

Proyecto en curso del laboratorio nacional de Radón en el LMRI-CIEMAT.

Miguel Roteta Ibarra⁽¹⁾, M.Teresa Crespo Vázquez, Nuria Navarro Ortega, Marcos Mejuto Mendieta, Virginia Peyrés Medina, Marco A. Lombana Rodríguez

Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes del Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (LMRI-CIEMAT), Avenida Complutense 40, 28040 Madrid
+34913466244, miguel.roteta@ciemat.es

RESUMEN:

La necesidad de disponer de un patrón nacional de gas radón que permita dar trazabilidad a los organismos que lo soliciten es el motivo por el que el LMRI-CIEMAT ha iniciado la construcción de un laboratorio de radón para la puesta en marcha de un patrón primario de este gas. Se ha seleccionado el método implantado por el *Laboratoire National Henri Becquerel* (LNHB) para la preparación y medida absoluta de una fuente de ^{222}Rn sin relación de trazabilidad con el ^{226}Ra del que procede: El método se basa en la difusión del ^{222}Rn desde una fuente de ^{226}Ra (precursor del ^{222}Rn) y su introducción en una cámara estanca y en vacío a 300K. Dentro de la cámara se crea una superficie que se mantiene a 60K en la cual se condensará el ^{222}Rn . La cámara contiene un detector de Si situado enfrente del área de condensación con un diafragma intermedio. El ángulo sólido efectivo se calcula en función del diámetro de la fuente, el radio del diafragma, la distancia fuente-diafragma y teniendo en cuenta la excentricidad y la distancia entre el centro de la fuente y el eje del diafragma.

1. INTRODUCCIÓN

El radón (^{222}Rn) es un gas radiactivo incoloro, inodoro e insípido, presente en la naturaleza que se produce por desintegración radiactiva natural en la cadena de desintegración del Uranio (^{238}U). El radionucleido que lo genera dentro de esa cadena es el ^{226}Ra . Según la Organización Mundial de la Salud (OMS), el radón es el causante de la principal contribución a la exposición a las radiaciones ionizantes en seres humanos, debido a su inhalación. El radón emana de los suelos, rocas y agua y no suele encontrarse en elevadas concentraciones al aire libre por el efecto de la dilución en el mismo, pero en los espacios cerrados puede alcanzar elevadas concentraciones (minas, aguas termales, túneles, sótanos y edificios con poca ventilación) y conllevar un riesgo significativo de exposición tanto para miembros del público como para trabajadores. La Directiva europea 2013/59/Euratom [1] establece la necesidad de implementar planes nacionales para garantizar un nivel de protección adecuado frente a este riesgo, identificando en primer lugar aquellas actividades y situaciones que requieren un control especial y estableciendo programas de vigilancia de los niveles de concentración de radón.

La Instrucción IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) [2] establece los criterios seguidos en España para la protección frente a la exposición a la radiación natural en lugares de trabajo. Hasta ahora, el nivel de referencia para la protección de los trabajadores frente a la exposición al radón en los puestos de trabajo debe ser de 600 Bq/m^3 de concentración media de radón durante la jornada laboral. La nueva legislación va a ser mucho más restrictiva, disminuyendo este nivel a la mitad (300 Bq/m^3), lo que previsiblemente provocará un considerable incremento de medidas de concentración de este gas en todo el país. Pero no solo las actividades profesionales suponen un riesgo de exposición al radón. En España, desde el punto de vista geológico, hay zonas con un elevado contenido de radionucleidos naturales en rocas y minerales silíceos [3]. En estas zonas, los valores promedio de concentración de radón en viviendas son

significativamente mayores que el valor medio nacional, debido no solo al suelo sobre el que se construyeron sino también a los materiales de construcción (piedra) empleados. Como el radón y sus descendientes son la segunda causa más importante de cáncer de pulmón, solo superada por el consumo de tabaco, se han comercializado numerosos equipos para la determinación de su concentración. La Guía de Seguridad 11.01 [4] del CSN proporciona una serie de directrices sobre las actividades y garantía de calidad de los laboratorios o servicios dedicados a la medida de la concentración de radón, incluyendo la calibración de los equipos que se utilizan para ello. En España actualmente solo hay cuatro laboratorios o empresas acreditadas para medir radón en aire según la norma ISO/IEC 17025, mientras que otro laboratorio, el de estudios del radón del INTE-UPC [5], dispone de una cámara de radón para calibraciones e inter-comparaciones de equipos de medida de este gas. Es importante reseñar que ninguno de estos laboratorios dispone de medios para la creación de fuentes patrón de radón, dependiendo para ello de laboratorios extranjeros a los que trazarse.

