
Parámetros de Calibración del Sistema de Medición de ^{222}Rn Basado en LR-115

M. L. García, F. Mireles, L. Quirino, I. Dávila, F. Lugo, J. L. Pinedo,

Centro Regional de Estudios Nucleares
Universidad Autónoma de Zacatecas
Ciprés 10; Frac. La Peñuela; Zacatecas, Zac. 98068. México
mluisagb@hotmail.com

A. Chávez

Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares
Apdo. Postal 18-1027, 11801 México, D.F., México
acb@nuclear.inin.mx

Resumen

Desde que la técnica SSNTD (Solid State Nuclear Track Detection) fue descubierta ha sido usada como método pasivo para la detección de partículas subnucleares en gran variedad de campos de la ciencia. El uso de la técnica en mediciones de ^{222}Rn en aire ya ha sido establecido implicando mejores metodologías en la exposición al medio ambiente hasta su proceso de grabado y lectura. La técnica SSNTD es un método por comparación ya que el material puede ser usado una sola vez, por lo tanto requiere de calibración en una atmósfera de radón controlada, utilizando estándares calibrados. El objetivo de este trabajo es mostrar la calibración de los dispositivos utilizados como monitores de radón basados en SSNTD. El material usado como SSNTD es LR-115 II. La estandarización de los parámetros usados en la exposición a radón en aire, proceso de grabado y lectura, se basan en la respuesta del LR-155 II, el arreglo del dispositivo, velocidad de grabado y principalmente el factor de calibración. Se consideran dos tipos de monitores: 1. cámara abierta y cámara cerrada, la diferencia entre los factores de calibración de ambas cámaras es el porcentaje de los descendientes del radón en la cámara abierta. Los parámetros estandarizados son voltaje de operación del sistema de conteo; temperatura, tiempo y concentración de la solución de grabado; y espesor.

1. INTRODUCCIÓN

Por millones de años las trayectorias de los rayos cósmicos y de varios productos de decaimiento radiactivo han sido grabadas en infinidad de sólidos por ocurrencia natural [1]. A mediados del siglo veinte este fenómeno fue notado en medio de experimentos sobre la coloración inducida en cloruro de potasio con fragmentos de fisión retardados por la composición del cristal, cuyo paso producía daños latentes [2]; seguido por aplicaciones en mediciones de partículas subnucleares mediante visualización y

análisis de los daños que ellas producen principalmente en materiales no conductores de electricidad [1,3]. Los defectos o daños encontrados en los materiales recibieron el nombre de trazas nucleares, que consisten en huellas estrechas que las partículas producen a su paso por el material [2,4]. La traza nuclear se hace visible después de un ataque químico o desgaste superficial, este es el método más sencillo y más utilizado para grabar el daño latente de las trayectorias de las partículas en los sólidos [3,5,6]. Finalmente su lectura permite conocer las características y formas geométrica de la traza, las cuales brindan la información a cerca de la energía, masa y tipo de partícula que interactuó con el material [4].

Una de sus aplicaciones importantes es la medición de radón ^{222}Rn implementada desde los 70s, permitiendo hacer mediciones a gran escala, i.e. mediciones simultaneas en gran cantidad de lugares, por periodos de tiempo largo y repetición de las mediciones en los mismos lugares, dando lugar una mejor estimación en los niveles de radón en determinada zona geográfica [7]. Los materiales SSNTD sólo pueden usarse una vez y los más populares para medición de ^{222}Rn en los últimos años son Nitrato de Celulosa LR-115 de 12 μm de espesor [5,8] y Policarbonato CR-39 de 600 μm [9,10], la característica que marca la diferencia en cada uno de ellos es su espesor. El primero tiene un intervalo de detección en energía específico que depende del rango de las partículas alfa en el material, si el rango de la partícula es muy grande puede atravesar el material sin producir daño y si es muy pequeño la traza puede desaparecer después del grabado, debido al espesor del nitrato de celulosa, el manejo se dificulta, disminuyendo la sensibilidad de detección del material, característica que el segundo no tiene [11,12].

