

# Le Radon

## Origine – Détection - Capture

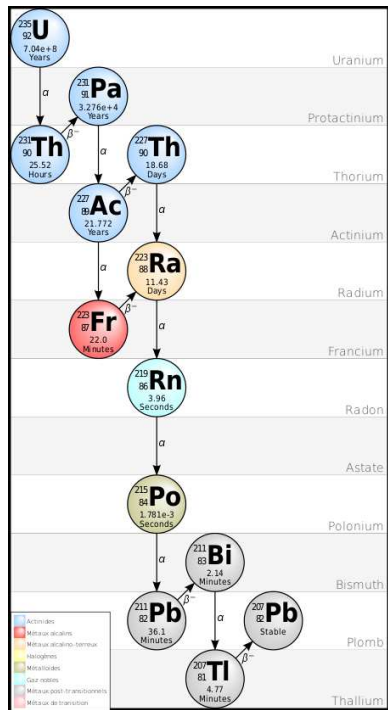
*(Une rapide et incomplète introduction)*

Jose Busto  
CPPM / Univ. Aix-Marseille

IPNL - 23/11/2018

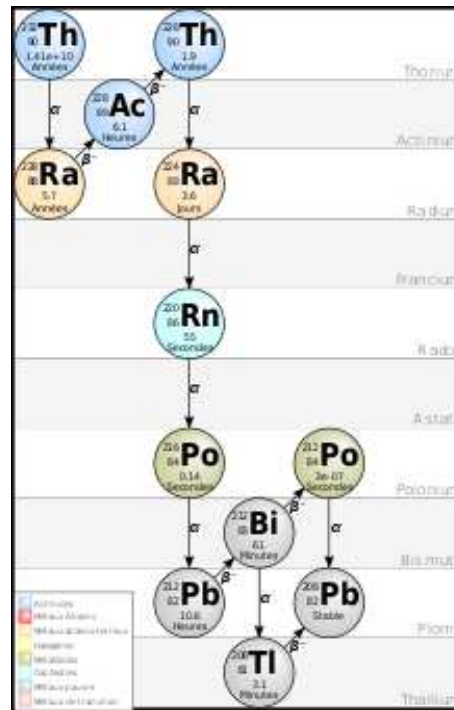
# Origine

Le radon est un gaz noble, naturel, radioactif, produit dans les chaînes de l'U et du Th

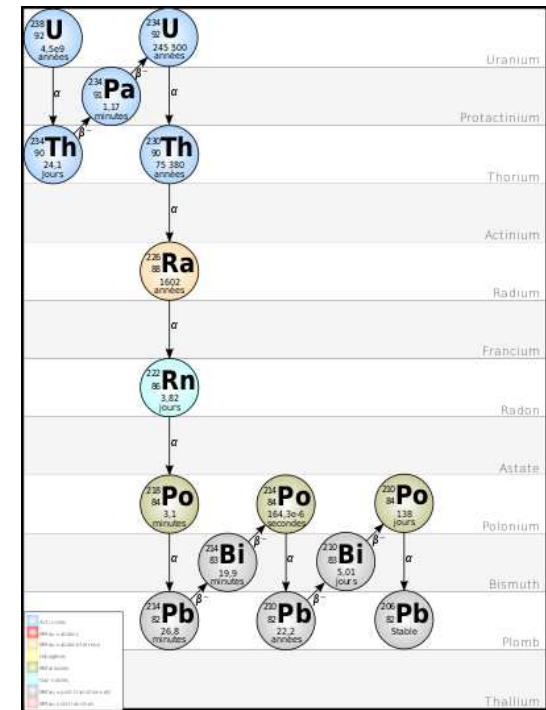


$^{219}\text{Rn}$  (3.96 s)

