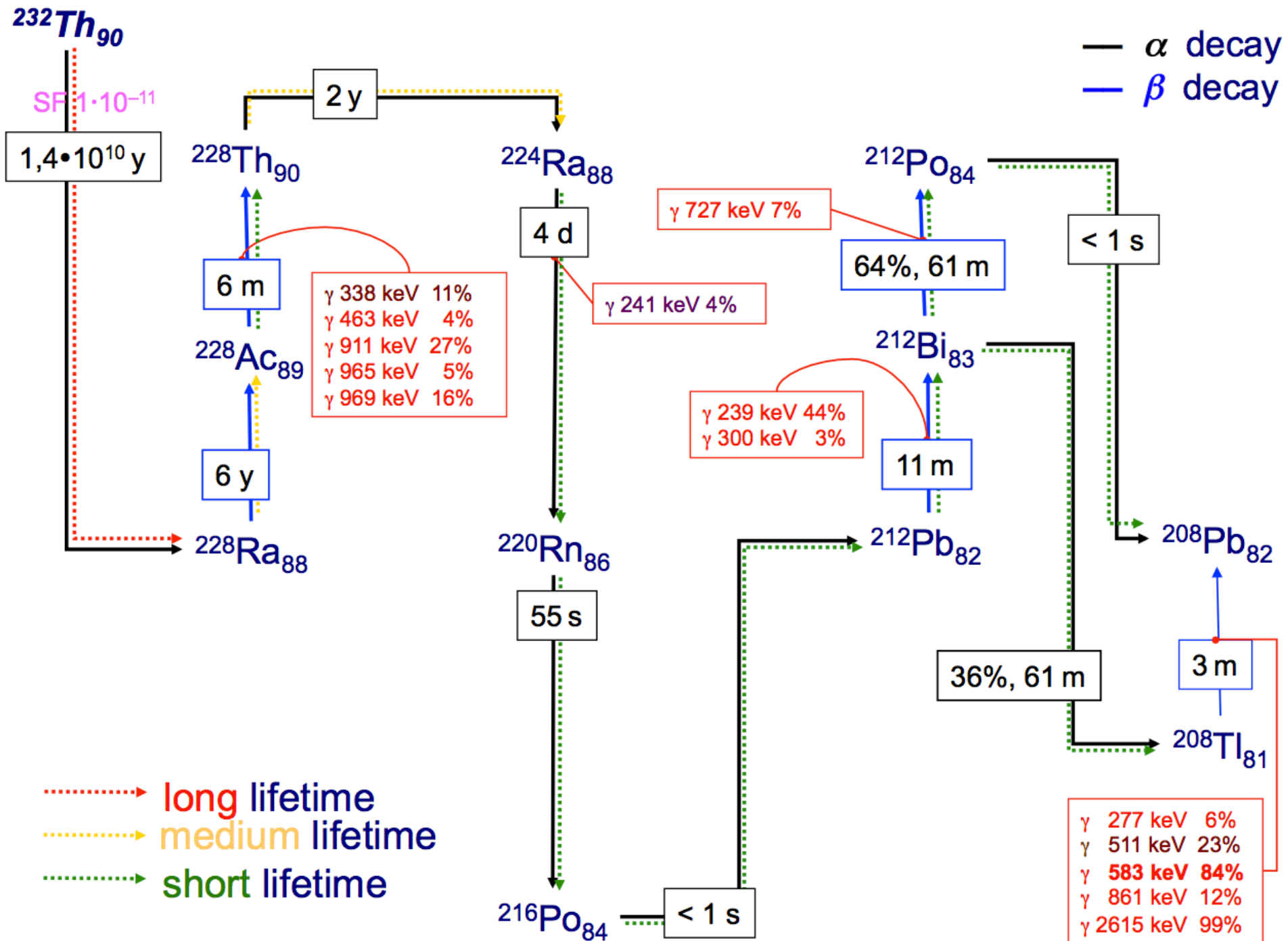
→ partículas  $\alpha$  (núcleos de Helio)

→ partículas  $\beta$  (electrones)

→ radiación  $\gamma$  (fotones)



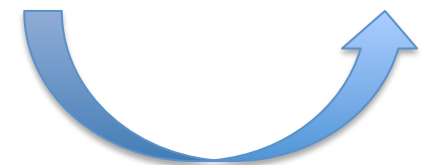




**¿ ... y que ? ¿ por que preocupa todo esto ?**

porque los productos de desintegración de estos núcleos radioactivos pueden enmascarar / confundir / suplantar / "ensuciar" los estados finales que estamos investigando

**en concreto y como ejemplo: ¿ por que me (LL) preocupa todo esto ?**

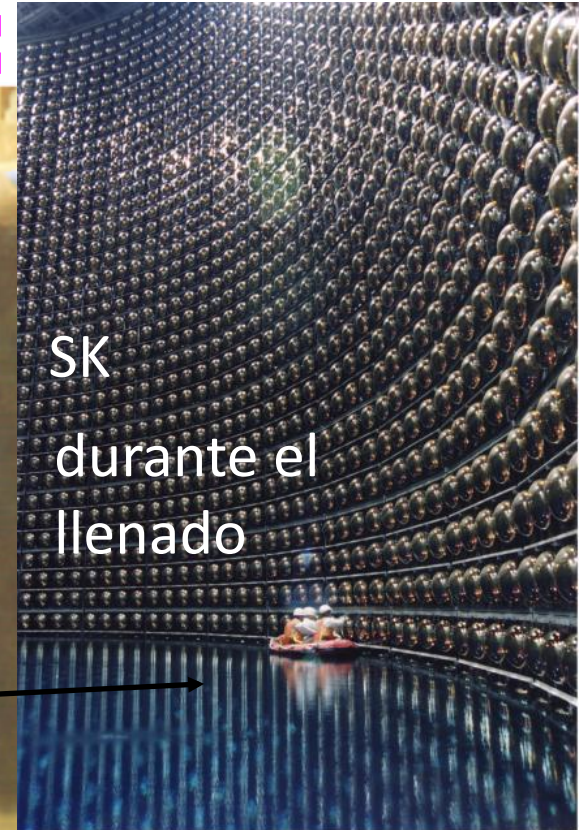
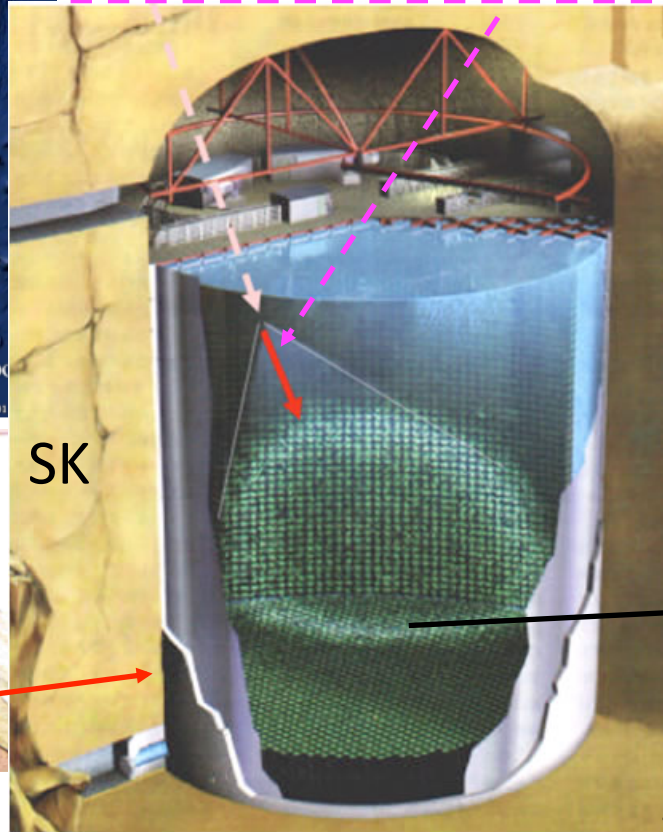
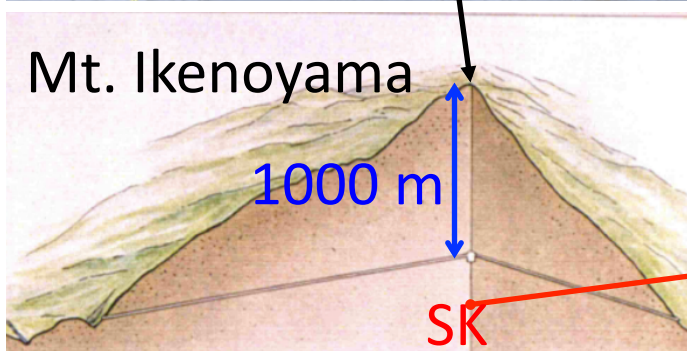
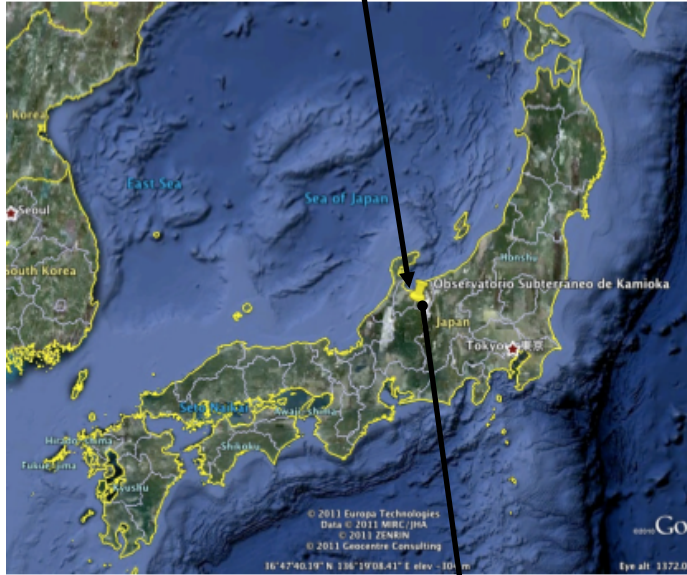


*primero una introducción que ponga el problema en contexto*

# Super-Kamiokande (SK) paradigma de detector agua-Cherenkov

Observatorio de Kamioka  
(Prefectura Gifu, Japón)

SK mide la radiación Cherenkov generada por las partículas con carga y alta energía



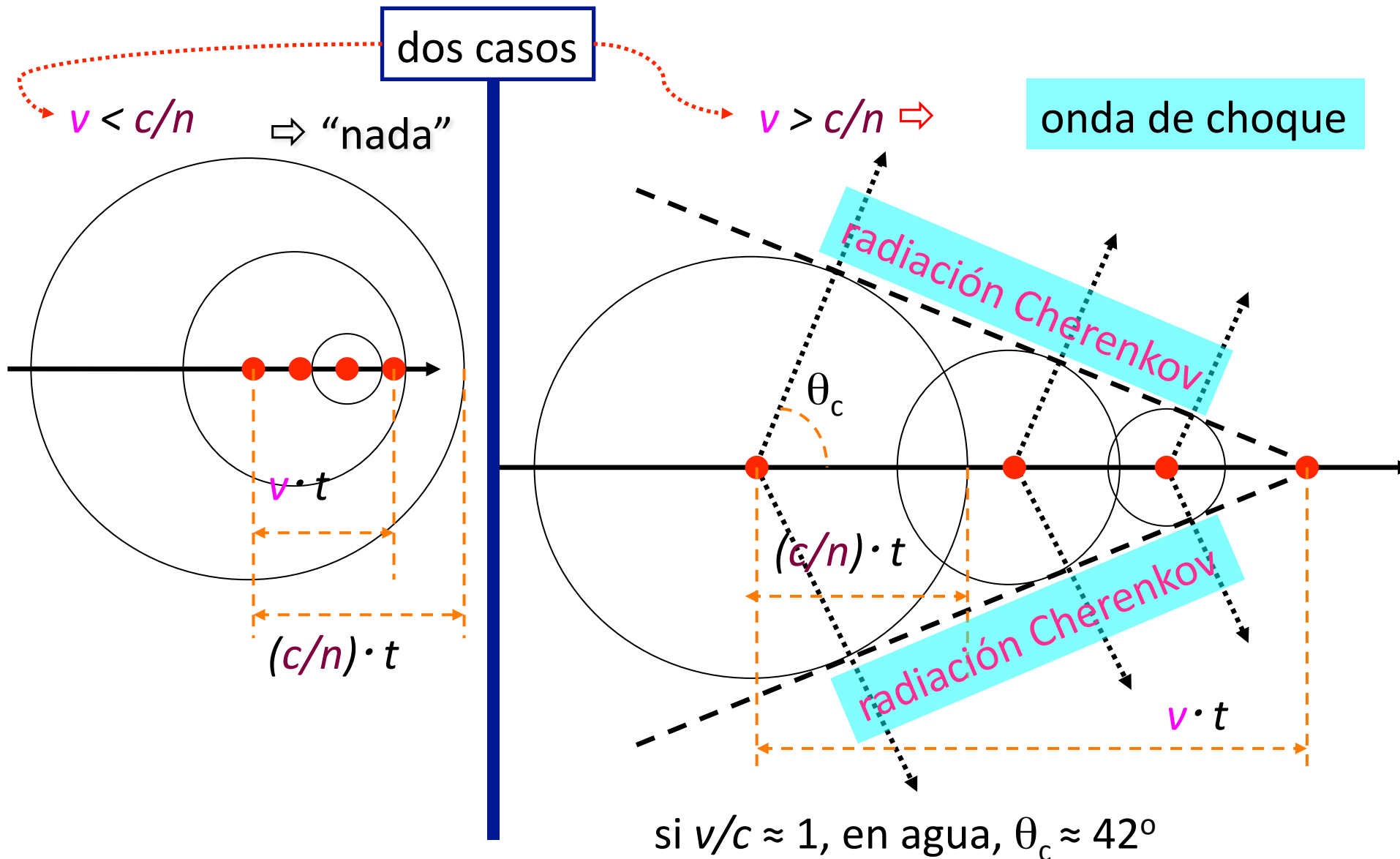
1000 m de tierra para apantallar muones de rayos cósmicos