La aplicación de la técnica SSNTD en mediciones de radón requiere de procedimientos de verificación y calibración por ser un método de comparación, considerando que esto es un factor fundamental e importante en la confiabilidad de las mediciones [13]. Una buena aproximación de la relación que existe entre las trazas contadas y la concentración de radón presente en el aire puede establecerse exponiendo el arreglo basado en SSNTD utilizado en la medición de radón a una concentración de radón controlada y producida por una fuente de emanación de radón calibrada [14,15,16].

En este trabajo se presenta la calibración de los dispositivos basados en SSNTD utilizados en medición de radón en aire, así como la estandarización de los parámetros utilizados en el grabado y lectura de las trazas para la película LR-115 II.

2. MATERIALES

2.1. Monitores de Radón

Las concentraciones de ^{222}Rn en aire son determinadas midiendo las trazas que las partículas alfa producen al ser emitidas en su decaimiento radiactivo [14]. Las trazas de partículas alfa producidas en la película LR-115 II, usada como el SSNTD en este

trabajo, pueden ser contadas después del grabado en un sistema de conteo semiautomático basado en chispeo eléctrico. Para medición de la concentración de radón en aire interior y exterior se coloca una pieza de LR-115 II de 2.5 cm x 3.0 cm en un recipiente de capacidad de 355 mL como se muestra en la Figura 1. Este monitor está basado en el principio de una cámara de difusión [14,17]. Mientras los isótopos del radón de vida media corta ^{220}Rn ($T_{1/2} = 56$ s) y ^{219}Rn ($T_{1/2} = 219$ s) decaen en la vecindad de la cámara de difusión, el ^{222}Rn ($T_{1/2} = 3.8$ d) de vida media más larga tiene mayor probabilidad de alcanzar la difusión en la cámara y ser registrado en la pieza de LR-115 por medio de la partícula alfa que emitió al decaer. Para esta cámara de difusión se consideran dos casos: 1. Cámara abierta. 2. Cámara cerrada. En el segundo caso de la cámara cerrada, la apertura del recipiente se cubre con un filtro permeable al radón, pero no para sus descendientes de vida media corta ^{218}Po ($T_{1/2} = 3.05$ min) y ^{214}Po ($T_{1/2} = 15 \times 10^{-6}$ s) emisores de partículas alfa; el espesor del filtro es $12 \mu\text{m}$ [4,17,18]. La calibración experimental del monitor con filtro (Cámara cerrada) y sin filtro (Cámara abierta) es obtenida por medio de un factor en ambos casos.

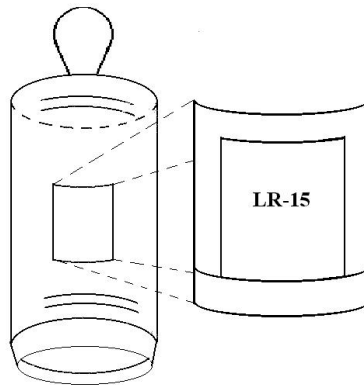


Figura 1. Geometría del monitor de radón que presenta la cámara y el detector LR-115 II

El material usado en los monitores (cámaras de difusión) descritos anteriormente es el LR-115 II desprendible de la base cuando está mojado [5], que consiste de tres capas: una sensible de Nitrato de Celulosa (NC) color rojo de $12.6 \pm 0.7 \mu\text{m}$, una capa delgada que cubre la parte sensible de $0.05 \mu\text{m}$ y un soporte de poliéster (P) y un soporte de poliéster transparente de $99.7 \pm 1.2 \mu\text{m}$, que juntos median $112.4 \pm 1.2 \mu\text{m}$ según nuestras observaciones [3,5,14]. Como control de calidad el espesor del nitrato de celulosa se midió con un micrómetro digital Mitutoyo que tenía una sensibilidad de \pm una micra, medido en 5 diferentes lugares de las piezas de LR-115, antes de su grabado [14,17].