Injecteur à e<sup>-</sup> dans Katrin

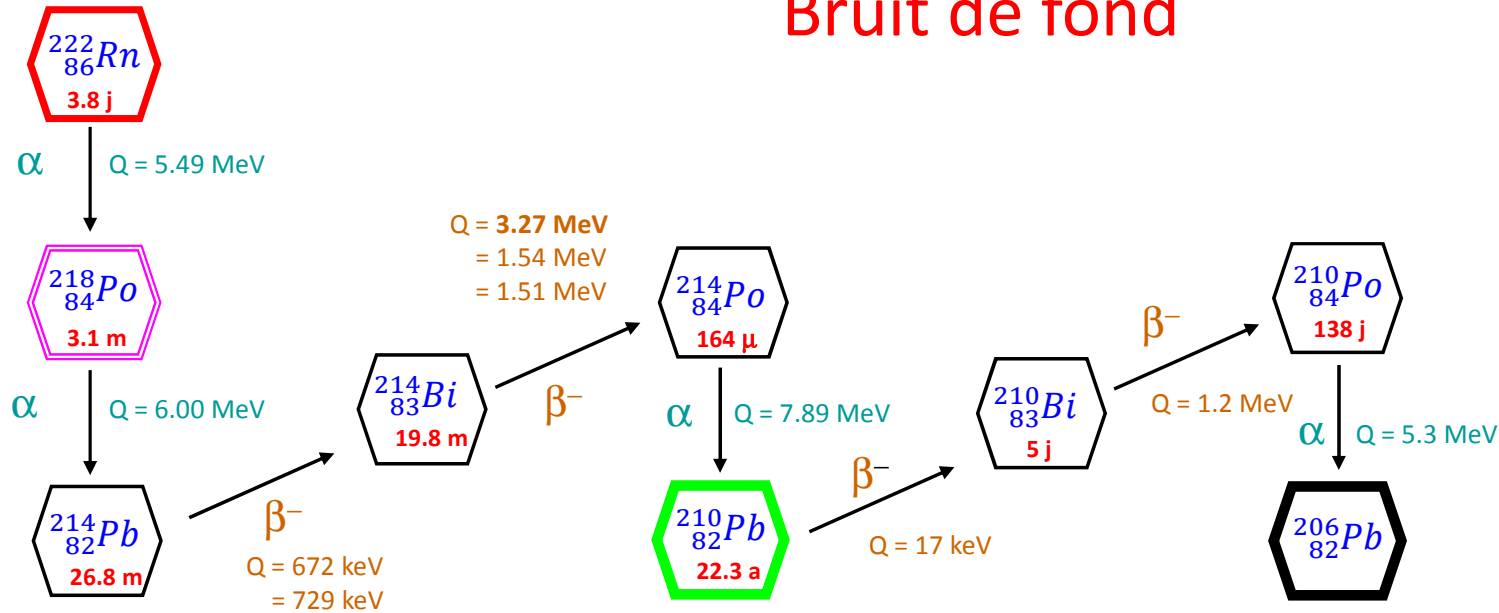


$^{220}\text{Rn}$  (55 s)



$^{222}\text{Rn}$  (3.82 j)

# Bruit de fond

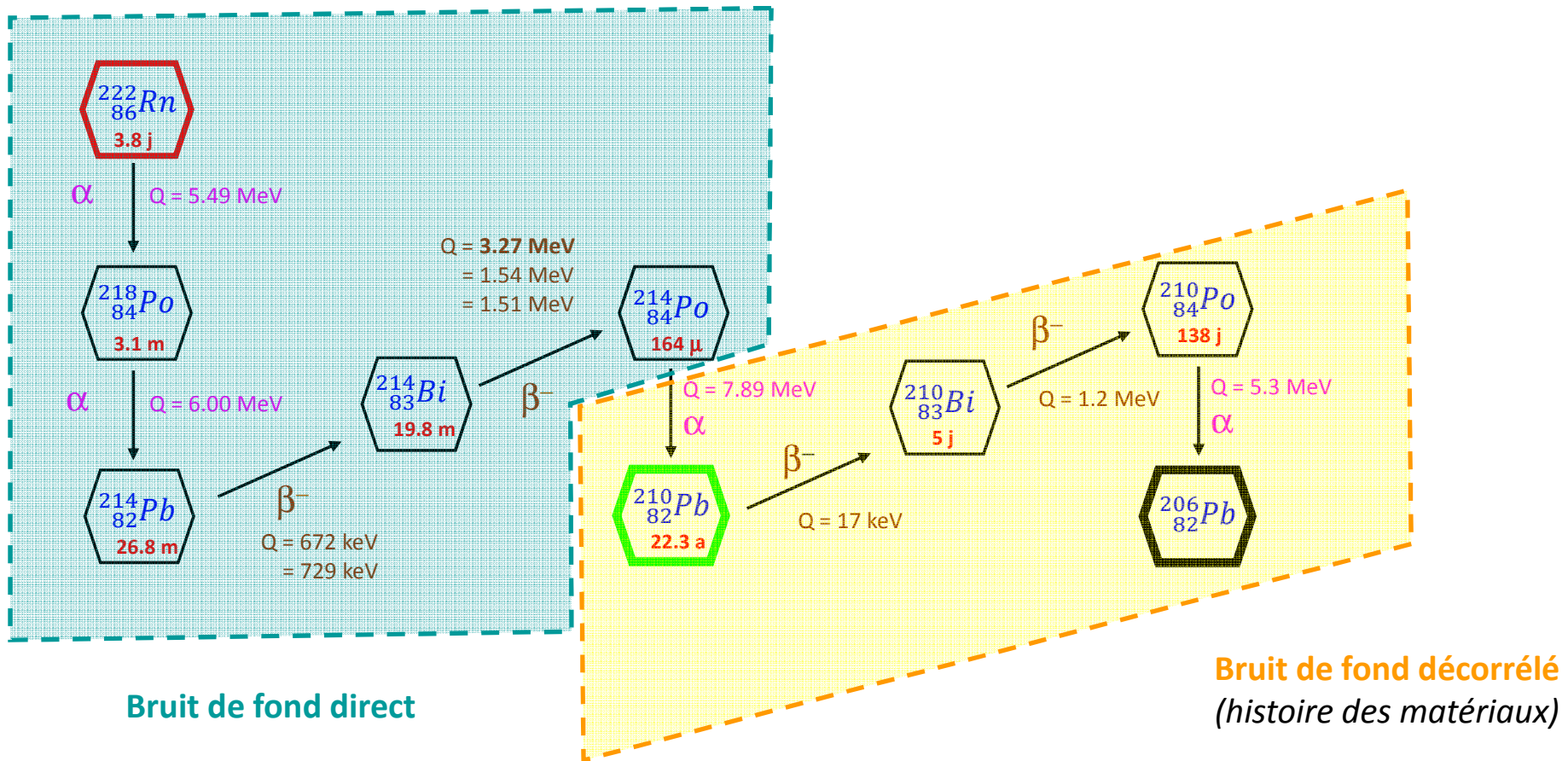


$\alpha$	5 à 8 MeV
$\beta$	$\leq 3.27 \text{ MeV}$
$\gamma$	$\leq 2.20 \text{ MeV}$
Recul noyau	$\sim 100 \text{ keV}$