50.000 m<sup>3</sup> de agua  
tanque: 40m Ø x 40m H

# fotomultiplicadores  
11148 de 50 cm Ø  
1885 de 20 cm Ø

# Básico de la radiación Cherenkov

una **partícula cargada** moviéndose en un medio con velocidad  $v$  genera un **campo EM** que se propaga con velocidad  $c/n$

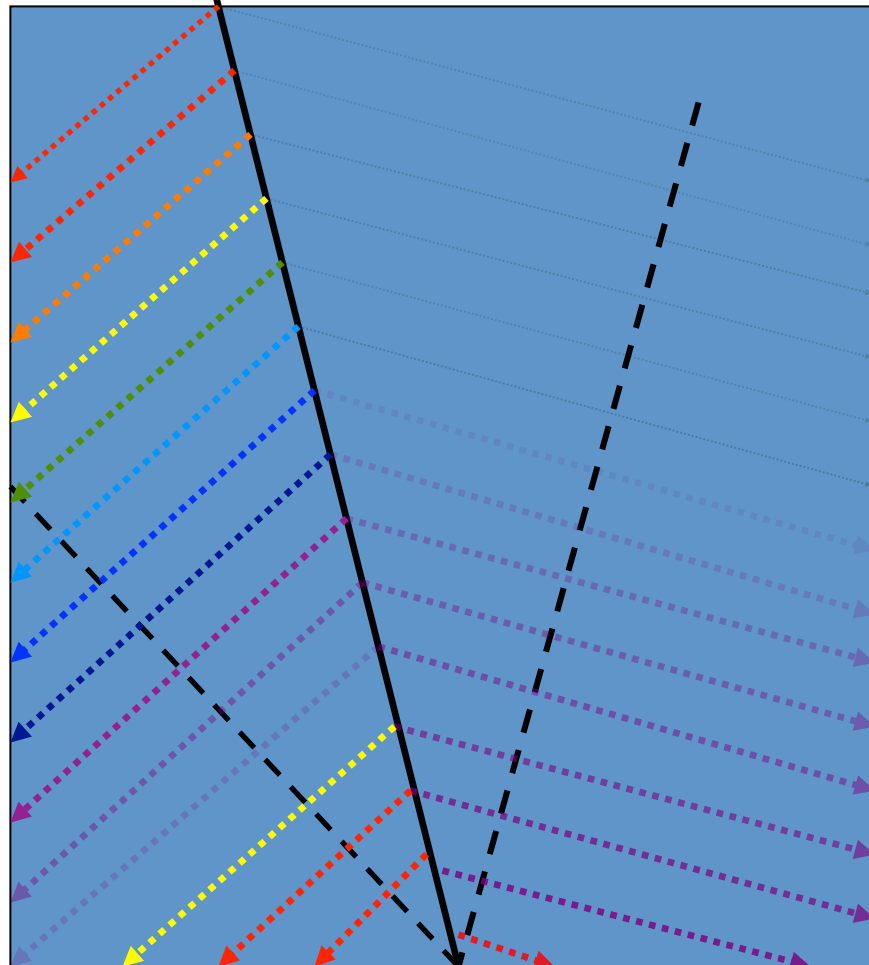




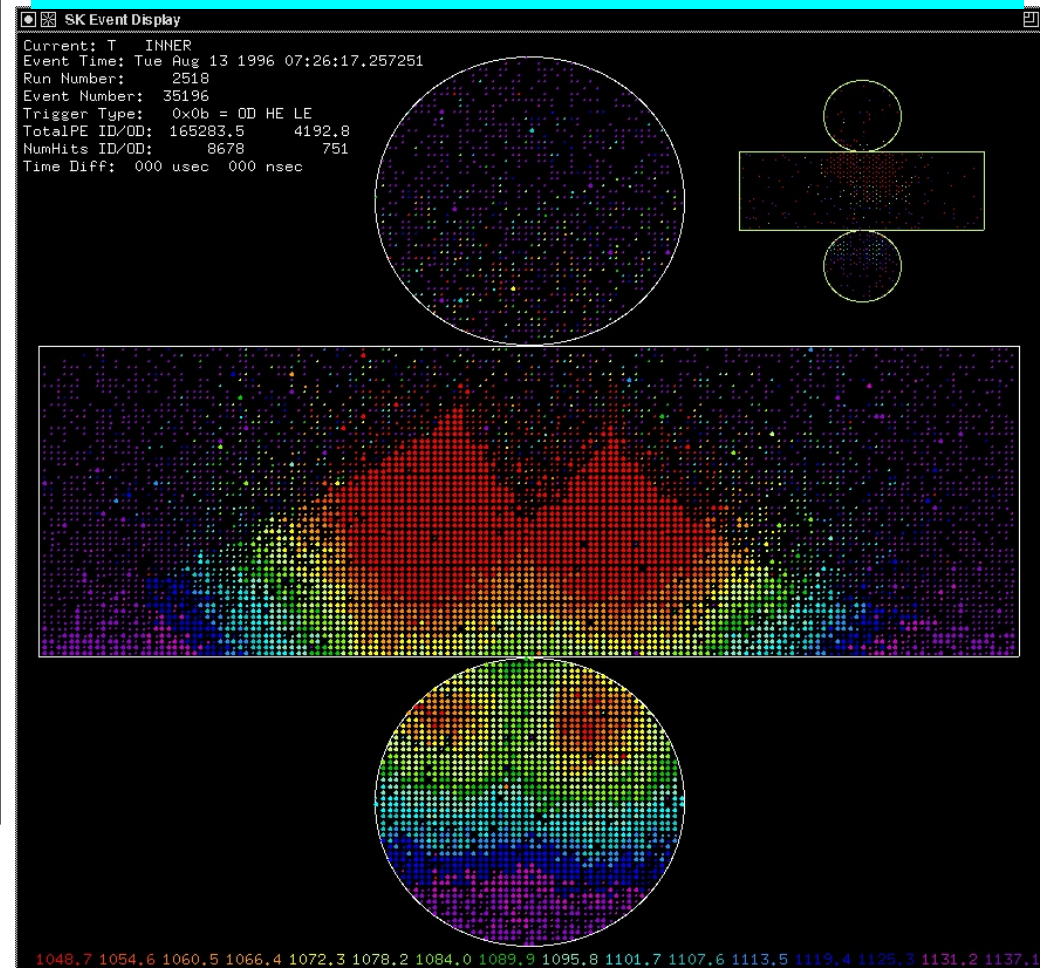
p.e.: la medida del tiempo que tarda la luz Cherenkov en llegar a los PMT's

rojo: corto  
púrpura: largo  
púrpura suave: muy largo

nos permite reconstruir la trayectoria de las partículas ...



suceso con 2 muones simultáneos;  
medida del tiempo



Super-Kamiokande is currently the most powerful scientific apparatus for  $p$ -decay and  $\nu$  physics

- ⇒ discovery of *Atmospheric- $\nu$*  oscillations
- ⇒ help solving *Solar- $\nu$*  problem
- ⇒ world's best limit on  $p$  lifetime
- ⇒ first long base  $\nu$  experiment (K2K), currently T2K is running
  
- ⇒ precise measurement of leptonic mixing matrix parameters
- ⇒ discovery of SN1987a  $\nu$  burst (Kamiokande)
- ⇒ world's best limit on relic Supernova  $\nu$ ,s

Origen de éstos detectores: búsqueda de la **desintegración del protón**

- en el Modelo Estándar, el protón es absolutamente estable
  - sin embargo, dados
    - la estructura físico-matemática del MS,
    - las aproximaciones teóricas realistas para su evolución,
    - el conocimiento actual sobre la creación y desarrollo del Universo ...
- ⇒ existe el “convencimiento” (intuición) de la no estabilidad del protón

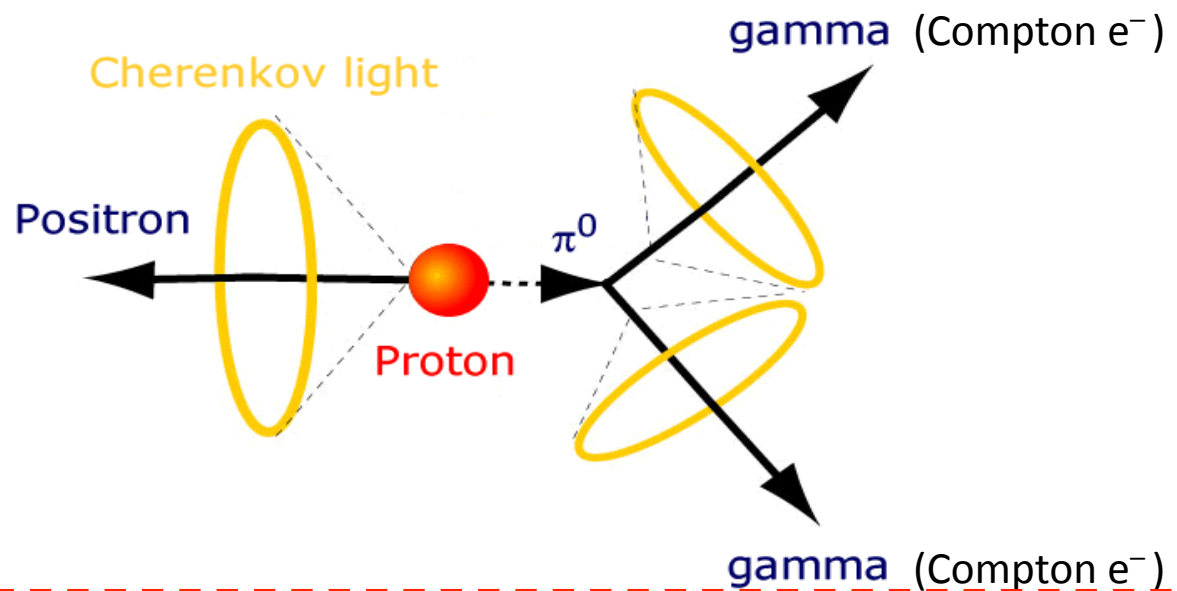
*La desintegración del protón es el concepto científico  
(y filosófico y religioso) más importante de la Humanidad*

y **SK** es el mejor detector para su búsqueda

p.e.:  $p \rightarrow e^+ \pi^0$

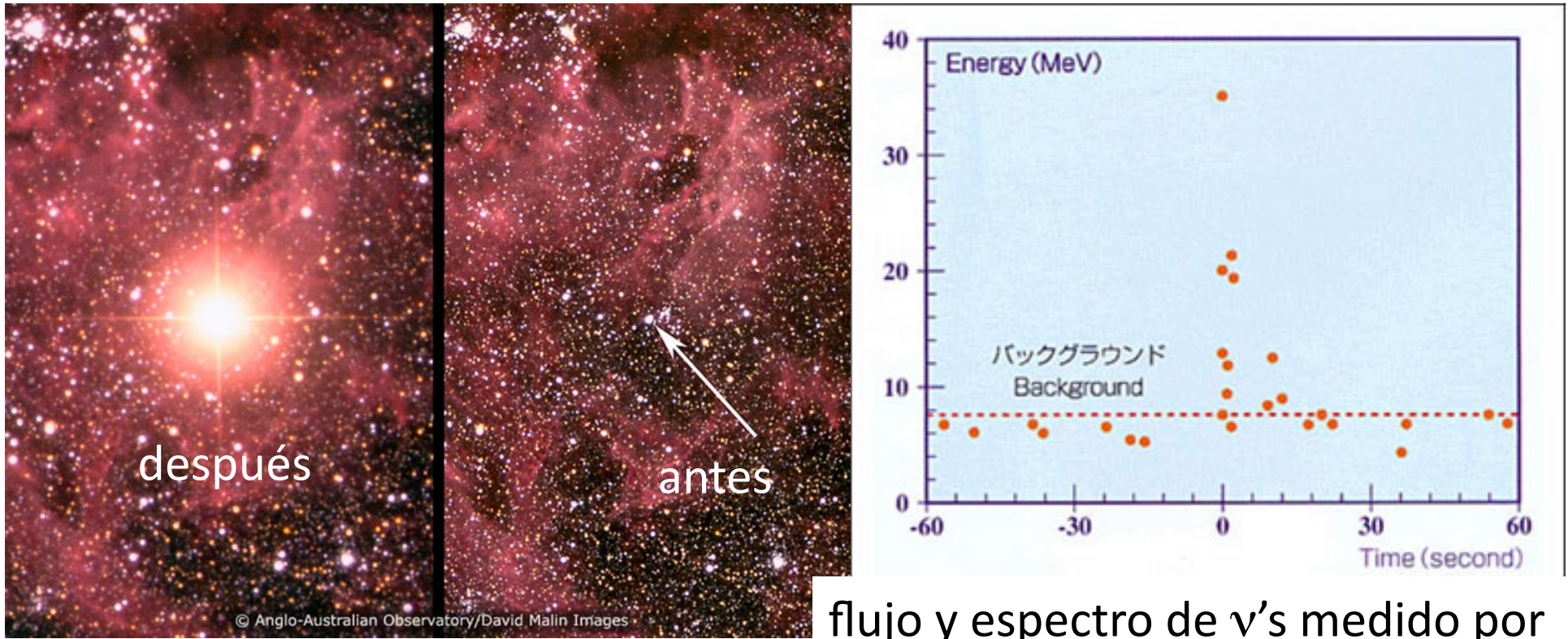
no se ha observado  
ningún candidato  
hasta ahora

⇒  $\tau_p > 8.2 \times 10^{33}$  años



pero la propia Naturaleza nos hizo descubrir que este tipo de detectores son extraordinarios *telescopios de neutrinos*