2.2 Fuentes de Irradiación

Se utilizaron dos fuentes emisoras de partículas alfa para medir la respuesta del LR115 a las partículas alfa: una fuente de ^{226}Ra con actividad de 43.16 Bq que en su decaimiento se produce ^{222}Rn con un factor de emanación de 0,884, manufacturadas por el NIST (National Institute of Standards and Technology) [18], y una fuente triple que contiene una mezcla de radionúclidos, ^{241}Am , ^{244}Cm y ^{239}Pu , con una actividad de 5.5 KBq (0.15 μCi). En una cámara de vacío se expusieron a una distancia de cm piezas de LR-115 de $2 \times 3 \text{ cm}^2$ durante 3 min al flujo de partículas alfa de la fuente triple y en un contenedor cerrado de volumen $V = 3996 \text{ ml}$ conteniendo a la fuente de emanación NIST se irradiaron los monitores de radón durante 2, 4, 5, 6 y 8 días.

2.2. El Grabado de las Trazas

El grabado de las trazas producidas en la película se realiza por inmersión en una solución de NaOH 2.5 N a temperatura de $60 \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$, regulada mediante un baño María con termostato Tral-1M del Khlopin Radium Institute, dispositivo controlador de temperatura [19].

2.3. Lectura por Chispeo o Arqueo Eléctrico

Después del grabado de las películas, se observan perforaciones en el material que pueden ser contadas por medio de chispeo eléctrico. El chispeo o arco eléctrico ocurre cuando se le aplica un voltaje al LR115 que es un dieléctrico entre dos electrodos. La diferencia de voltaje entre ambos electrodos generan un rompimiento en las zona donde existe una traza [4]. El conteo de las trazas en el material se realiza en dos etapas de operación: rompimiento y conteo. El rompimiento, consistió de aplicar 750 volts para producir el chispeo en trazas nucleares y potenciales trazas nucleares y para obtener un número máximo de trazas, por eso no puede ser usado como conteo; la etapa de conteo se lleva a cabo a un voltaje menor 600 volts estos valores fueron determinados previamente [20]. En este trabajo se utilizó el sistema de conteo por chispeo eléctrico "AIST-2V" manufacturado por Khlopin Radium Institute [21].

3. METODOLOGÍA

De las 120 películas irradiadas con la fuente triple, 60 fueron utilizadas para determinar la velocidad de grabado a diferente temperatura (50° , 60° y 70°C) y concentración de la solución constante (2.5N): se grabaron 20 películas para cada temperatura en tiempo de grabado variable y 60 fueron grabadas en solución de NaOH a diferente concentración 2, 2.5 y 3 N) y temperatura constante 59°C : se grabaron 20 películas para cada concentración en tiempo de grabado variable.

El espesor y tiempo de grabado de las películas se obtiene grabando a tiempo variable en pasos de 20 minutos un grupo de 20 películas irradiadas con la fuente triple. Utilizando solución de NaOH a 2.5 N (10 %) y temperatura de 60° C.

Las películas irradiadas en la cámara de concentración de radón durante 2, 4, 6 y 8 días se grabaron junto con otras seis que corresponden al fondo del manejo de este grupo de películas, en una solución de NaOH a 2.5 N (10%), a temperatura 59° C, durante 110 min.

En cada caso, las películas se enjuagaron en agua limpia para retirar restos de NaOH y finalmente se mide el espesor y se obtiene la razón de conteo para cada película, utilizando voltaje de rompimiento 750 V y de conteo 600 V.