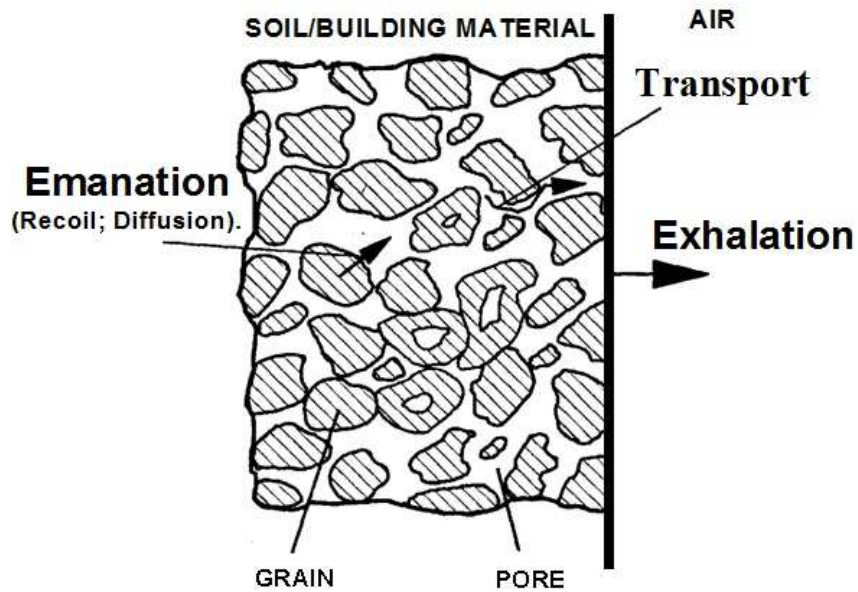
←  $\beta\beta$  decay

← MIMAC

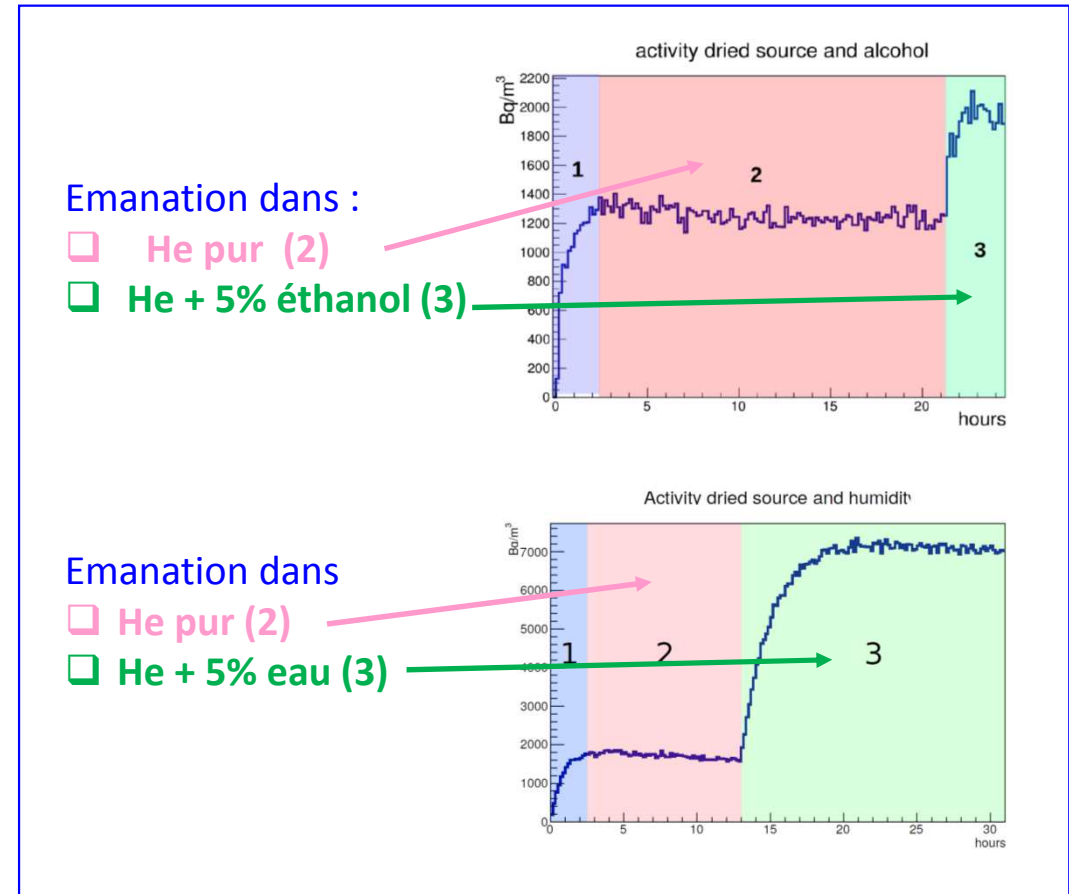
# Deux composantes de bruit de fond



# Emanation



Dépendance avec : la porosité,  
 : l'état de surface  
 : température  
 : milieu environnant \*  
 : etc



# Emanation



Bordeaux emanation setup

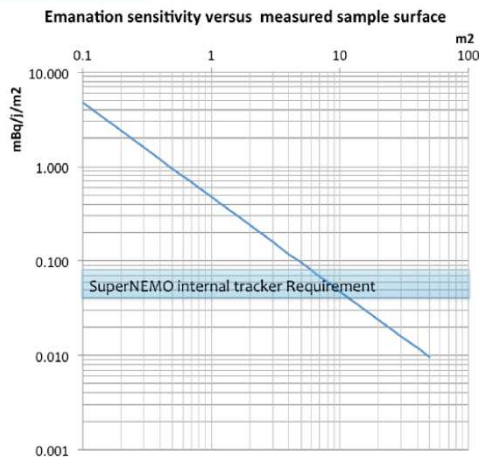
Chambre d'émanation 700 L (N<sub>2</sub>)  
CENBG