Debido a que España no dispone de un patrón nacional de radón, el proyecto del laboratorio nacional de radón permitirá conseguir fuentes de referencia de ^{222}Rn que puedan ser diseminadas en instituciones y empresas que necesiten de este apoyo técnico, siendo el principal objetivo del proyecto el desarrollo de nuevas capacidades de medida y la calibración de ^{222}Rn .

2. DESARROLLO/DESCRIPCIÓN

El proyecto individual que se presenta tiene como objetivo general desarrollar una metodología que permita el diseño y construcción de un patrón primario de ^{222}Rn [6-11], y la preparación de patrones secundarios a partir del patrón primario para proporcionar la trazabilidad a los laboratorios que así lo deseen. El proyecto está estructurado en cuatro fases bien diferenciadas e íntimamente relacionadas: 1) Construcción del patrón primario, consistente en una cámara de ángulo sólido definido, y la conexión del resto de los elementos: sistema de vacío, sistema criogénico y conexión a la fuente de ^{226}Ra . 2) Estudio del procedimiento para enfriar la superficie de condensación y generar la fuente de radón. 3) Llevar a cabo la calibración de la fuente de radón, su regasificación y almacenamiento para ser medida mediante otras técnicas o utilizada como patrón secundario. 4) Construcción de una cámara de atmósfera controlada en temperatura, presión y concentración de radón a partir del radón calibrado y regasificado.

2.1 Objetivos generales.

- 1) Diseño y construcción de la cámara de baja geometría de ángulo sólido definido. Medidas dimensionales de la cámara. Conexión al sistema de vacío, al sistema criogénico y al generador de radón (fuente de ^{226}Ra). Pruebas de estanqueidad y vacío.
- 2) Estudio de los gradientes de temperatura y del procedimiento más adecuado para enfriar la superficie de condensación. Pruebas de adsorción.
- 3) Puesta a punto del sistema de caracterización y calibración de la fuente de ^{222}Rn y desarrollo del software de análisis de espectros alfa.
- 4) Puesta a punto del proceso de regasificación de la muestra de radón y su almacenamiento en bulbos para su distribución en viales de vidrio para análisis gamma

y en viales de centelleo líquido para su medida con los sistemas Triple-to-Double Coincidence Ratio (TDCR) o espectrómetros de radiaciones gamma. Comparación de los resultados de calibración.

- 5) Construcción de una cámara de atmósfera controlada de radón.

2.2 Objetivos Específicos

A continuación, se describen los objetivos específicos que se pretenden alcanzar, con el fin de poder desarrollar un plan de trabajo útil para conseguir los objetivos generales planteados anteriormente

1. Diseño geométrico de la cámara de medida de baja geometría, incluyendo la selección de los materiales que la conforman, el tamaño de los diafragmas y las aleaciones más adecuadas para construir la superficie de condensación.
2. Construcción en los talleres del CIEMAT de todos los elementos de la cámara.
3. Calibración dimensional en el Centro Español de Metrología (CEM) o en empresas acreditadas de todas las características geométricas críticas de la cámara.
4. Puesta a punto del generador de radón.
5. Análisis de los gradientes de temperatura en la superficie de condensación mediante el software COMSOL.
6. Estudio del comportamiento del radón en el sistema de medida (adsorción).
7. Obtención de auto-radiografías para la caracterización de las fuentes.
8. Desarrollo del software de análisis de espectros alfa y deconvolución de espectros.
9. Puesta a punto del proceso de regasificación de la muestra de radón.
10. Construcción de una cámara de gas radón con presión y temperatura controladas que se pueda utilizar tanto para optimizar el proceso de creación de atmósferas controladas a partir de los patrones secundarios como para la calibración de los monitores de uso interno del CIEMAT.

2.3 Metodología

1) Para el diseño y construcción de la cámara de medida de baja geometría nos basaremos en la experiencia previa en la construcción de cámaras de baja geometría de las que dispone el LMRI, y en lo descrito por los laboratorios que disponen o están desarrollando un dispositivo similar basados en el método implantado por el *Laboratoire National Henri Becquerel* (LNHB). Será necesario: i) realizar un diseño de la cámara; ii) elegir los materiales de baja actividad intrínseca y predecir la posible adsorción en las paredes; iii) controlar el proceso de construcción y hermeticidad de todos los componentes. Se realizarán pruebas de vacío con los colaboradores del laboratorio de fusión del CIEMAT.

2) Todo el procedimiento de calibración de la fuente de radón descansa en la caracterización geométrica de la cámara de baja geometría. Para ello, la cámara se enviará al CEM o a alguna

empresa acreditada durante el proceso de fabricación. Las especificaciones no deberán modificarse por la existencia del gradiente de temperatura. Será necesario comprobarlo.