4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

4.1. Velocidad de grabado

Los valores para la velocidad de grabado se encuentran en la Tabla II. Puede notarse que en grabado a 70 °C solución 2.5 normal y 59 °C y solución 3 N el desgaste es más rápido disminuyendo la respuesta y la eficiencia de la película, ya que el desgaste es tan rápido que la mayoría de las trazas no alcanzan a formarse o pueden ocurrir daños que no son trazas, presentando confusión. A 59 °C y 50 °C, solución 2.5 N y 2 N y 2.5 N a 59 °C el grabado es más lento y por lo tanto más confiable. De estos resultados se aprecia la respuesta de la película variando los parámetros y para este trabajo se eligieron 59 °C y solución de NaOH a 2.5 (10%), porque la respuesta ha sido confiable y además porque son los valores estándar que se utilizan para grabado de películas LR-115 aplicadas en medición de radón [22,23].

Tabla II. Velocidad de grabado a temperatura y concentración de la solución de grabado variables.

		Velocidad de desgaste superficial ($\mu\text{m}/\text{h}$)	Velocidad de grabado de las trazas (tr/h)
Temperatura	50° C	2.16 ± 0.03	32 ± 5
	59° C	2.83 ± 0.03	117 ± 16
	70° C	23.1 ± 0.5	317 ± 36
Concentración de NaOH	2 N	3.05 ± 0.01	137 ± 10
	2.5 N	3.14 ± 0.01	143 ± 16
	3 N	4.70 ± 0.02	156 ± 25

4.2. Espesor y tiempo de grabado

La Figura 3 Muestra la relación que hay entre espesor y densidad de trazas para la película LR-115. Se encontró que alrededor de $6\mu\text{m}$ se encuentra una respuesta confiable, las trazas que se encuentran en esa región es el mayor número, porque lo que hay antes no es suficiente y lo que hay después puede ser muy irregular debido a que el manejo de las películas se dificulta. Por lo tanto el tiempo de grabado al cual se obtiene este espesor es 110 min, y es al que se trabajarán los siguientes experimentos, controlando el espesor en cada película, el cual debe ser muy cercano a $6\mu\text{m}$.

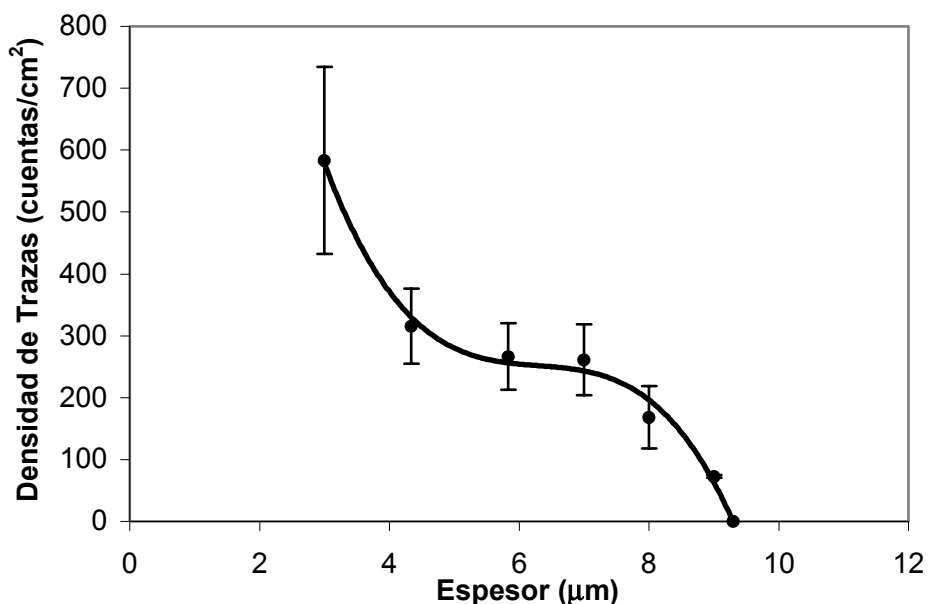


Figura 3. Comportamiento de la densidad de trazas en función del espesor.