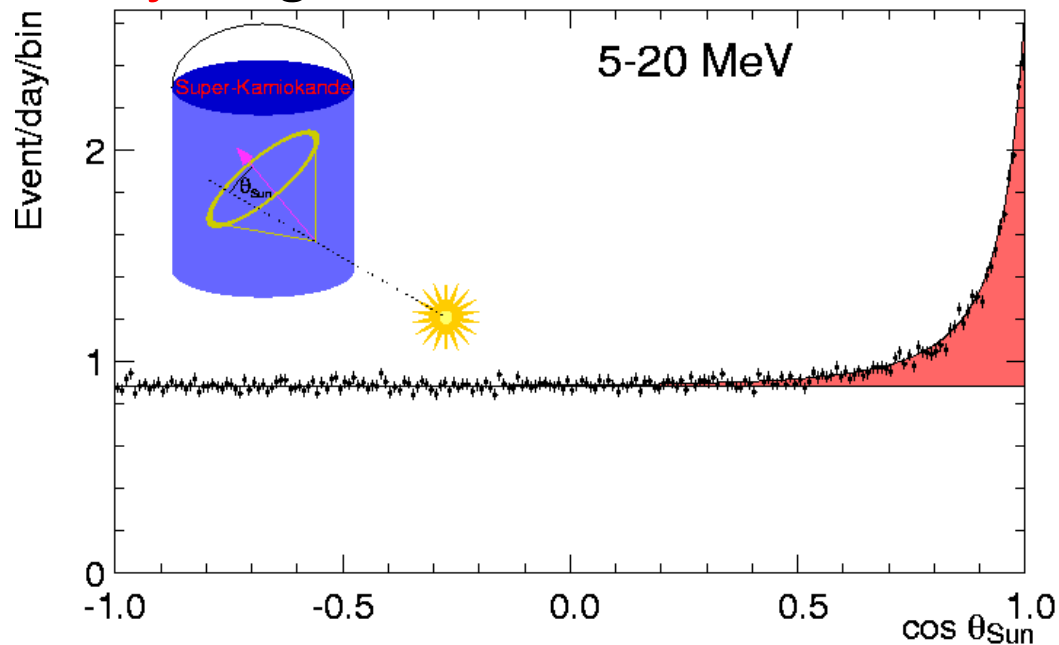
### explosión SuperNova **SN1987A**



flujo y espectro de  $\nu$ 's medido por Kamiokande (precursor de SK)

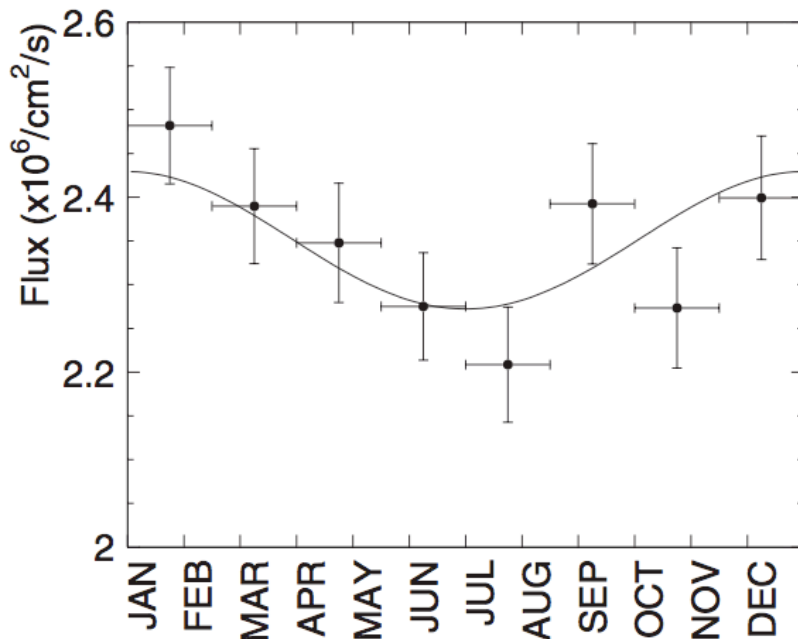
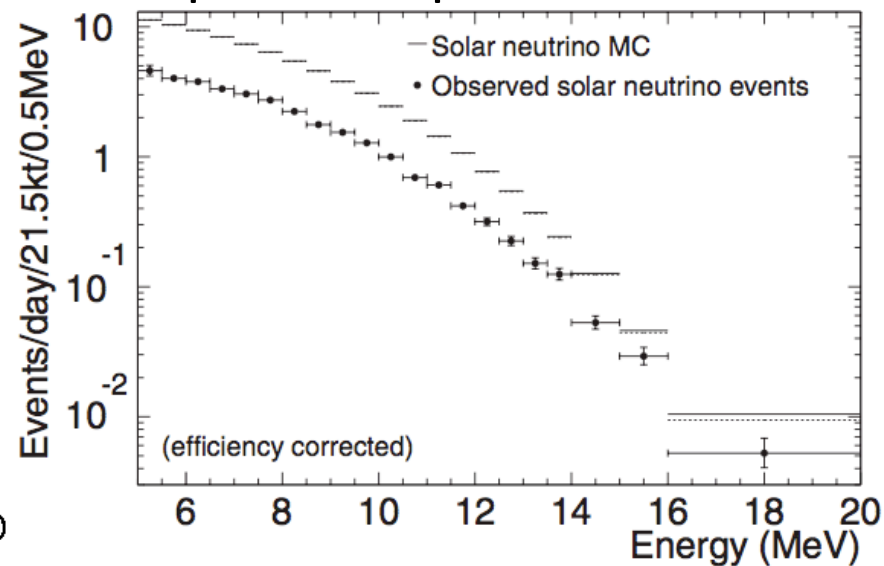
telescopios con los que, además de éste (Nobel 2002), se han hecho otros *descubrimientos fundamentales*

flujo angular de los  $\nu_e$  detectados:



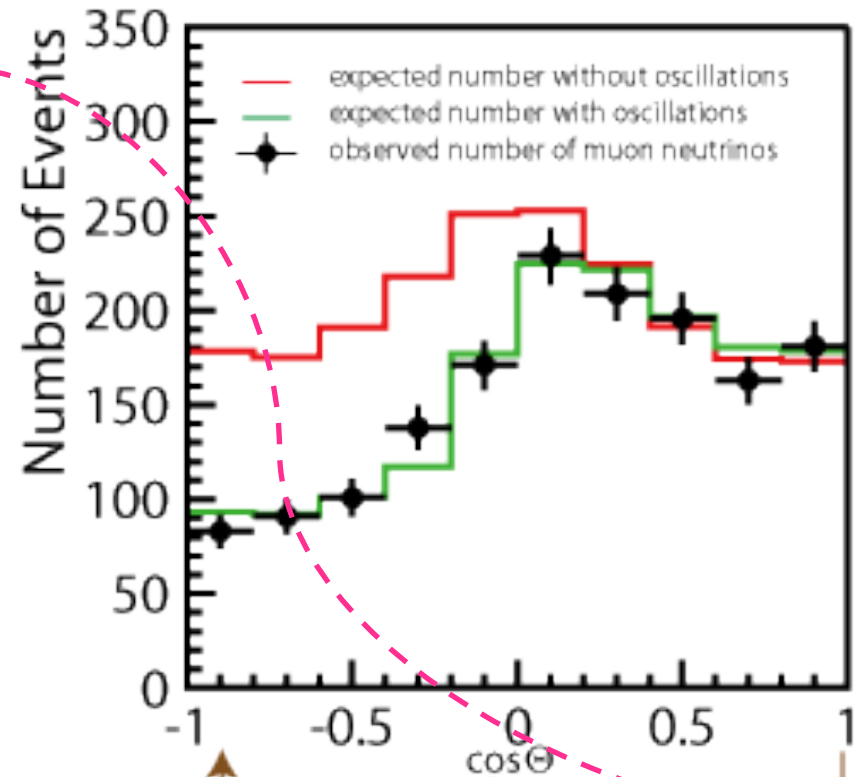
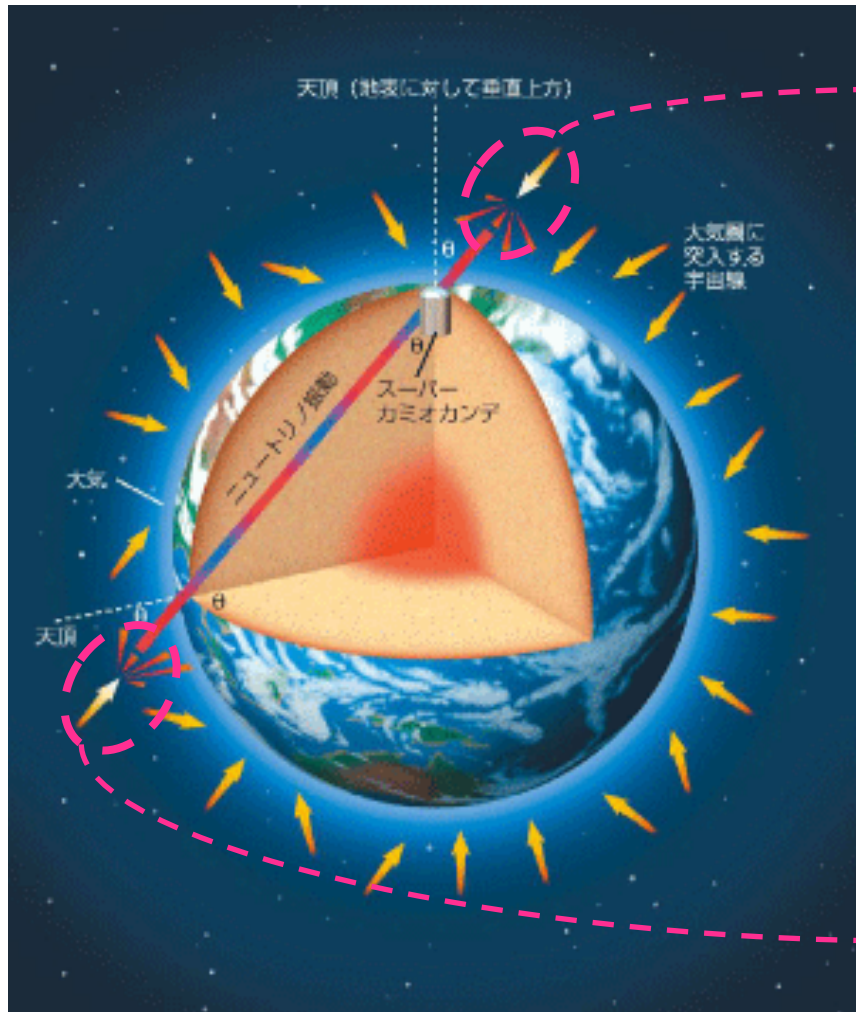
PHYSICAL REVIEW D 73, 112001 (2006)

pero es menor que el predicho por el MES



y está correlacionado con la excentricidad de la órbita terrestre: cuanto más viajan más déficit

flujo de  $\nu_\mu$  en función del ángulo de incidencia:



hacia arriba,  
viajan  $\sim 13000$  km

hacia abajo,  
viajan  $\sim 20$  km

también el flujo de  $\nu_\mu$  depende de la distancia de vuelo !

Solares, atmosféricos,  $\nu_e$ ,  $\nu_\mu$  producidos de forma totalmente distinta  
con flujos que cambian de forma similar con la distancia viajada

⇒ oscilaciones de sabor ⇒ ¡masa !

## Water Cherenkov detectors and the Gadolinium (Gd)

- SK success largely due to detection technique: Water Cherenkov

- Caveat: no  $n$  neutron tagging

- ⇒ no inverse  $\beta^-$  decay reaction (CCQE) measurement

- ⇒ no anti- $\nu$  tagging at all

- *marginal sensitivity to “relic” Supernova- $\nu$*

- *no sensitivity to reactor- $\nu$*

- *no “others” ...*

- Solution: dissolve 0.2% (by mass) Gd compound in SK water

*key:*

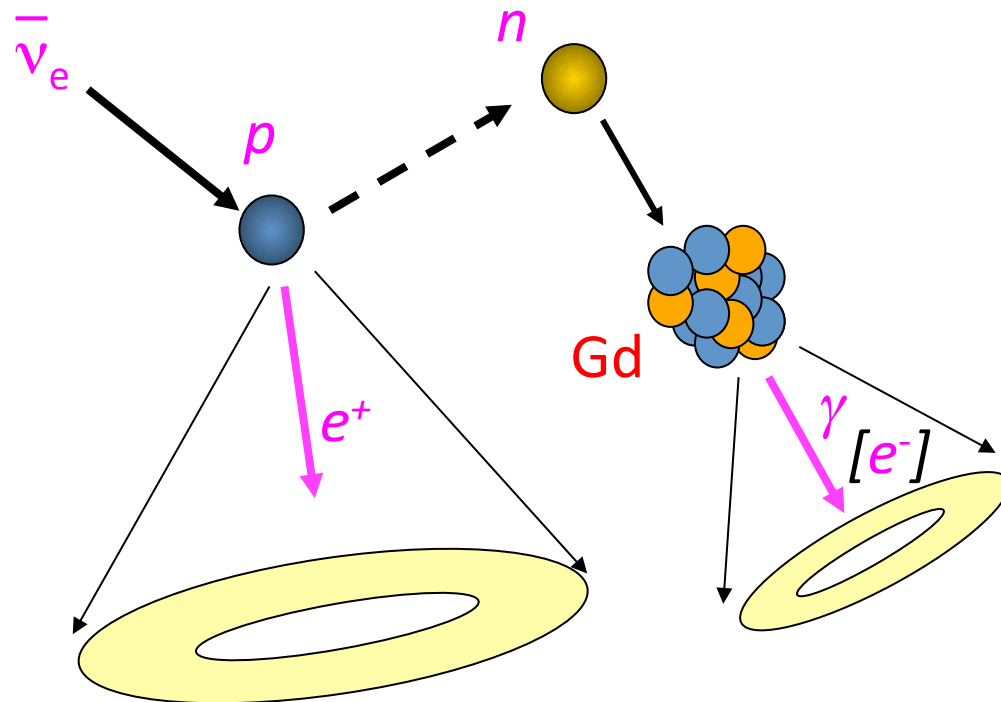
- Gd has a very large cross-section for  $n$  capture,