Dispositif d'émanation q.q. cm<sup>3</sup> (vide)  
MPK - Heidelberg

<sup>222</sup>Rn emanation rates for different samples

Sample description	<sup>222</sup> Rn emanation rate
Copper foil	$(1.7 \pm 0.2) \mu\text{Bq m}^{-2}$
Copper foil rinsed with distilled water	$(1.2 \pm 0.2) \mu\text{Bq m}^{-2}$
TIG welds, not treated	$(0.36 \pm 0.04) \text{mBq m}^{-1}$
TIG welds, etched and passivated	$< 0.1 \text{mBq m}^{-1}$
TIG welds, electropolished	$(0.10 \pm 0.04) \text{mBq m}^{-1}$
TIG welds, electropol, etched and passivated	$< 0.04 \text{mBq m}^{-1}$
Carbosieve <sup>TM</sup> S111 (820 m <sup>2</sup> /g)	$(0.67 \pm 0.17) \text{mBq kg}^{-1}$



Le plus souvent émanation dans le vide ou dans l'N<sub>2</sub> ou l'air

➔ Emanation dans le gaz ou liquide de détection ??

➤ Très abondante littérature : <https://deapclean.org/radon/>

# Emanation

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A329 (1993) 291–298  
North-Holland

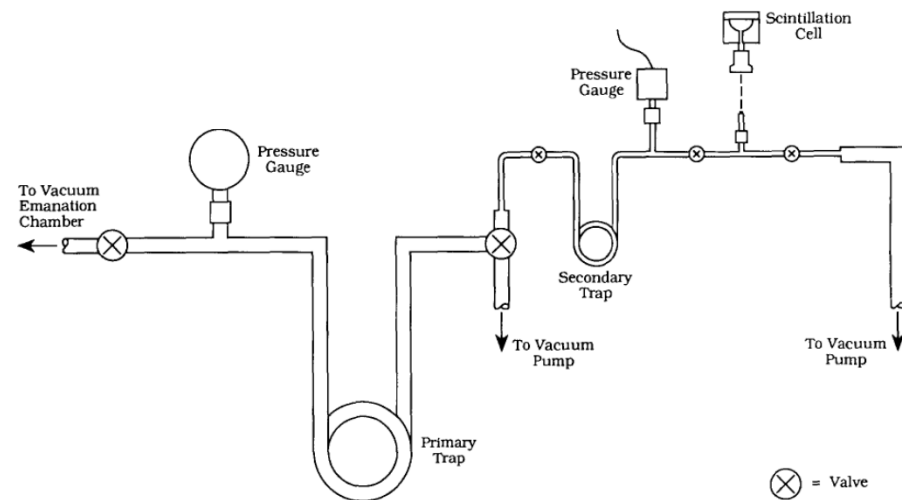
De mesures qui peuvent mener loin !

## $^{222}\text{Rn}$ emanation into vacuum

Manqing Liu, H.W. Lee and A.B. McDonald

*Department of Physics, Queen's University, Kingston, Ontario, Canada K7L 3N6*

Received 3 November 1992



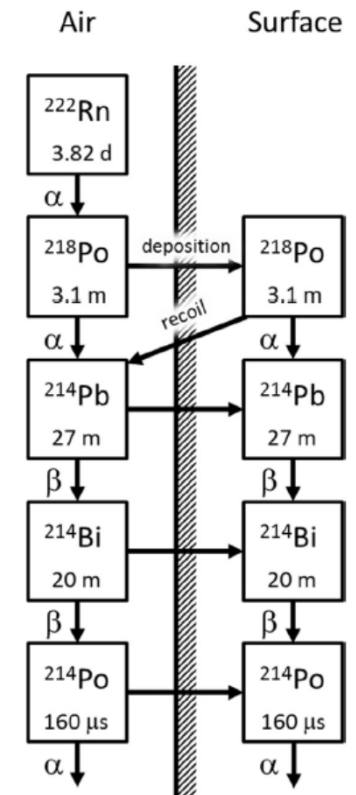
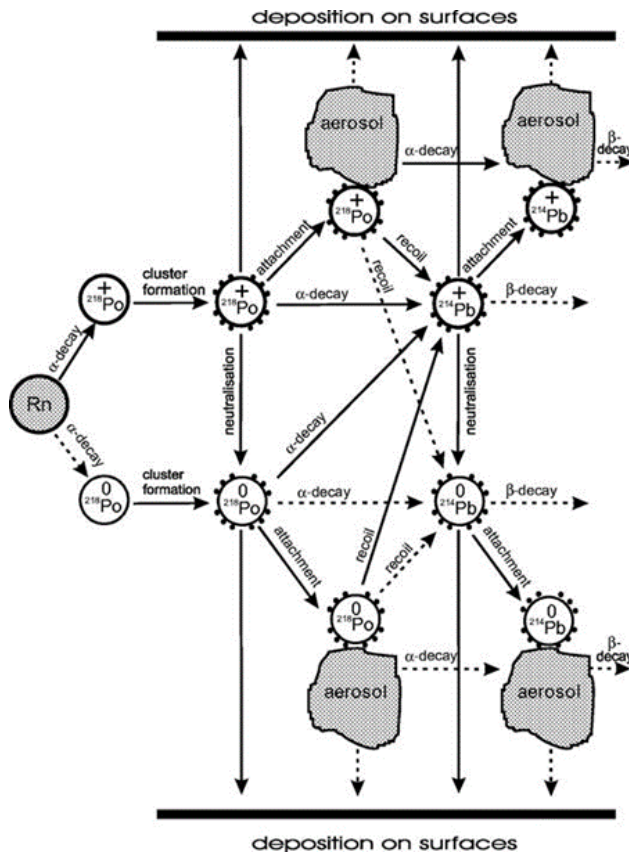
# Dépôt