4.3. Coeficiente de Calibración

En esta parte se presentan los promedios y errores asociados de los conteos de cada grupo de películas correspondientes a las cámaras abierta y cerrada para cada día de irradiación. A dichos promedios se les resta el promedio del fondo del manejo de las películas y se normalizan de acuerdo al tiempo de acumulación para obtener densidad de trazas por día ($\text{tr}/\text{cm}^2 \text{d}^{-1}$). Para cada grupo se hace una curva que relaciona concentración de radón promedio y densidad de trazas para cada uno de los tiempos de irradiación: 2, 4, 6 y 8 días [14], como muestran las Figuras 4 a) y 4 b). La línea recta de las Figura 4 a) cámara abierta (sin filtro) y b) cámara cerrada (con filtro) muestra los resultados obtenidos en la irradiación de acuerdo a los diferentes tiempos de acumulación. El espesor promedio para el grupo de películas fue $5.8 \pm 0.2 \mu\text{m}$. La ecuación de ambas rectas se encontró por medio de regresión lineal, en ambas figuras se muestra la ecuación obtenida y el factor R^2 [11,24]. El factor de calibración de las

cámaras de difusión es entonces la pendiente de ambas rectas, para la cámara abierta $k = 0.0350 \pm 0.0023 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$ y para la cámara cerrada $k = 0.0282 \pm 0.0010 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$. De acuerdo a la relación $C_{Rn} = \rho/k$, cuando se tienen solamente densidad de trazas por día se utilizan estos factores para la conversión a concentración de radón promedio [24].

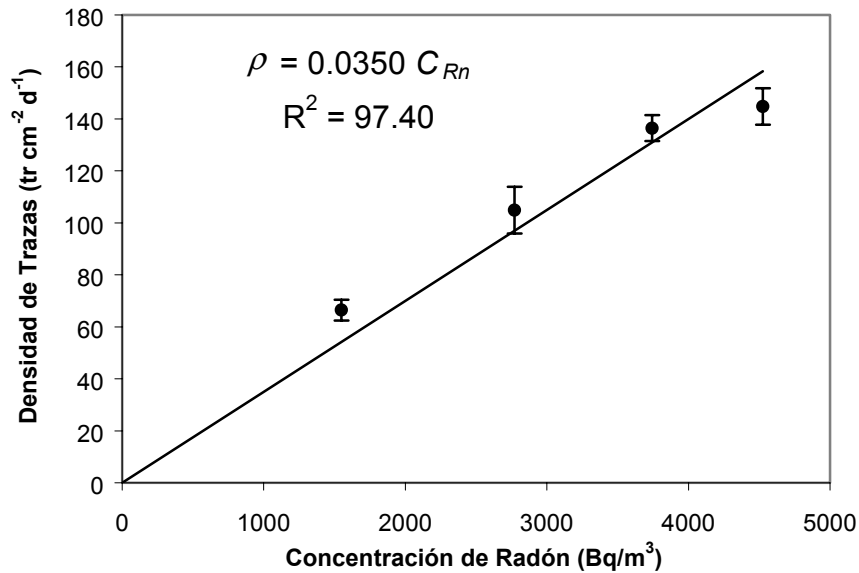


Figura 4 (a)

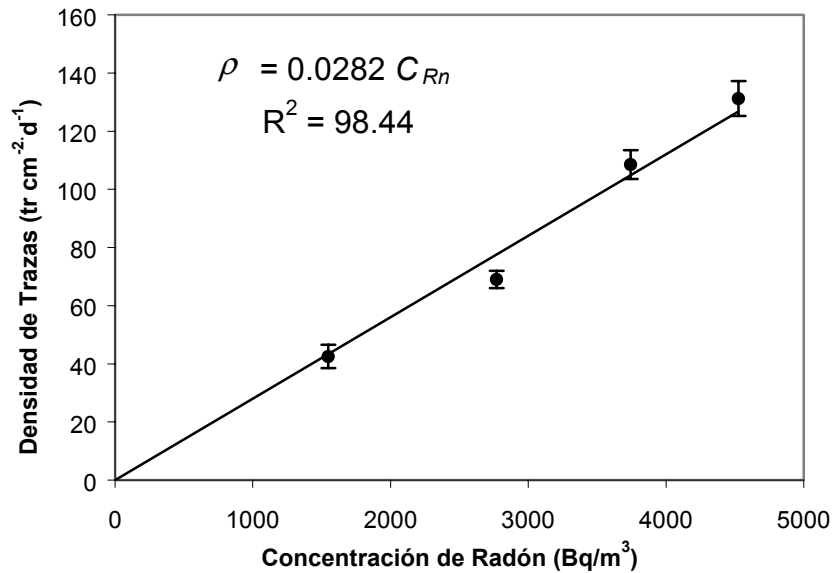


Figura 4 (b)