3) Puesta a punto del generador de radón y su conexión a la cámara de medida. Comprobación del sistema de control de flujo de radón.

4) Conexión del sistema de vacío a la cámara y conexión del sistema criogénico a la base sobre la que se condensará el radón. La prueba de la calidad del vacío y del alcance de las temperaturas de condensación en la superficie y, por tanto, del comportamiento del radón, se hará también a través de la calidad de los espectros. En este sentido, hay que tener en cuenta que hay dos alternativas posibles para la fase de condensación de ^{222}Rn . La primera es introducir el gas en la cámara de medida y luego activar el criogenerador para la condensación gradual de radón. La segunda consiste en introducir el gas cuando la temperatura de la superficie de condensación se estabilice, para garantizar la condensación rápida. Aparentemente, con el primer método se debe conseguir mejor resolución energética del ^{222}Rn , ya que el radón es probablemente uno de los últimos componentes que se condensa, después de las impurezas, y constituye una capa superficial en la que la energía de las partículas alfa se degradará muy poco.

5) Pruebas de adsorción de radón en las paredes de metal a temperatura ambiente. Se debe asegurar que la totalidad del ^{222}Rn se condensa en la superficie elegida y no en las paredes de la cámara. También es necesario garantizar que la restitución de la fuente al patrón secundario (regasificación) sea total. Como hay pocos estudios sobre la adsorción de radón en paredes de metal a temperatura ambiente es difícil predecir de forma general el comportamiento del radón. El fenómeno será estudiado en nuestras condiciones de medida.

6) Análisis espectral. Utilización de los algoritmos que se desarrollen para el ajuste de los espectros alfa, para de esta forma poder cumplir con las pruebas del punto 4) y con el fin último de obtener la tasa de emisión y la actividad del radón. Estudio prolongado en el tiempo.

7) La calibración de los instrumentos de medida de radón se realiza en el interior de cámaras que contienen atmósferas controladas de radón a distintos niveles de concentración y para las distintas condiciones ambientales con las que trabajan los equipos de medición [4]. La ventaja de disponer de un patrón primario de radón junto con la cámara de atmósfera controlada es la posibilidad de introducir en la cámara una actividad conocida de radón obtenida de su medida en el patrón primario y su posterior transferencia a la cámara. Como se ha dicho anteriormente, estas cámaras pueden tener volúmenes interiores muy variables dependiendo de las prestaciones que se planteen. Las cámaras grandes, destinadas no solo a calibración sino también a investigación, requieren disponer de un gran espacio y recursos para su montaje y mantenimiento. Dado que en España ya se dispone de una cámara de estas características, la opción que el LMRI está planteando es la de una cámara pequeña, que permita el acceso de una persona y que pueda alojar tres soportes para trabajar con tres monitores de detección de radón simultáneamente. La geometría y dimensiones que se proponen son un cilindro de 1,10 m de diámetro y 2 m de altura, paredes interiores de acero inoxidable para prevenir la difusión del radón y aislada exteriormente para ayudar al mantenimiento de temperatura constante. La cámara estará dotada de un sistema de regulación de temperatura y presión, a la vez que se garantiza la homogeneidad de la atmósfera en su interior. El control de las sondas y medidores se hará de forma automática y se almacenarán todos los registros. A su vez, la cámara dispondrá de dos sistemas de introducción de radón: 1) a través de un bulbo de recolección del radón (patrón secundario) medido en el patrón primario, 2) mediante una conexión directa con la fuente de radio y un divisor de flujo. El diseño y construcción de una cámara de estas características requiere un cuidadoso control de los materiales, las soldaduras, las conexiones

de las sondas y sistemas de introducción de radón, de las compuertas de acceso de personas y equipos y de todos aquellos aspectos que puedan afectar a la hermeticidad de la cámara y a la homogeneidad de la atmósfera de radón.

3. RESULTADOS

Los resultados del presente proyecto van a suponer la creación de un nuevo laboratorio de referencia nacional de radón. De esta forma, se cubriría un vacío existente en la infraestructura metrológica nacional y se prestaría un servicio importante a las empresas españolas y a la sociedad en su conjunto, evitando que tengan que recurrir a patrones nacionales de otros países para obtener su trazabilidad a un Instituto Metrológico Nacional. Con el objetivo de obtener reconocida la capacidad de medida y calibración de radón se prevé la participación en una intercomparación de medida de ampollas de radón organizada en colaboración con el Bureau International des Poids et Mesures (BIPM)[11].