La plus grande composante du bruit de fond vient des descendants du Rn



- Formation de clusters
- Dépôt sur aérosols ou surfaces

Dépend de : la neutralisation du  $^{218}\text{Po}$   
 : la concentration aérosols  
 : la composition de l'air (gaz)  
 : etc



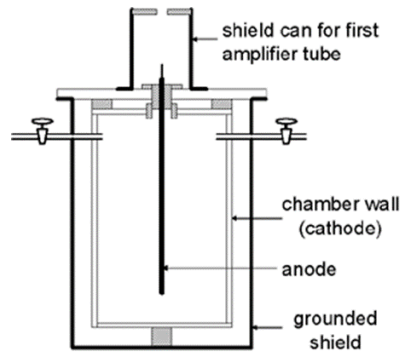


# Détection

REMARQUE : Radon, deuxième cause de mortalité par cancer du poumon (OMS)

=> Problème de radioprotection et sante publique

=> très grande variété de détecteurs de toutes sortes dans le commerce



Chambre d'ionisation



Sensibilité ~ 1 Bq/m<sup>3</sup>



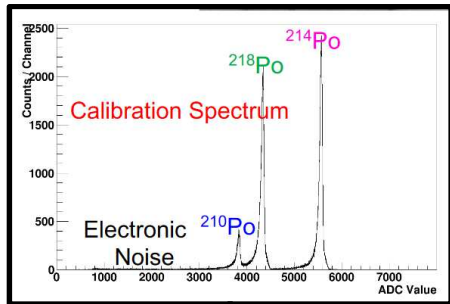
AlphaGUARD,  
(La Rolls des détecteurs du commerce)



# Détecteurs à diffusion

RAD 7  
référence commerciale

sensibilité  $\sim 1 \text{ Bq/m}^3$



## Grand nombre de détecteurs de gros volume ( 50 a 80 L )

(SuperNEMO, SuperK, SNO, DarkSide, ...)

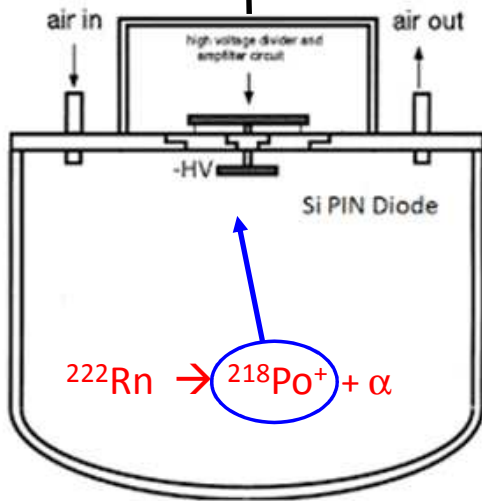
SuperNEMO

DarkSide



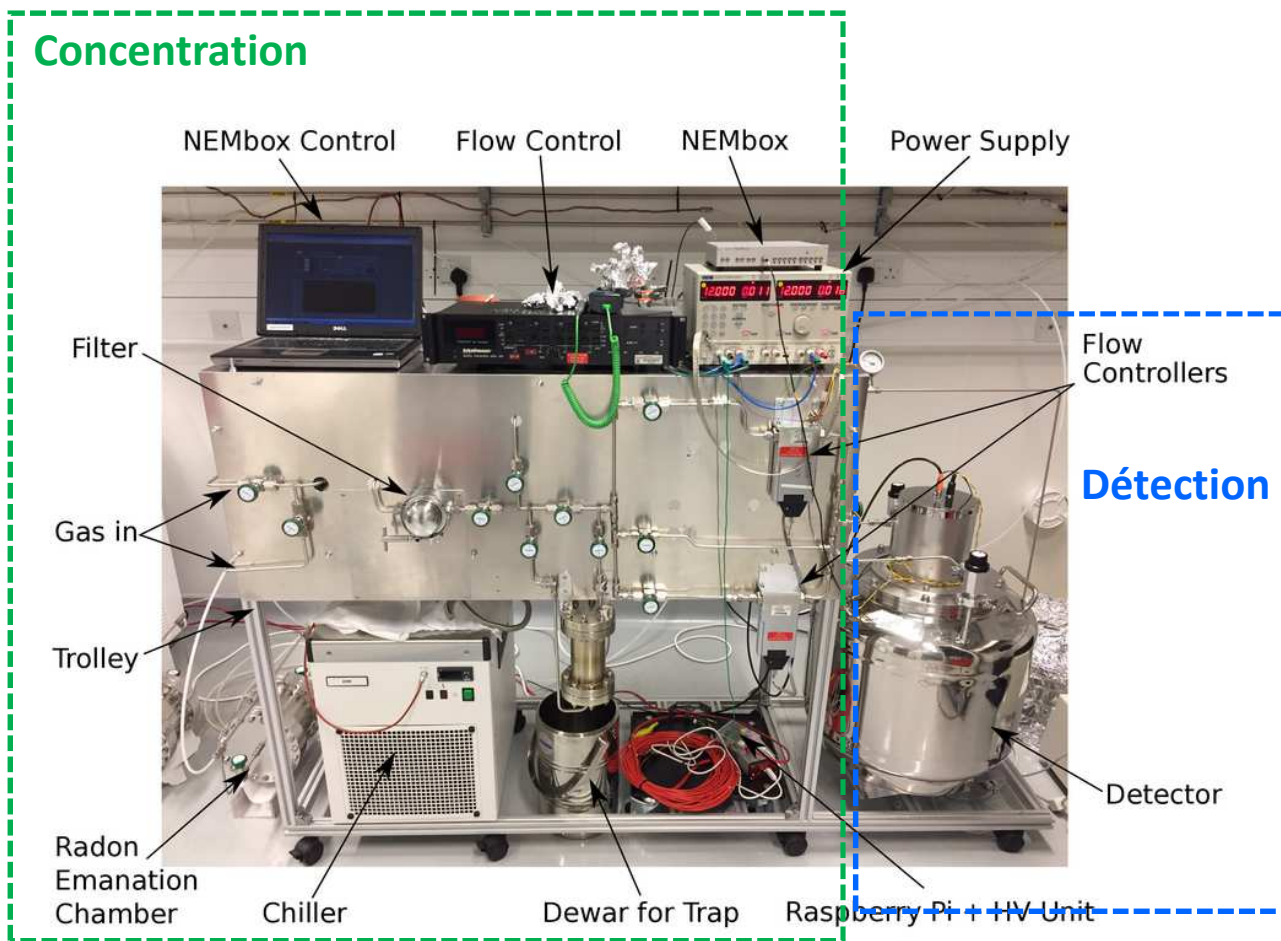
Limitation : Neutralisation du  $^{218}\text{Po}$   
=> composition du gaz  
=> taille maximale