Figura 4. Factores de calibración experimental de las cámaras de difusión de radón basados SSNTD para (a) cámara abierta y (b) cámara cerrada.

5. CONCLUSIONES

Los valores obtenidos para los factores de calibración se ajustan estadísticamente a los utilizados en los trabajos de Planinić: $0.0285 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (1992), Segovia et al.: $0.02 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (1993) y Franco-Marina et al: $0.027 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (2001) [23,24,25].

En este trabajo la calibración de los parámetros de tratamiento y lectura de las películas LR-115 para medición de radón quedan estandarizadas y son las que se usarán para determinar los niveles de la concentración de radón en aire. Los parámetros son los siguientes:

Irradiación: Factor de conversión a Concentración de radón para la cámara de radón con filtro $0.0282 \pm 0.0010 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$ y para la cámara sin filtro $0.0350 \pm 0.0023 \text{ Bq}^{-1} \text{ m}^3 \text{ tr cm}^{-2} \text{ d}^{-1}$, normalizando los valores de conteo para las trazas en días. **Grabado:** Concentración de la solución a 2.5 N (10 %) de NaOH, temperatura 59°C y tiempo de grabado 110 min, obteniendo un espesor promedio de $6 \mu\text{m}$. **Lectura:** Voltaje de rompimiento 750 V y voltaje de conteo 600 V, considerando el área de conteo de 1 cm^2 .

La comparación de los factores de calibración de la cámara cerrada a la cámara abierta hay una diferencia de 24.1 % debido a la contribución de los emisores de partículas alfa de la progenia del ^{222}Rn .

AGRADECIMIENTOS

A CONACYT Sivilla por el apoyo financiero parcial, mediante contrato número 20000402005-1, a la Dirección de Regulación Sanitaria de la SSZ y a IMSS-Solidaridad Zacatecas por el apoyo brindado. Al ININ y al CIMAV por las facilidades brindadas para la realización de este trabajo.

REFERENCIAS

1. Fleisher, R.L.; Price, P.B.; Walker, R.M. "Nuclear Tracks in Solids". *Scientific American*. **220**, 30-39 (1969).
2. Young, D.A. "Etching of radiation damage in lithium Fluoride". *Nature*. **4632**, 375-377 (1958).
3. Aharmim, B.; Sabir, A.; Marah, H. "Intrinsic efficiency of LR-115 in alpha particles detection: simulations and experiments". *Radiat. Meas.* **35**, 307-313 (2002).
4. Espinosa, G. *Trazas nucleares en sólidos*. IFUNAM. 1ª edición. México D.F., México (1994).
5. Enge, W. "Introduction to plastic nuclear Track detectors". *Nucl. Tracks*. **4**, 283-308 (1980) .