- in the process it emits a few  $\gamma$ ,s with total energy 8 meV

SK has setup a **very strong R&D program** to implement it

# neutron tagging in Gd-enriched Water-Cherenkov detectors

basic reaction is inverse  $\beta$  process



→  $e^+$  is detected,  $n$  wanders around for  $\sim 12\mu s$  until thermalises

→  $\sim 20\mu s$  [ $50cm$ ] until Gd-capture →  $8MeV$   $\gamma$ s

→ an  $e^-$  is Compton-scattered off the  $\gamma$  and detected

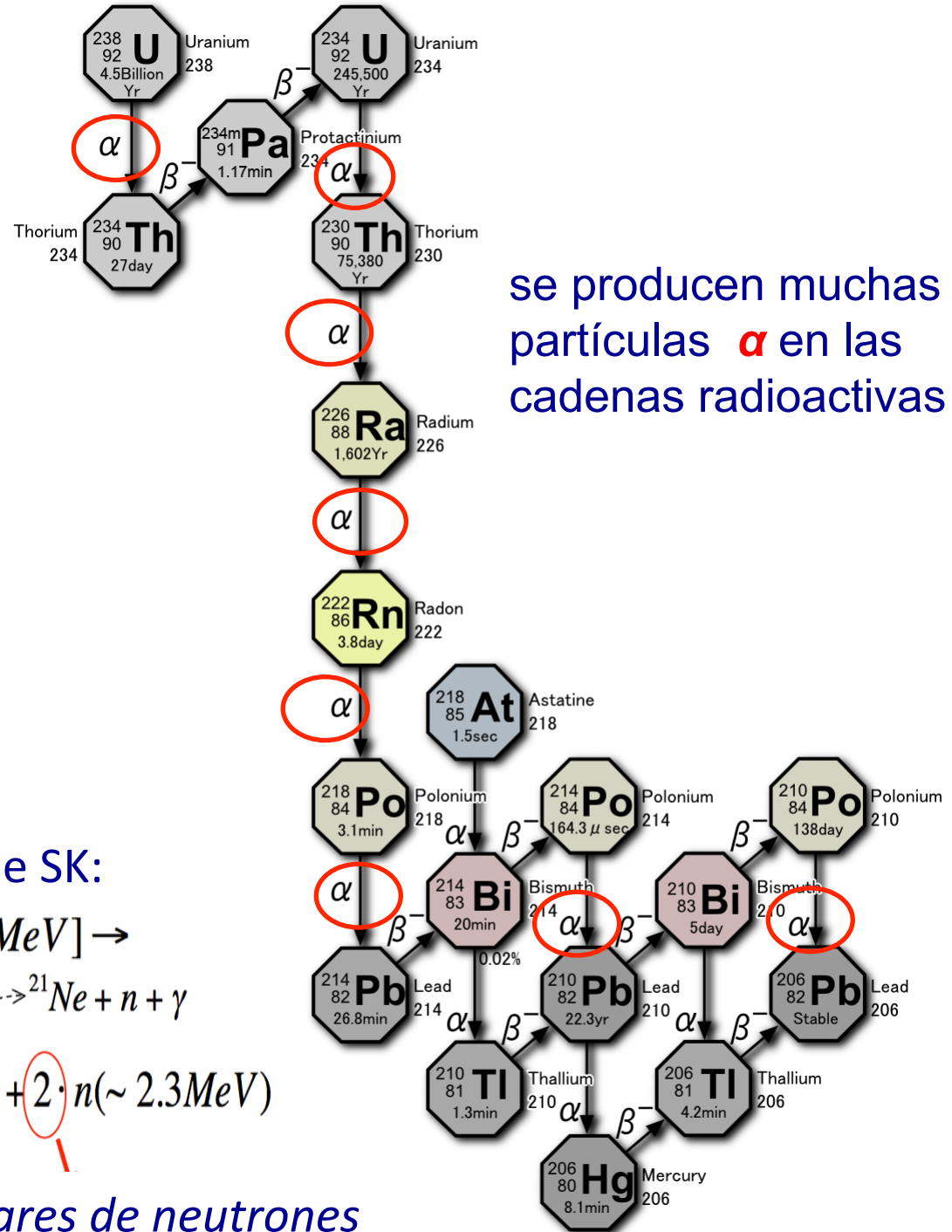
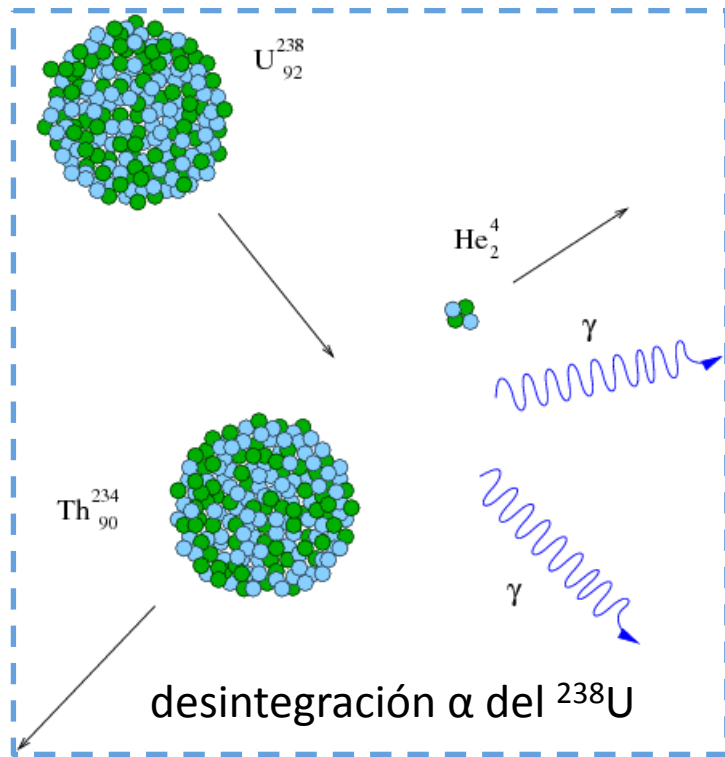
⇒ the  $\bar{\nu}_e$  is identified by the coincidence between the  $e^+$  and the *delayed*  $e^-$ , with **high efficiency** ( $> 80\%$ )



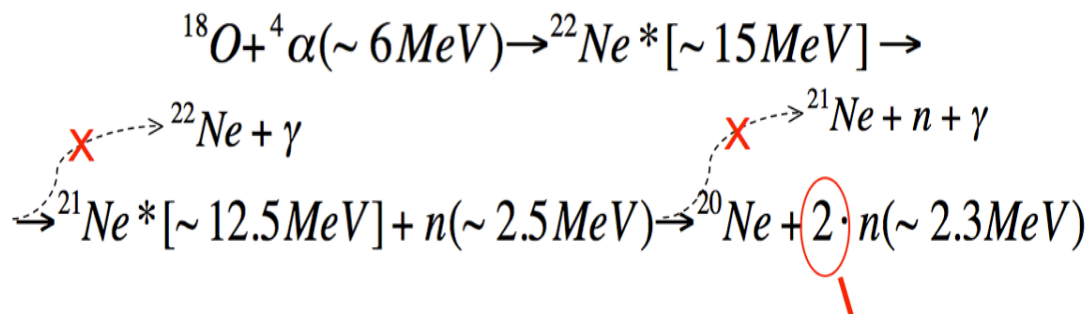
**¿ Por que nos preocupa la contaminación radioactiva ?**

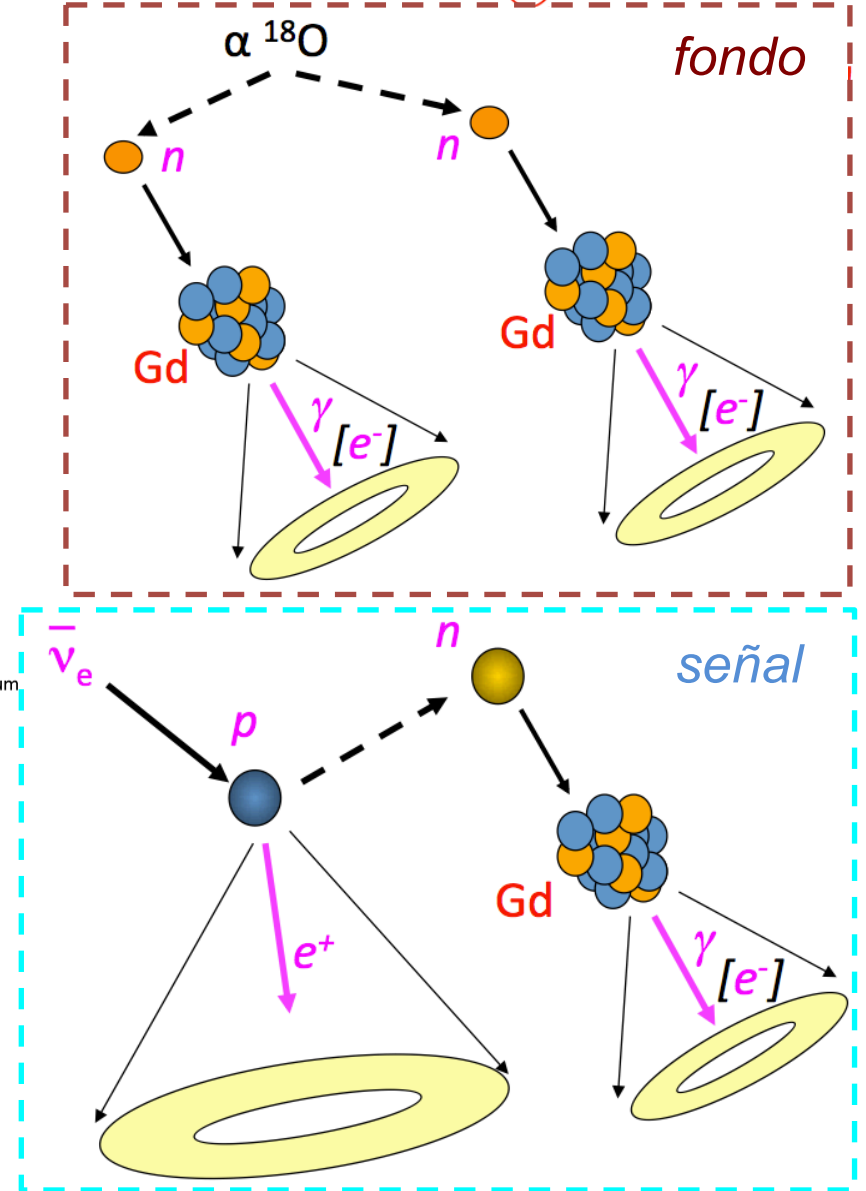
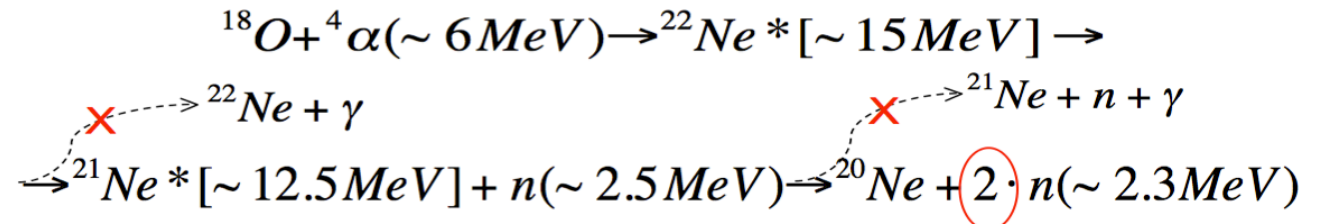
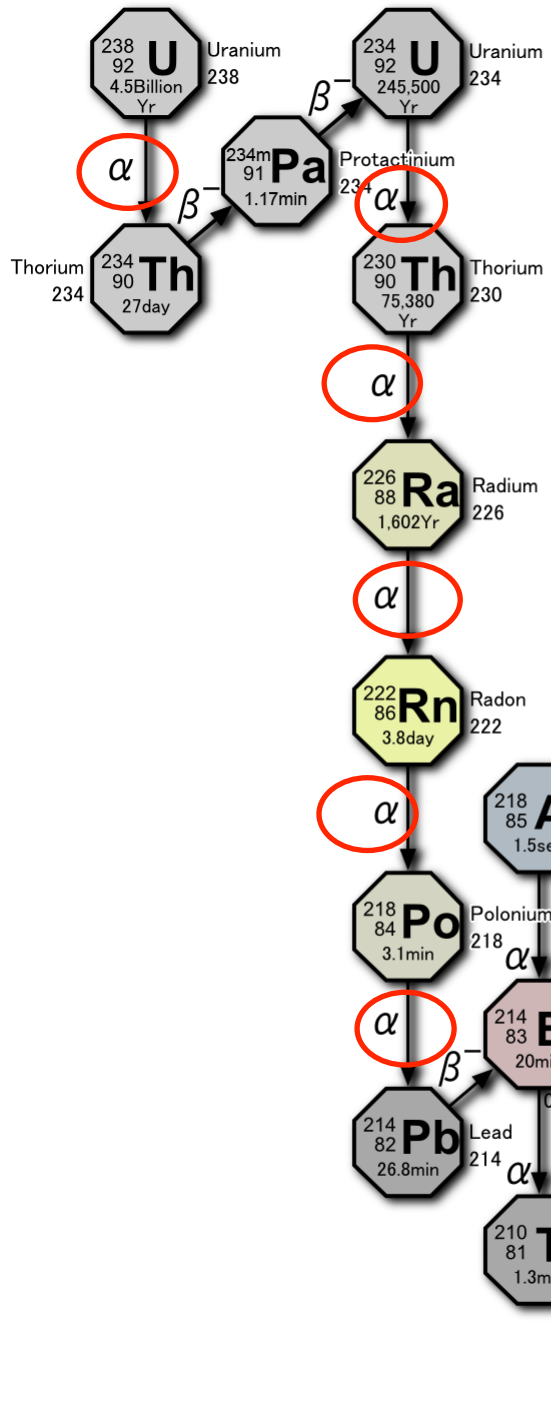