Sensibilité  $\sim 1 \text{ mBq/m}^3$



# Mesures extrêmes

## Détection avec pre-concentration



SuperNEMo (UCL)

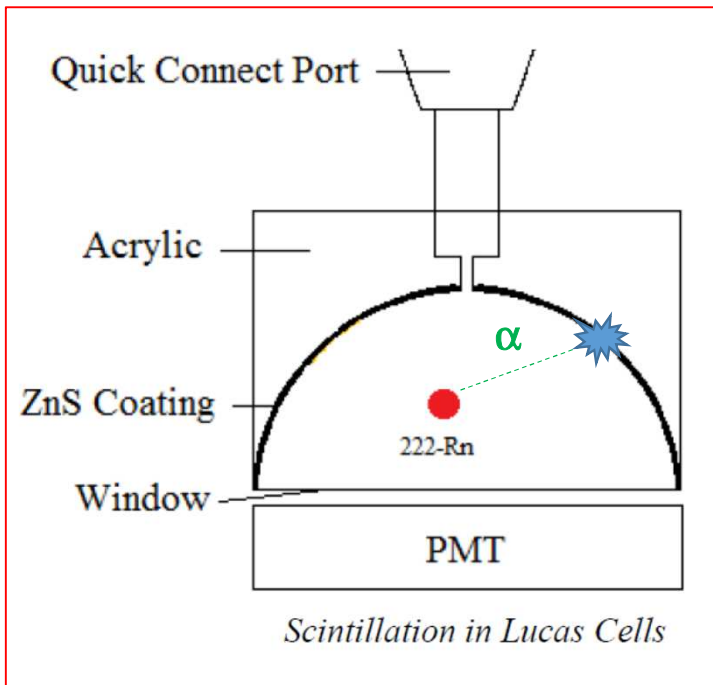
# Compteurs de Radon : Cellule de Lucas

Détection des alphas dans du ZnS (très fine couche)

=> transparent aux  $\beta$  et  $\gamma$

=> pas de résolutions en énergie (simple comptage)