El desarrollo de la técnica de producción de fuentes calibradas de radón y su uso en la construcción de la pirámide metrológica ligada a este gas, garantiza la trazabilidad a todos los niveles de las medidas de radón en nuestro país, siendo así una infraestructura, si no pionera en Europa, sí una de las pocas que podrán garantizar la trazabilidad de todo el proceso, colaborando en condiciones de igualdad con los organismos semejantes de otros países y, sobre todo, dando fiabilidad a las medidas y estudios que se realicen en España.

3.1 Plan de difusión

Teniendo en cuenta la dilatada experiencia de todos los investigadores integrantes del presente proyecto, involucrados en el ámbito de la medida de radiaciones ionizantes, y en particular en la calibración de actividad, se prevé que los resultados obtenidos sean publicados en revistas internacionales indexadas en el *Journal Citation Report* (JCR). También se prevé asistir a congresos nacionales e internacionales relacionados con las radiaciones ionizantes, y en todos aquellos foros de difusión en los que haya una gran participación de científicos y empresas del ámbito, como los organizados por la Sociedad Española de Protección Radiológica (SEPR) y el *International Committee for Radionuclide Metrology* (ICRM), en el que los integrantes del equipo de investigación del proyecto participan de forma activa.

3.2 Plan de transferencia de resultados

Dadas las características del LMRI, laboratorio asociado al CEM, es imprescindible que los resultados del proyecto puedan resultar en una transferencia tanto al sector público como al sector privado, en especial a las empresas y laboratorios acreditados para las medidas de radón que en estos momentos se están trazando a laboratorios extranjeros. De hecho, se ha establecido contacto con algunas universidades y empresas de equipamiento científico que han manifestado su interés como potenciales usuarios de los patrones de radón.

4. CONCLUSIONES

El CIEMAT ha comenzado el proyecto de construcción del Laboratorio de Radón para lo cual ha adquirido la fuente de Ra226 y gran parte del equipamiento necesario. Está en estudio la adaptación de una sala que albergue dicha infraestructura. Ha comenzado la construcción de la cámara de vacío. En paralelo se está procediendo a la redacción de la memoria descriptiva y de todos los documentos preceptivos para la autorización de funcionamiento por parte del CSN. Esta labor se está haciendo conjuntamente con el estudio de la sala elegida.

5. REFERENCIAS

- [1] DIRECTIVA 2013/59/EURATOM DEL CONSEJO de 5 de diciembre de 2013.
- [2] IS-33 CSN, BOE nº 22 de 26 de enero de 2012
- [3] Grossi C., Arnold D., Adame J.A., López-Coto I., Bolívar J.P., de la Morena B.A., Vargas A., 2012. *Atmospheric ²²²Rn concentration and source term at El Arenosillo 100 m meteorological tower in southwest Spain*. Radiation Measurements 47, 149-162.
- [4] Guía de Seguridad 11.01, CSN (2010)
- [5] Vargas A., Ortega X., Martín Matarranz J.L.. 2004. *Traceability of radon-222 activity concentration in the radon chamber at the technical university of Catalonia (Spain)*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 526, 501–509.
- Optimisation*”, Marcel Dekker, Nueva York, 1998.
- [6] Picolo J.L., 1995. *Etude et réalisation d'un dispositif cryogenique permettant d'effectuer des mesures absolues d'activite de radon 222 en vue de l'elaboration d'un etalon primaire*. Rapport CEA-R-5696. Commissariat d l'energie Atomique - France.
- [7] Picolo J.L., 1996. *Absolute measurement of radon 222 activity*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 369, 452-457.
- [8] Kim B.C., Lee K.B., Park T.S., Lee J.M., Lee S.H., Oh P.J., Lee M.K., Ahn J.K., 2012. *Development of the primary measurement standard for gaseous radon-222 activity*. Applied Radiation and Isotopes 70, 1934–1939.
- [9] Spring P., Nedjadi Y., Bailat C., Triscone G., Bochud F., 2006. *Absolute activity measurement of radon gas at IRA-METAS*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 568, 752–759.
- [10] Paul A., Honig A., Röttger S., Keysera U., 1999. *Measurement of radon and radon progenies at the German radon reference chamber*. Applied Radiation and Isotopes 52, 369-375.
- [11] De Felice P., 2007. *Primary standards of radon*. Metrologia 44, S82–S86.
- [12] Michotte C., Ratel G., Cassette P., 2012. *Update of the BIPM.RI(II)-K1.Rn-222 comparison of activity measurements for the radionuclide ²²²Rn to include the LNE-LNHB, France*. Tech. Suppl. 06001.