# Fondo debido a desintegraciones $\alpha$



## Interacción de las $\alpha$ con el agua de SK:







## ¿Cómo medimos la contaminación radioactiva de los materiales que forman nuestro equipo?

*Analizando y cuantificando el flujo de rayos gamma que emiten*

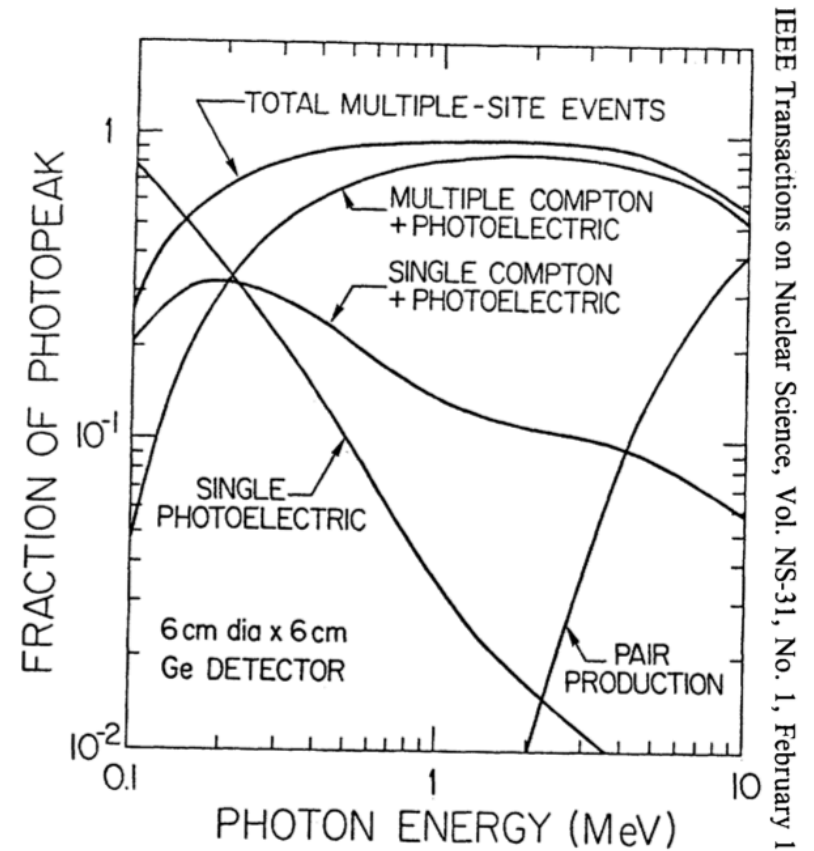
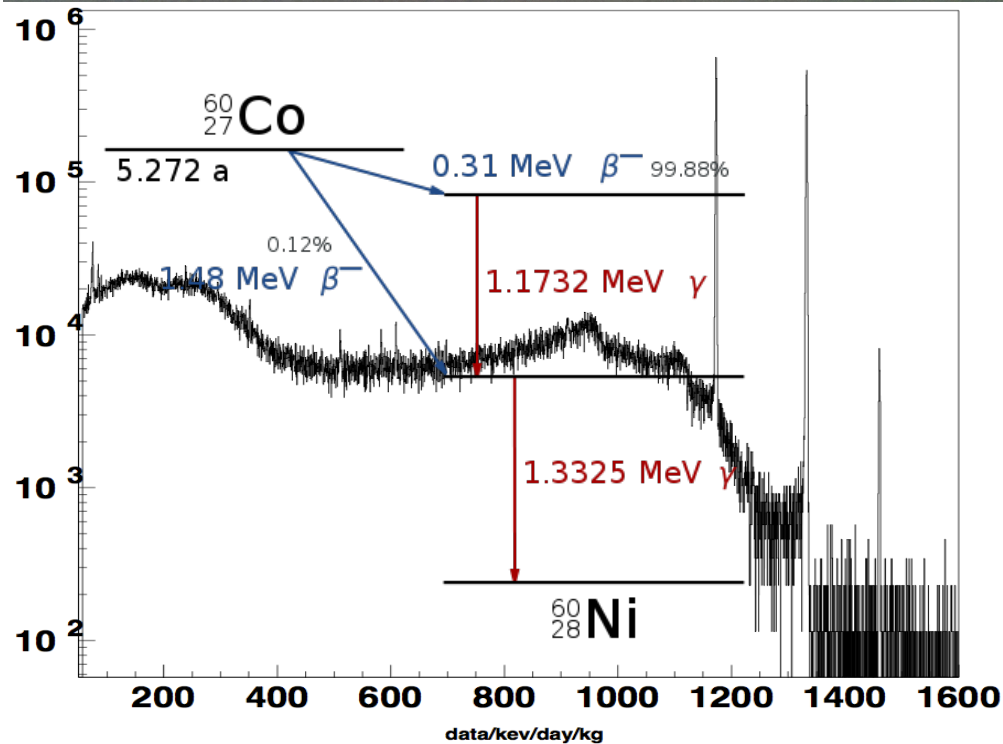
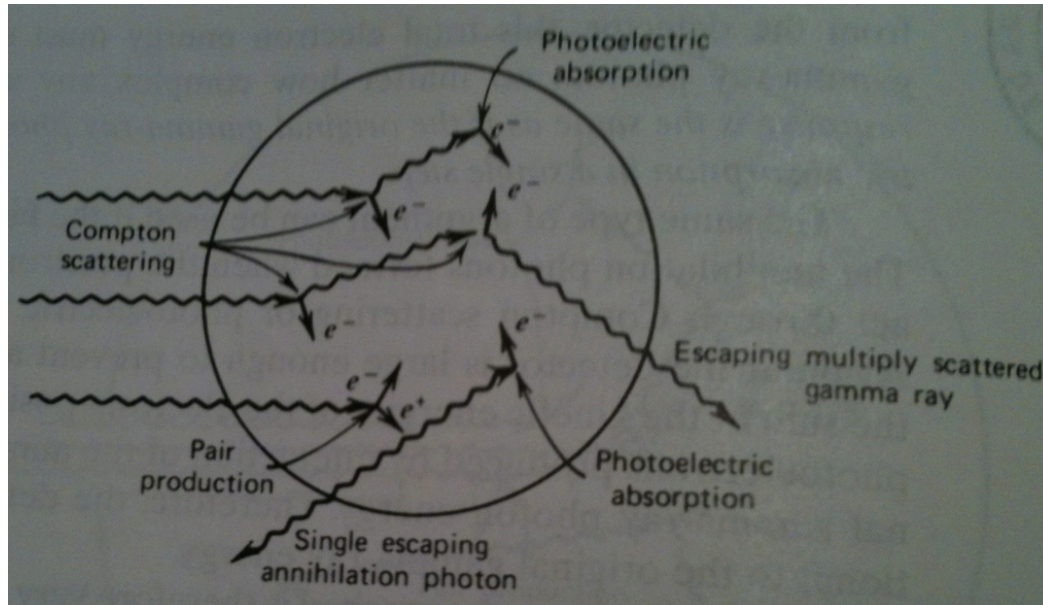
### ¿Cómo?

*La forma más precisa actualmente es mediante detectores de Ge de alta pureza (HPGe)*

- *muy baja energía para crear un par electrón-hueco ( $\approx 3$  eV)  
→ señal de ionización grande → resolución en energía*
- *extremadamente baja concentración de impurezas ( $\approx 1/10^{12}$ )  
→ región activa grande → mayor probabilidad de deposición de toda la energía → eficiencia*
- *disponibles en el mercado*
- *los HPGe que utilizamos están fabricados por CANBERRA. La resolución en energía es de  $\approx 2$  keV FWHM para la línea 1332 keV del  $^{60}\text{Co}$*



# Procesos en la detección de fotones por HPGe

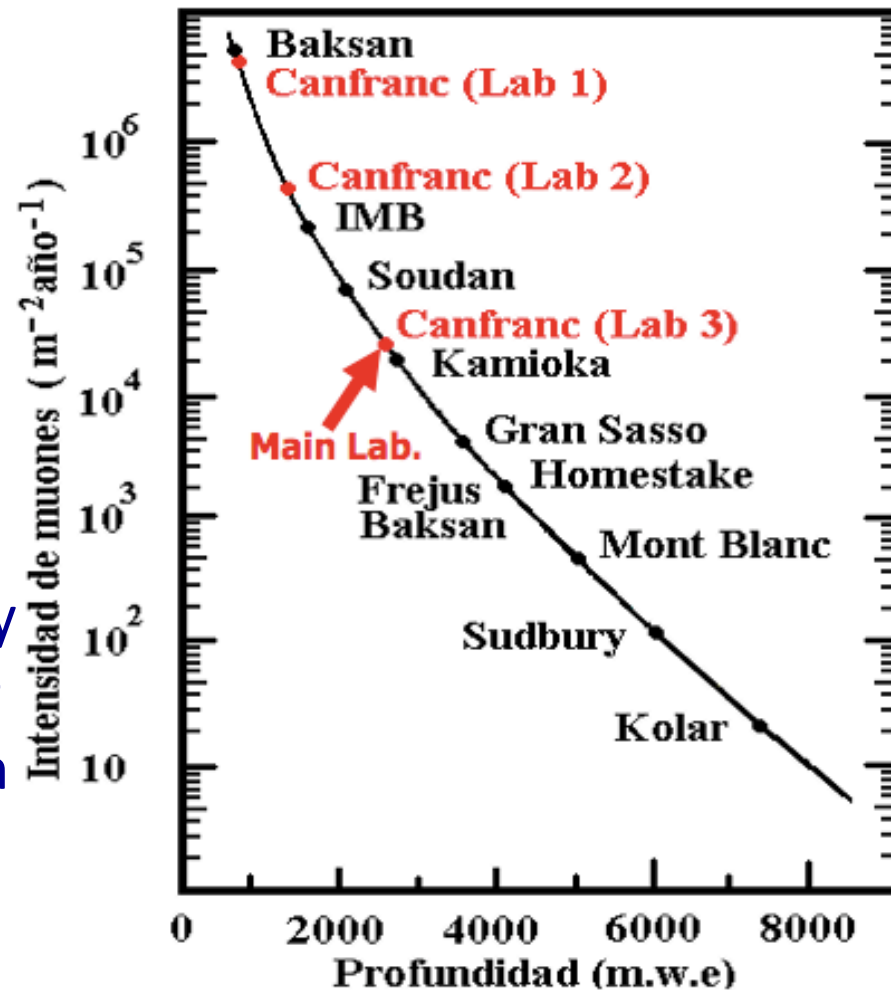


IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. NS-31, No. 1, February 1984

Figure 1. Fractions of the photopeak contributed by the different energy loss mechanisms for photons normally incident upon the face of a 6 cm-diameter, 6 cm length coaxial detector.

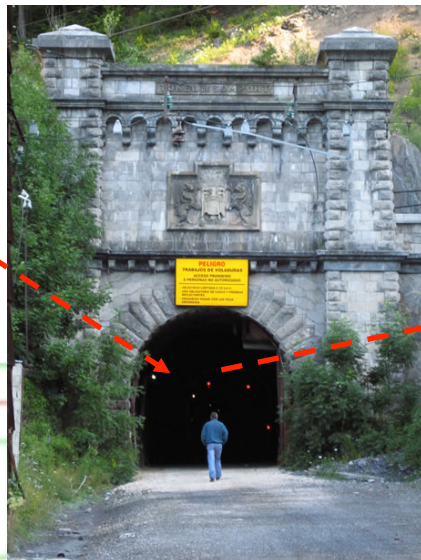
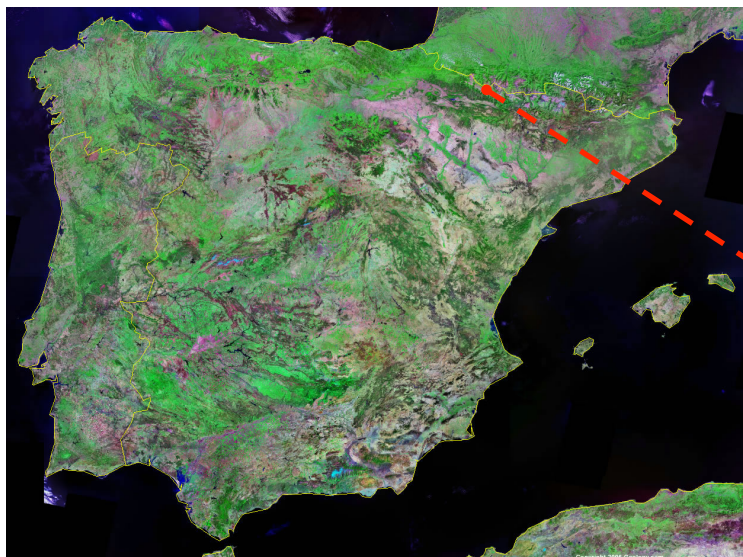
Al ser los HPGe extraordinariamente sensibles su utilización sólo puede ser en un ambiente de mínima radiación “ambiental”

- Subterráneo: minimizar la radiación cósmica directa sobre el detector e indirecta de sus interacciones con los materiales cercanos
- Con blindaje apropiado: plomo para parar la radiación exterior y cobre de gran pureza para parar la radiación de la contaminación radioactiva del plomo
- Todo dentro de una caja estanca de metacrilato para minimizar la intrusión de Radón ( $Rn_{86}$ , gas)





[*LSC*, Laboratorio Subterráneo de *Canfranc*]



Main experimental hall



granja de detectores *HPGe*

Hall principal: *ArDM*, *Next* ...