=> dépendance avec le range des  $\alpha$

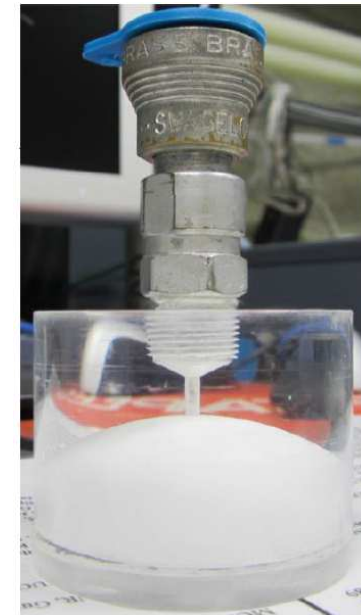


Cellules ultra bas bruit  $\rightarrow$  SNO

Efficacité :  $\sim 74\%$

BdF : 3 cpd

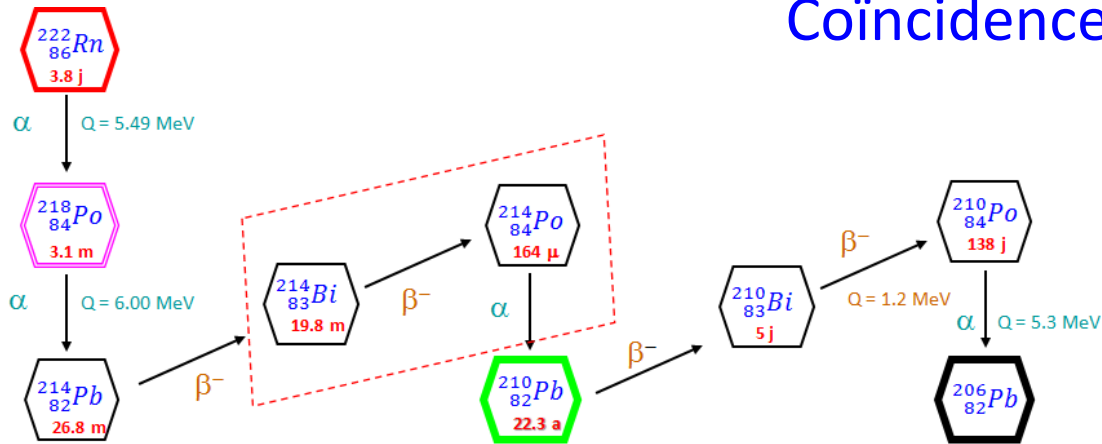
Volume :  $12\text{ cm}^3$



SNO Lucas Cell

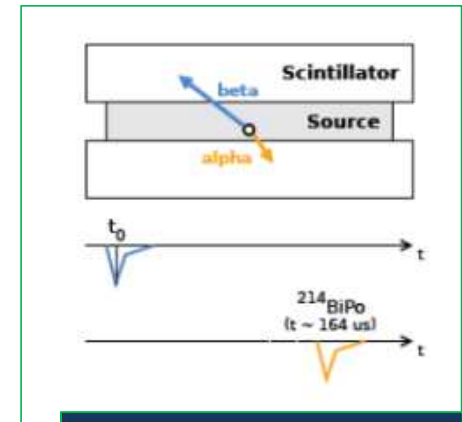
# Détection

## Coïncidence Bi-Po



Coïncidence  $\beta - \alpha$  à 164  $\mu$ s

*Peut être très utile pour augmenter la sensibilité dans la détection du Rn*

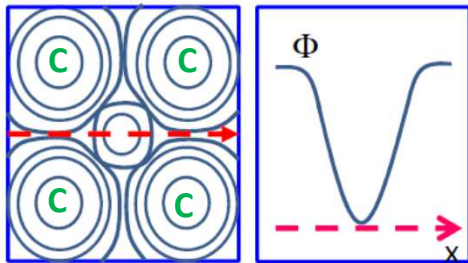


< 10  $\mu$ Bq/kg for  $^{214}\text{Bi}$

# Capture

Rn gaz noble => pas de réaction chimique => Physisorption => Capture en surface

forces de Van der Waals

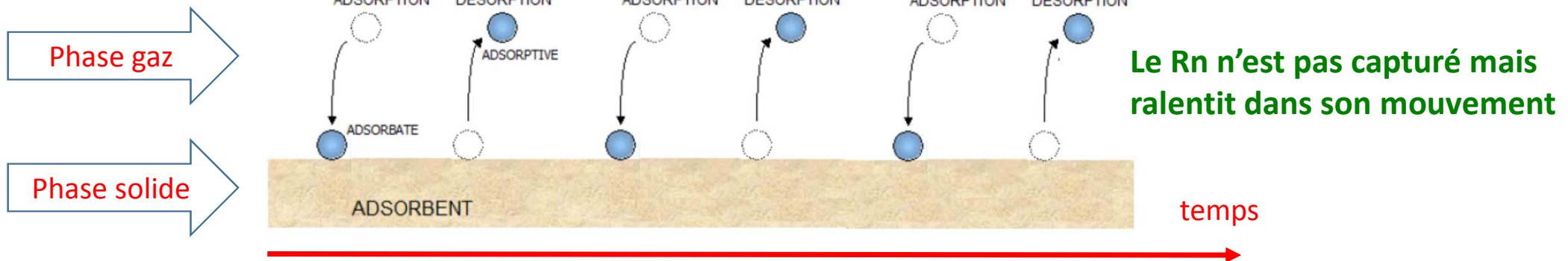


Les irrégularités d'une surface engendrent de puits de potentiel

Si  $\Phi$  est beaucoup plus petit que  $kT$ , l'atome de Rn n'est pas piégé (phase gaz)

Si  $\Phi$  est beaucoup plus grand que  $kT$ , l'atome de Rn est piégé (phase solide)

## Equilibre adsorption – désorption





# Capture

=>

Pour augmenter la capacité d'adsorption

- augmenter la surface
- diminuer la température



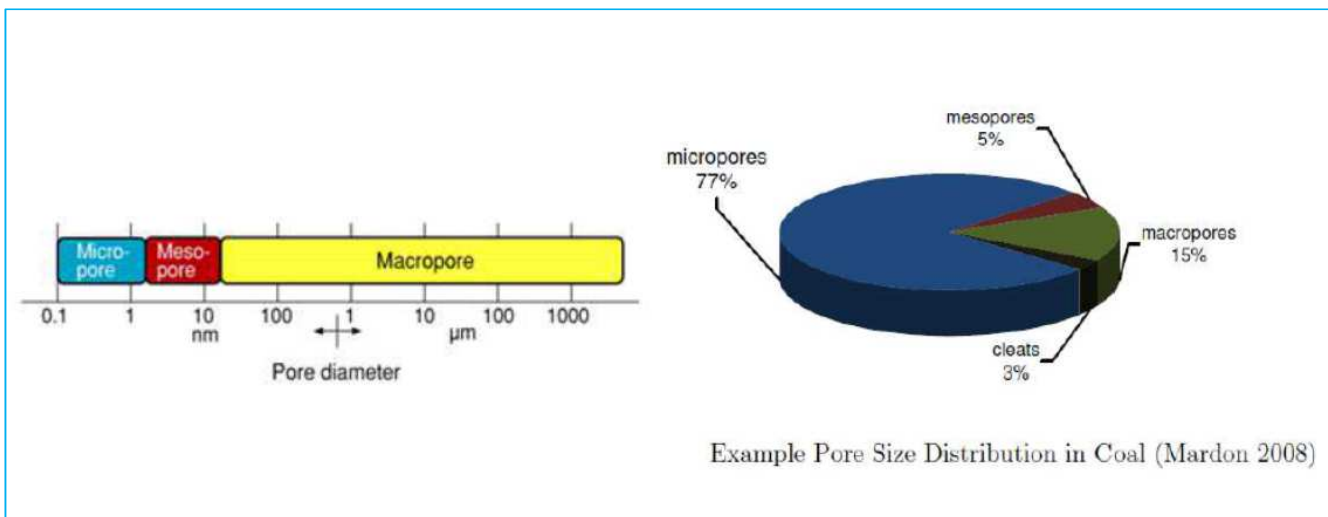
Adsorbants poreux



Ex: charbon Actif

Très grande Surface Effective : ~ 1000 - 2000 m<sup>2</sup>/g

Mais avec une porosité très variée.