6. Husaini, S.N.; Khan, E.U.; Khattak, N.U.; Qureshi, A.A.; Malik, F.; Qureshi, I.E.; Karim, T.; Khan, H.M. "The study of crystalline etch products of CR-39". *Radiat. Meas.* **35**, 3-5 (2002).
7. Yaprak, G. "Indoor ^{222}Rn concentrations in the vicinity of a Turkish coal-fired power plant". *J. Environment. Radioactivity.* **46**, 131-135 (1999).
8. Siems, M.; Freyer, K.; Treutler, H.C.; Jonson, G.; Enge, W. "Experimental study on the aging process of the LR-115 cellulose nitrate Radon detector". *Radiat. Meas.* **34**, 81-84 (2001).
9. Espinosa, G.; Gammage, R.B.; Meyer, K.E.; Dudney, C.S. "Nuclear Track analysis by digital imaging". *Radiat. Prot. Dosim.* **66**, 363-366 (1996).
10. Espinosa, G.; Golzarri, J.I.; Rickards, J.; Gammage, R.B. "Distribution of indoor radon levels in Mexico". *Radiat. Meas.* **31**, 355-358 (1999).
11. Nikezic, D.; Markovic, P.; Uzarov, D.B. "Calculating the calibration coefficient for radon measurements with the bare LR 115-II track detector". *Health Phys.* **62**, 239-244 (1992).
12. Jonson, G.; Helborg, R. "The exposure of plastic films and their response to 1.3-5.5 MeV helium ions". *NIM Phys. Research* **B63**, 399-406 (1992).
13. Oda, K.; Csige, I.; Henke, R.P.; Benton, E.V. "A new method for internal calibration of nuclear track detectors". *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **20**, 505-510 (1992).
14. Gericke, C.; Ghose, R.; Jonson, G.; Freyer, K.; Treutker, H.-C.; Enge, W. "The calibration of the solid state nuclear track detector LR 115 for radon measurements". *Radiat. Meas.* **31**, 363-366 (1999).
15. Amgarou, K.; Font, Ll.; Albarracín, D.; Domingo, C.; Fernández, F.; Baixeras, C. "Semiautomatic evaluation system for nuclear track detectors applied to radon measurements". *Radiat. Meas.* **33**, 203-209 (2001).
16. Misdaq, M.A.; Ezzahery, H.; Lamine, J. "Influence of the building material and ventilation rate on the concentration of radon, thoron and their progenies in dwelling rooms using SSNTD and Monte Carlo simulation". *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **252**, 67-74 (2002).
17. Miles, J. "Quality assurance for passive radon measurements". *Appl. Radiat. Isot.* **43**, 87-93 (1992).
18. Kotrappa P.; Stieff, L.R. "Application of NIST ^{222}Rn emanation standards for calibrating ^{222}Rn monitors". *Radiat. Prot. Dosimetry.* **55**, 211-218 (1994).
19. Nikolaev, V. A.; Gromov, A.V. and Vorobiov, I.B. "The device for track detectors etching "Tral-1M". Description and Operating instructions". V. G. Khlopin Radium Institute. St.- Petesburg, Rusia (2001).
20. Garcia, M.L.; Quirino, L.L.; Mireles, F.; Dávila, J.I.; Pinedo, J.L.; Lugo, J.F.; Vadillo, V.E.. Voltaje de operación del sistema de conteo de trazas nucleares en sólidos. *Memorias de la XV Conferencia Internacional de Dosimetría de Estado Sólido, Zacatenco, México* (2002) 159-163.
21. Nikolaev, V. A.; Gromov, A.V. and Vorobiov, I.B. "Automated spark counter of tracks "Aist-2V". Description and Operating instructions". V. G. Khlopin Radium Institute. St.- Petesburg, Rusia (2001).
22. Nikezic, D.; Janićijević, A. "Bulk etching rate of LR115 detectors". *Appl. Radiat. Isot.* **57**, 275-278 (2002).

23. Franco-Marina, F.; Segovia, N.; Ruiz, W.; Godinez, L.; Tavera, L.; Lopez.A.; Chavez, A.; Peña, P.; Ponciano, G. "Short and long term indoor radon survey in México City". *Radiat. Meas.* **34**, 545-548 (2001).
24. Planinic, J. "²²²Rn detection efficiency and sensitivity of the LR 115-II nuclear track detector". *Health Phys.* **62**, 356-358 (1992).
25. Segovia, N.;Peña, P.; Mireles, F.; Dávila, I. and Quirino, L. "Radon concentration levels in dwellings and mine atmospheres in Mexico". *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **22**, 445-448 (1993).