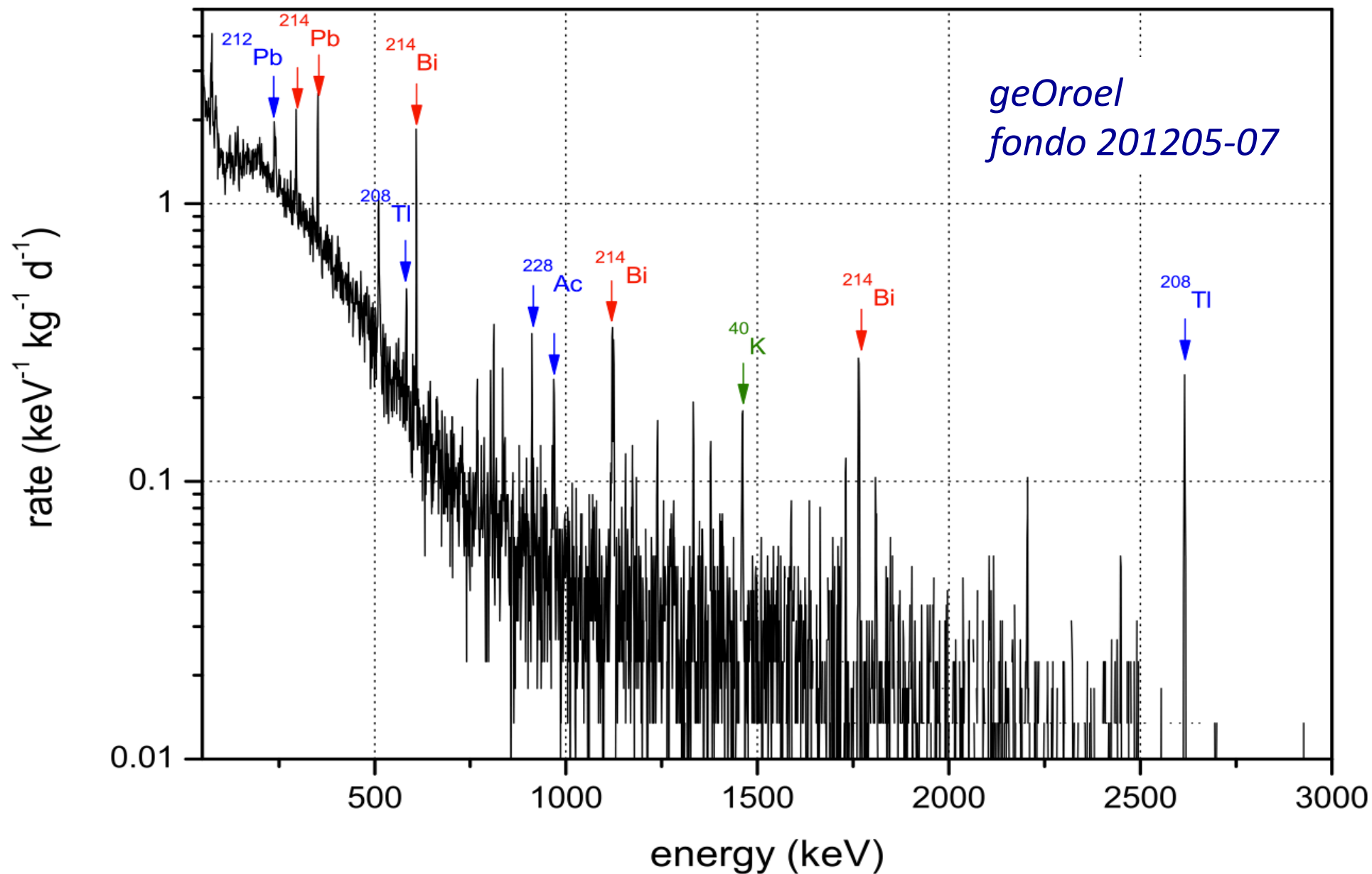
→ cleaning of the Cu for the shield of geLatuca:



→ assembly of geOroel in its new shield:



Aún así siempre queda un remanente de fondo que hay que cuantificar previamente y restar a la señal del material que se está midiendo:

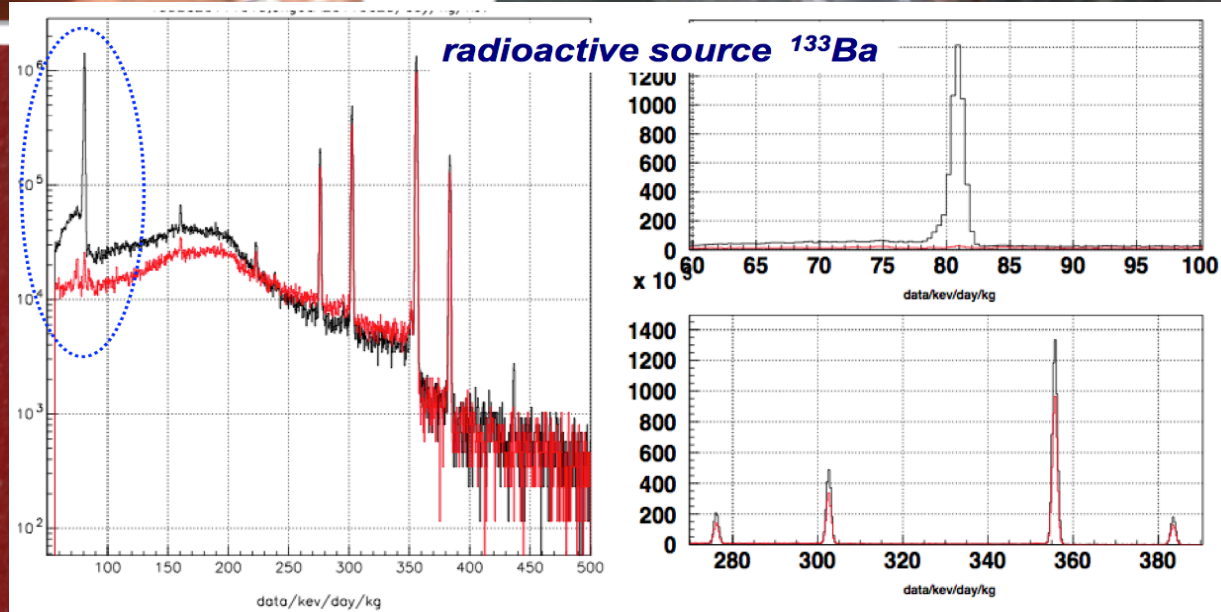
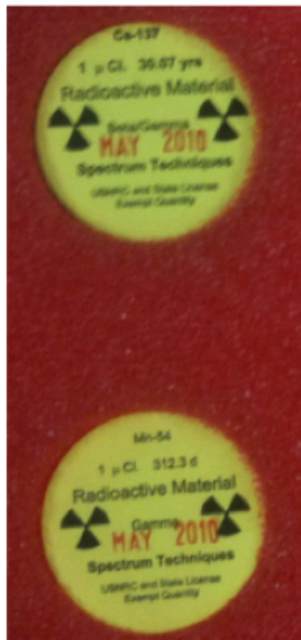
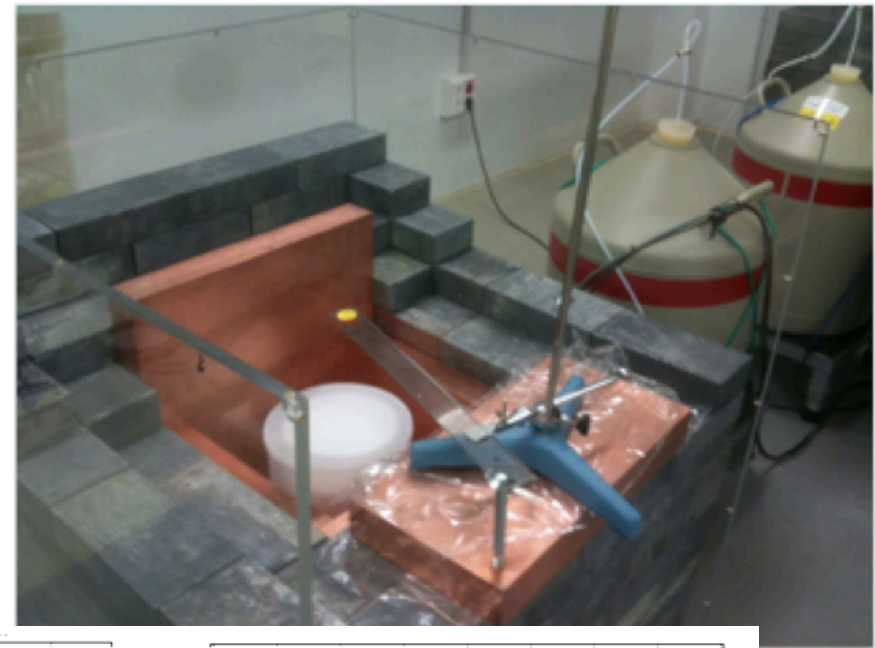


## measuring with **geAnayet**

- sample of  $\text{Gd}_2(\text{SO}_4)_3$  arrived to Canfranc on May 27<sup>th</sup>
- measurement time **background**: 65 days, April 24<sup>th</sup> to June 28<sup>th</sup>
- measurement time  $\text{Gd}_2(\text{SO}_4)_3$ : 47 days, July 13<sup>th</sup> to August 24<sup>th</sup>

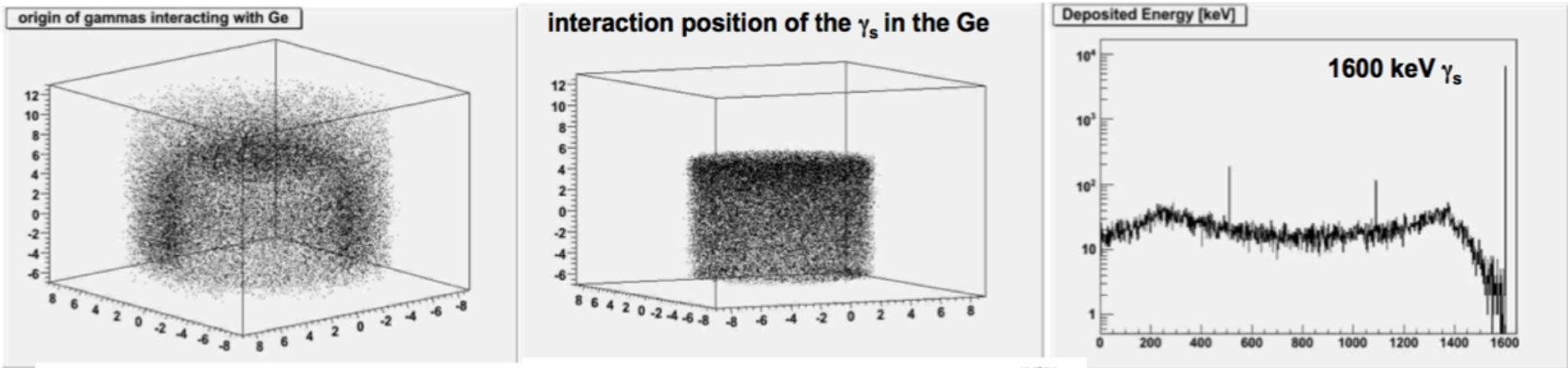


# analyzing performance: response to $^{133}\text{Ba}$

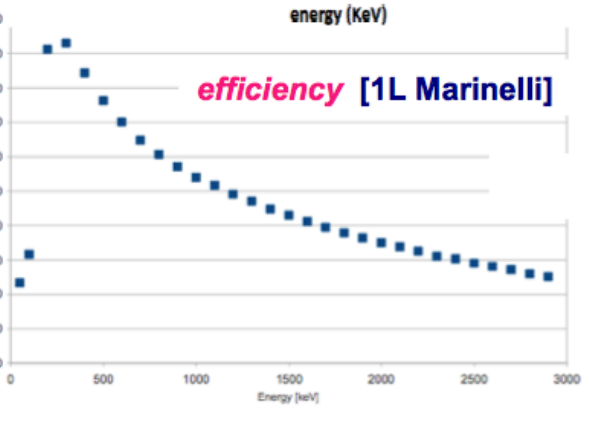
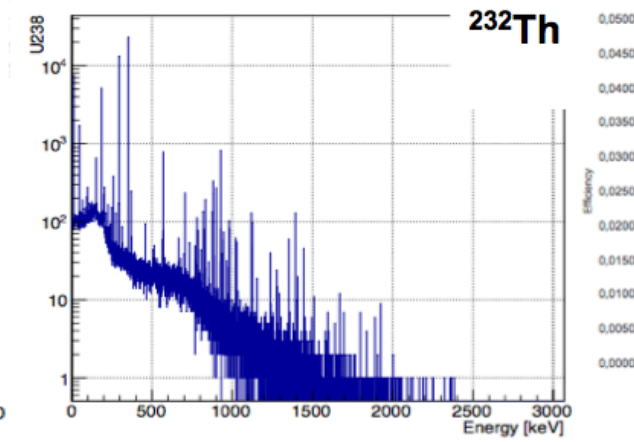
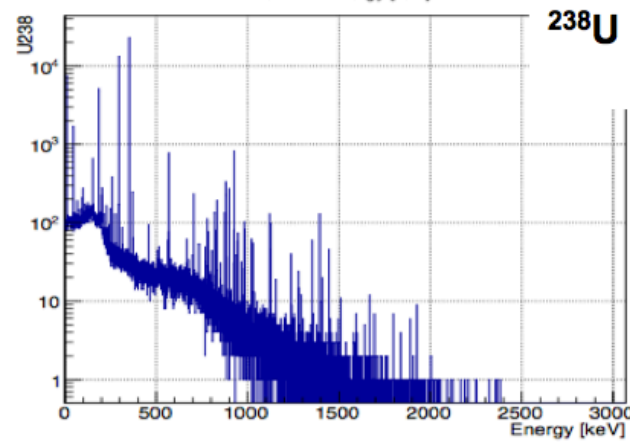
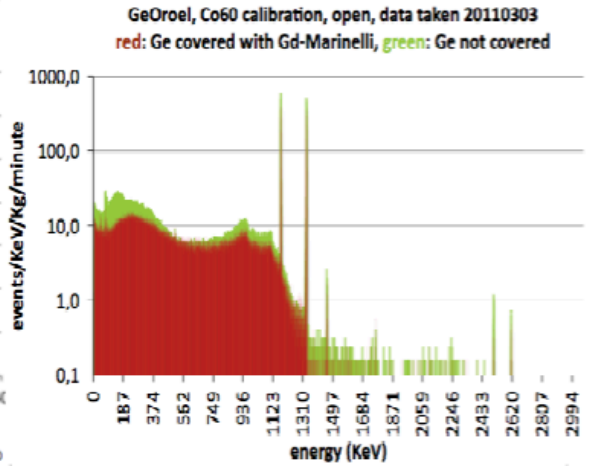
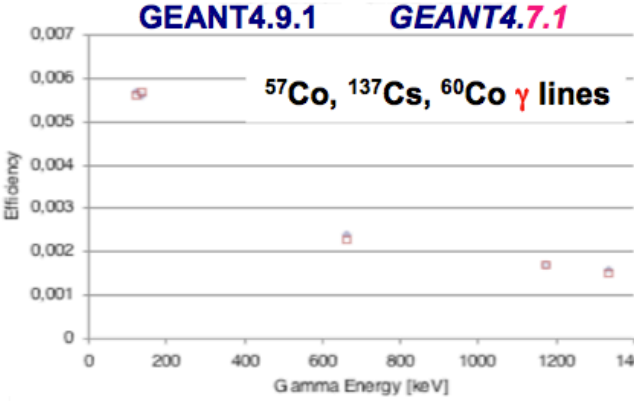
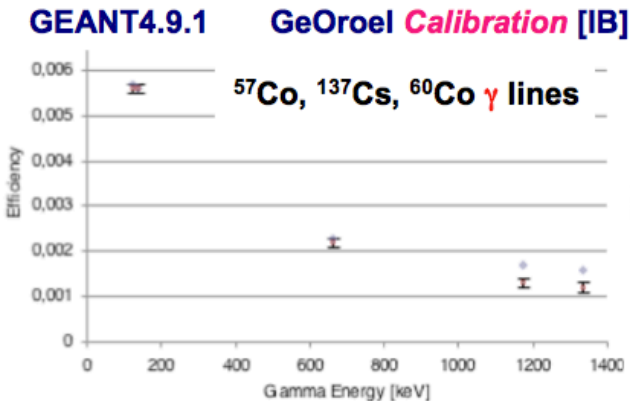


**black:** Ge crystal *not* covered by Marinelly with  $\text{Gd}_3(\text{SO}_4)_2$   
**red:** Ge crystal *covered* by Marinelly with  $\text{Gd}_3(\text{SO}_4)_2$

# we are fine-tuning our GEANT4 simulation [Luis Marti, Iulian Bandac]



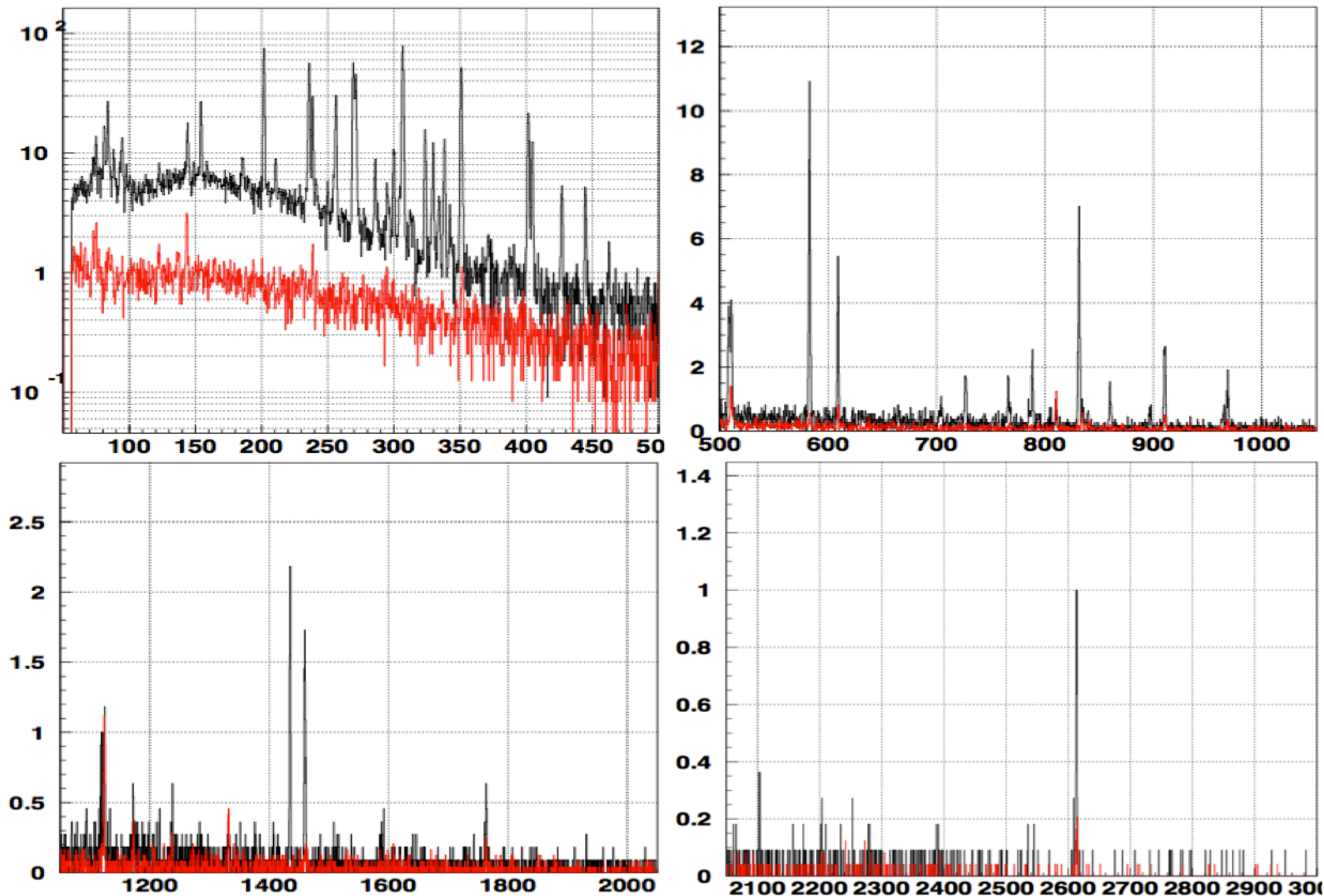
full  $\gamma$  energy absorption by the Ge detector



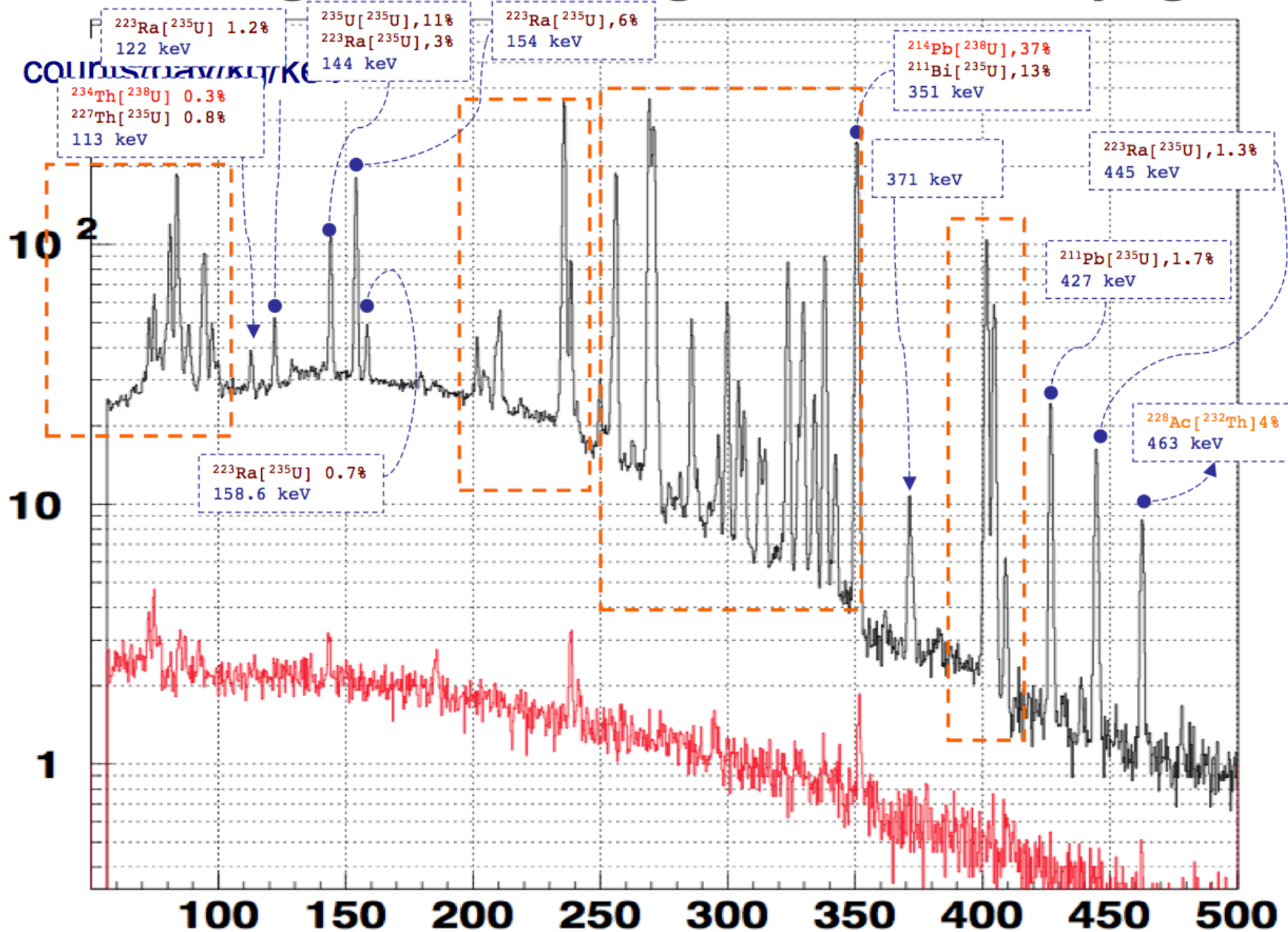
Gd 200904

geOroel

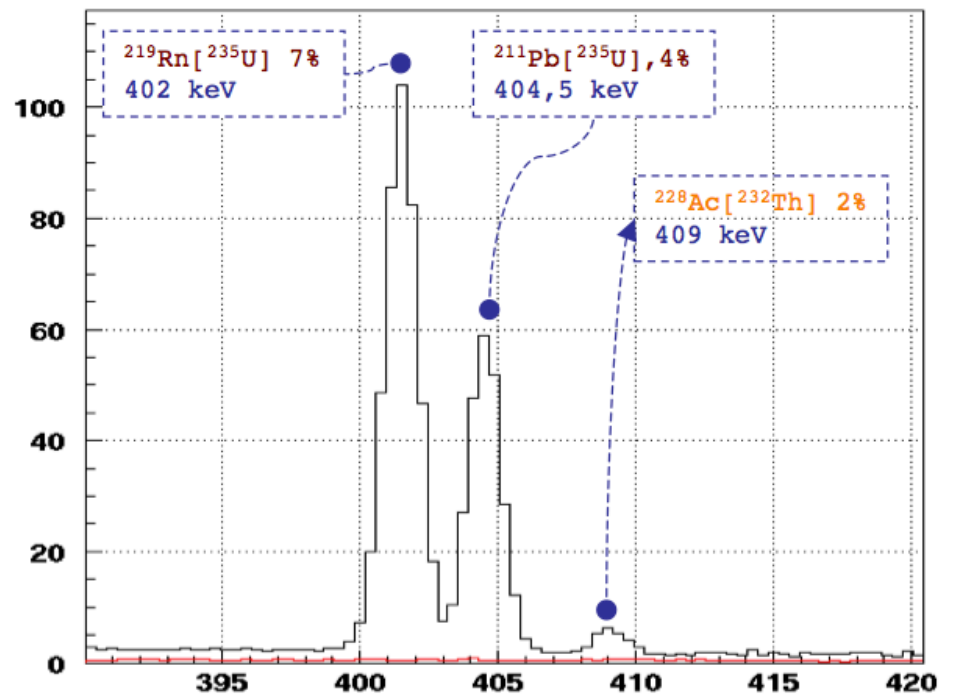
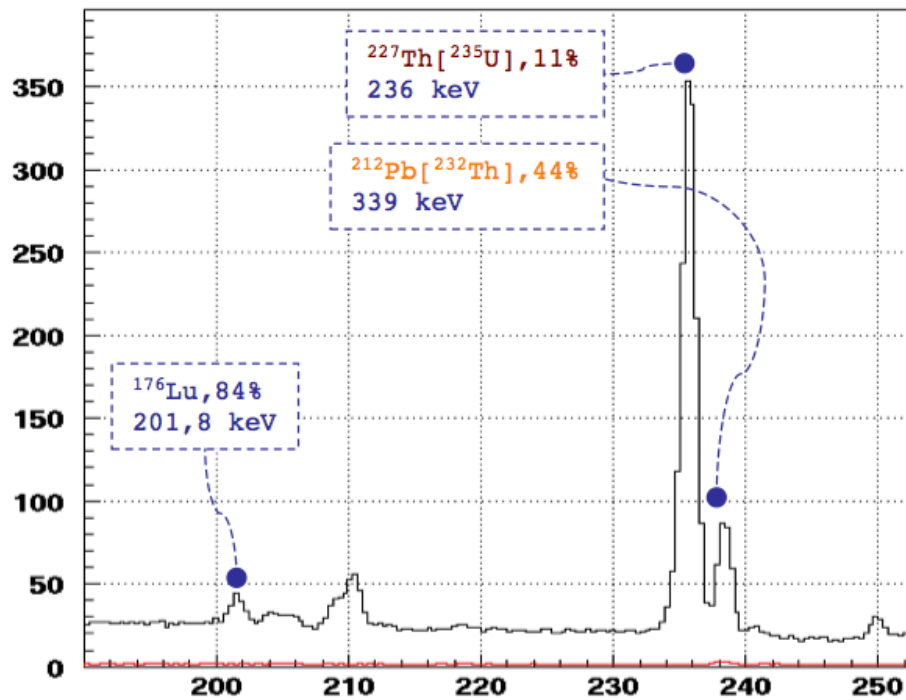
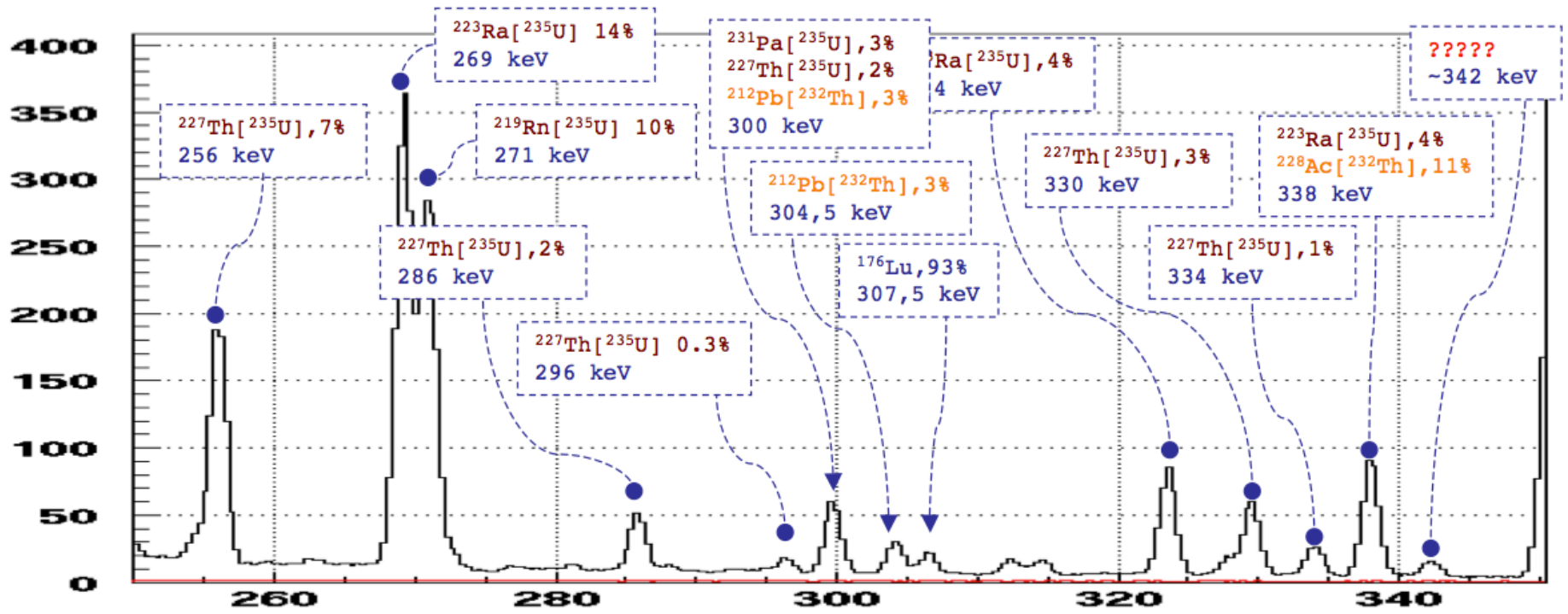
sample measured at 20110411-25; background measured 20110308-0406  
distributions are *counts/day/kev/kg*; black is Gd sample, red is background



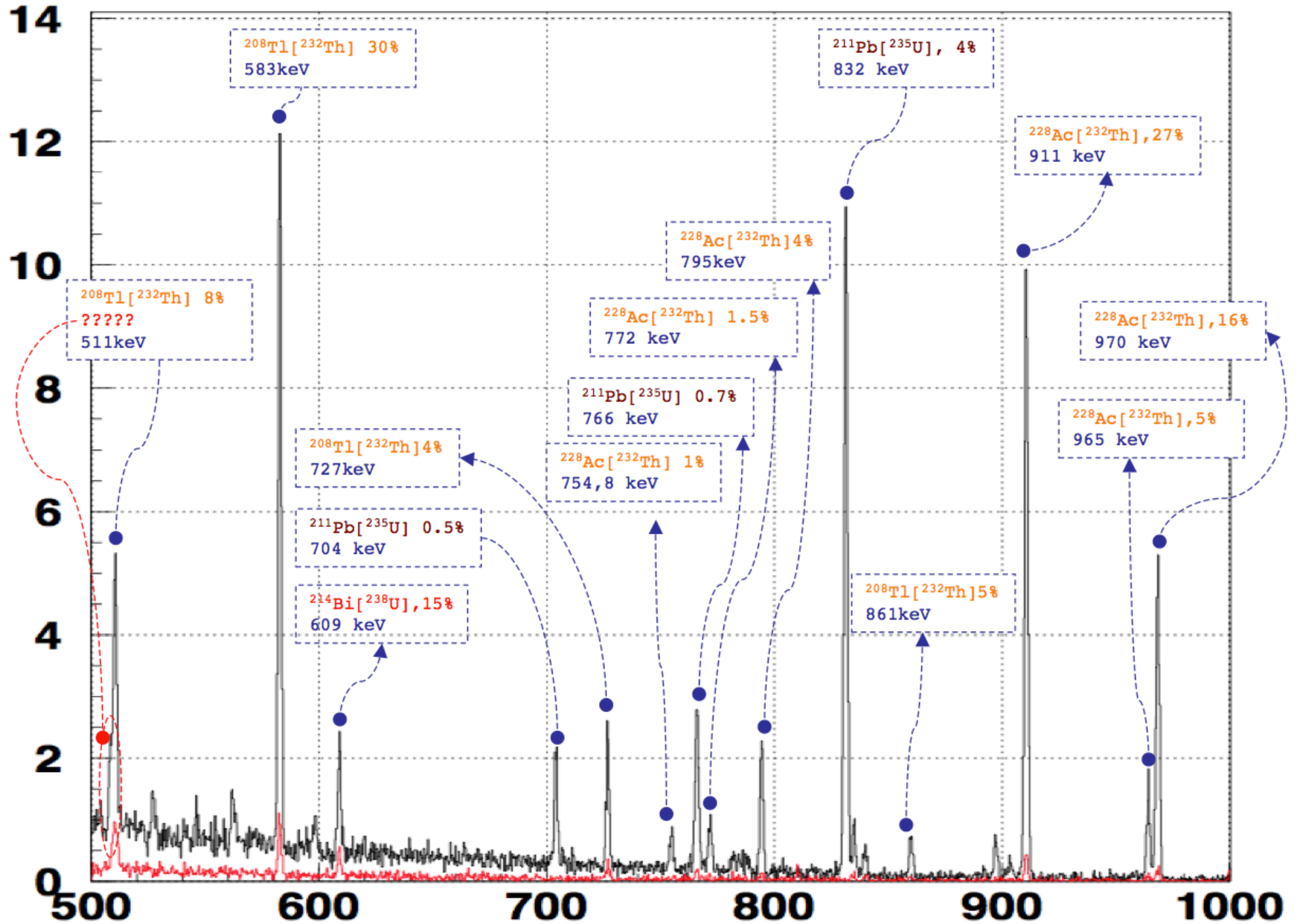
# Gd201008geA20110824,bkgGeA20110628/day/kg/kev







# Gd201008geA20110824,bkgGeA20110628/day/kg/kev



## Grand Summary of radioactive contaminations in the $Gd_2(SO_4)_3$ batches sent to Canfranc

LL 20121227

Notes:

1. Units are **mBq/Kg**
2. The uncertainty of the errors are at the 15% level
3. Gd 201008 was measured in a detector not properly setup (significant loss of efficiency as the energy increases, now OK) → the values marked by (\*) have a larger uncertainty than that quoted
4. When no signal is seen upper limits are given following [L. Baudis et al. *JINST* **6** (2011) P08010]
5. The probability for the table below being bug-free is not 100%, but I believe it is large.

Chain	Longest lived parent in sub-chain	Gd 200904 (to Canfranc)	Gd 201008 (1 <sup>st</sup> @ EGADS)	Gd 201208 (Chinese sample)
$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$51 \pm 21$	< 33 @ 95% c.l.	$221 \pm 165$
	$^{226}\text{Ra}$	$8 \pm 1$	$2,8 \pm 0,6$	$92 \pm 4$
$^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Ra}$	$11 \pm 2$	$270 \pm 16$ (*)	$1097 \pm 18$
	$^{228}\text{Th}$	$29 \pm 3$	$86 \pm 5$	$519 \pm 12$
$^{235}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	< 32 @ 95% c.l.	< 32 @ 95% c.l.	< 112 @ 95% c.l.
	$^{227}\text{Ac} / ^{227}\text{Th}$	$214 \pm 10$	$1700 \pm 20$	$3080 \pm 44$
<b>Others</b>	$^{40}\text{K}$	$29 \pm 5$	$12 \pm 3$ (*)	$112 \pm 14$
	$^{138}\text{La}$	$8 \pm 1$	<	$683 \pm 15$
	$^{176}\text{Lu}$	$80 \pm 8$	$21 \pm 2$	$566 \pm 6$

Material adicional

# Isótopos primordiales radioactivos

no ↕	nuclide ↕	energy ↕	half-life (seconds) ↕	decay mode ↕	decay energy (MeV) ↕	approx ratio half-life to age of universe ↕
254	<sup>128</sup> Te	8.743261	$6.9 \times 10^{31}$	2 $\beta^-$	2.530	160 trillion
255	<sup>136</sup> Xe	8.706805	$6.66 \times 10^{28}$	2 $\beta^-$	2.462	150 billion
256	<sup>76</sup> Ge	9.034656	$5.62 \times 10^{28}$	2 $\beta^-$	2.039	130 billion
257	<sup>82</sup> Se	9.017596	$3.408 \times 10^{27}$	2 $\beta^-$	2.995	8 billion
258	<sup>116</sup> Cd	8.836146	$9.783 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	2.809	2 billion
259	<sup>48</sup> Ca	8.992452	$7.258 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	4.274, .0058	2 billion
260	<sup>96</sup> Zr	8.961359	$6.3 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	3.4	1 billion
261	<sup>209</sup> Bi	8.158689	$5.996 \times 10^{26}$	$\alpha$	3.137	1 billion
262	<sup>130</sup> Te	8.766578	$2.777 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	.868	600 million
263	<sup>150</sup> Nd	8.562594	$2.493 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	3.367	600 million
264	<sup>100</sup> Mo	8.933167	$2.461 \times 10^{26}$	2 $\beta^-$	3.035	600 million
265	<sup>151</sup> Eu	8.565759	$1.578 \times 10^{26}$	$\alpha$	1.9644	300 million
266	<sup>180</sup> W	8.347127	$5.680 \times 10^{25}$	$\alpha$	2.509	100 million
267	<sup>50</sup> V	9.055759	$4.418 \times 10^{24}$	$\beta^+ \beta^-$	2.205, 1.038	10 million
268	<sup>113</sup> Cd	8.859372	$2.430 \times 10^{23}$	$\beta^-$	.321	600,000
269	<sup>148</sup> Sm	8.607423	$2.209 \times 10^{23}$	$\alpha$	1.986	500,000
270	<sup>144</sup> Nd	8.652947	$7.227 \times 10^{22}$	$\alpha$	1.905	200,000
271	<sup>186</sup> Os	8.302508	$6.312 \times 10^{22}$	$\alpha$	2.823	100,000
272	<sup>174</sup> Hf	8.392287	$6.312 \times 10^{22}$	$\alpha$	2.497	100,000
273	<sup>123</sup> Te	8.465544	$1.894 \times 10^{22}$	K	2.413	40,000
274	<sup>115</sup> In	8.849910	$1.392 \times 10^{22}$	$\beta^-$	.499	30,000
275	<sup>152</sup> Gd	8.562868	$3.408 \times 10^{21}$	$\alpha$	2.203	8000
276	<sup>130</sup> Ba	8.742574	$2.2 \times 10^{21}$	KK	2.620	5000
277	<sup>190</sup> Pt	8.267764	$2.051 \times 10^{19}$	$\alpha$	3.252	60
278	<sup>147</sup> Sm	8.610593	$3.345 \times 10^{18}$	$\alpha$	2.310	8
279	<sup>138</sup> La	8.698320	$3.219 \times 10^{18}$	K $\beta^-$	1.737, 1.044	7
280	<sup>87</sup> Rb	9.043718	$1.568 \times 10^{18}$	$\beta^-$	.283	4
281	<sup>187</sup> Re	8.291732	$1.300 \times 10^{18}$	$\beta^- \alpha$	.0026, 1.653	3
282	<sup>176</sup> Lu	8.374665	$1.187 \times 10^{18}$	$\beta^-$	1.193	3
283	<sup>232</sup> Th	7.918533	$4.434 \times 10^{17}$	$\alpha$ SF	4.083	1
284	<sup>238</sup> U	7.872551	$1.410 \times 10^{17}$	$\alpha$ SF	4.270	.3
285	<sup>40</sup> K	8.909707	$3.938 \times 10^{16}$	$\beta^-$ K $\beta^+$	1.311, 1.505, 1.505	.09
286	<sup>235</sup> U	7.897198	$2.222 \times 10^{16}$	$\alpha$ SF	4.679	.05
287	<sup>146</sup> Sm	8.626136	$3.250 \times 10^{15}$	$\alpha$	2.529	.008
288	<sup>244</sup> Pu	7.826221	$2.525 \times 10^{15}$	$\alpha$ SF	4.666	.006