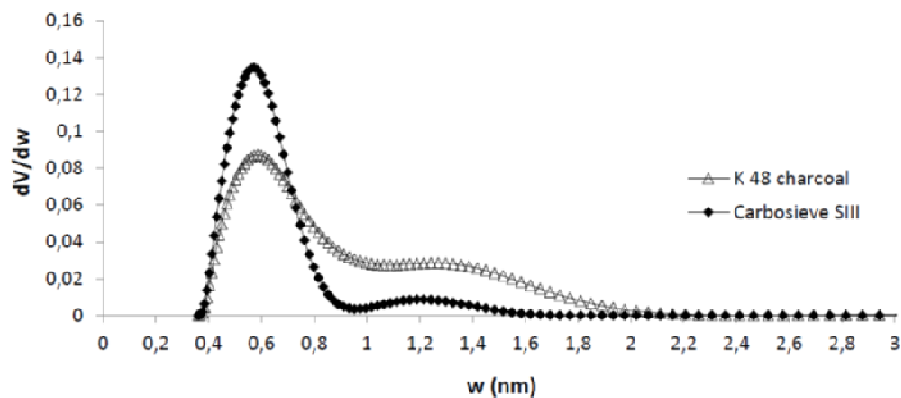
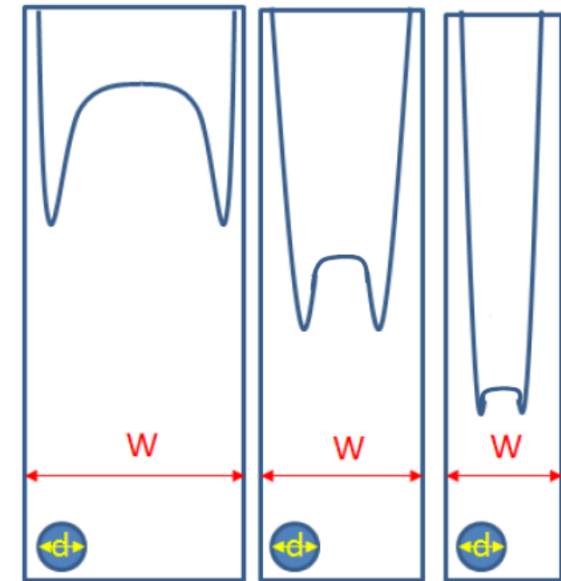


# Capture

La taille et la forme des pores joue un rôle important dans la capacité de rétention du Rn

W : taille pore  
d : taille atome Rn

Si  $W \gg d \Rightarrow$  puits peu profond, faible rétention  
Si  $W < d \Rightarrow$  puits profond mais le Rn n'entre pas  
Optimum :  $W \approx 1.5 \text{ à } 3 d$



## Distribution de la taille des pores

- dans un charbon actif  $\Rightarrow$  distribution large (K48)
- dans un tamis moléculaire  $\Rightarrow$  distribution étroite (Carbosieve)



# Capture

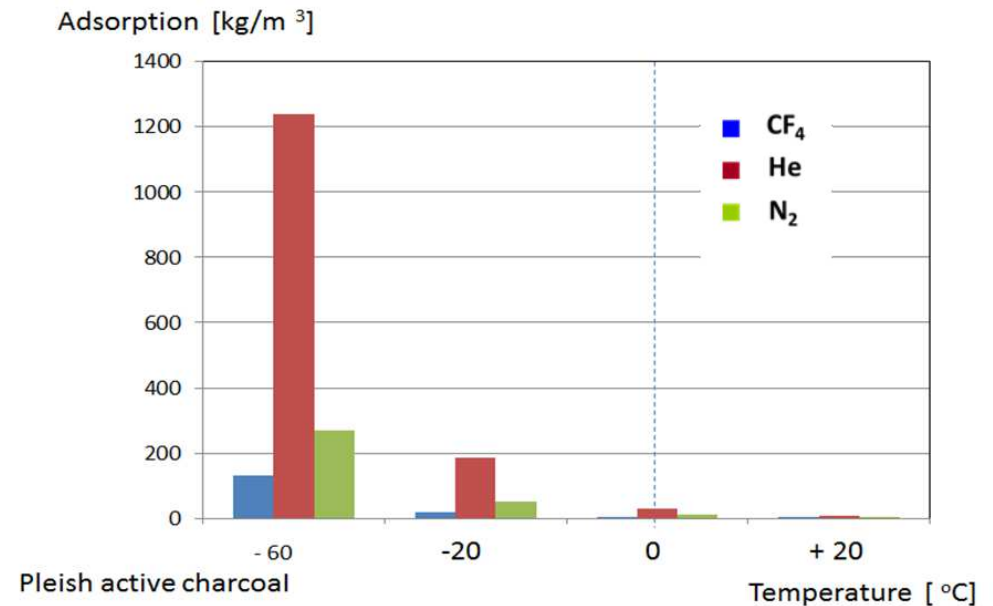
## Compétition entre composantes du gaz

Atome	Atom. Radius (nm) Van der Waals
He	0.140
N	0.150
CF <sub>4</sub>	0.155
Ar	0.188
Kr	0.202
Xe	0.216
Rn	0.220

*Forte compétition entre le Xe et le Rn*

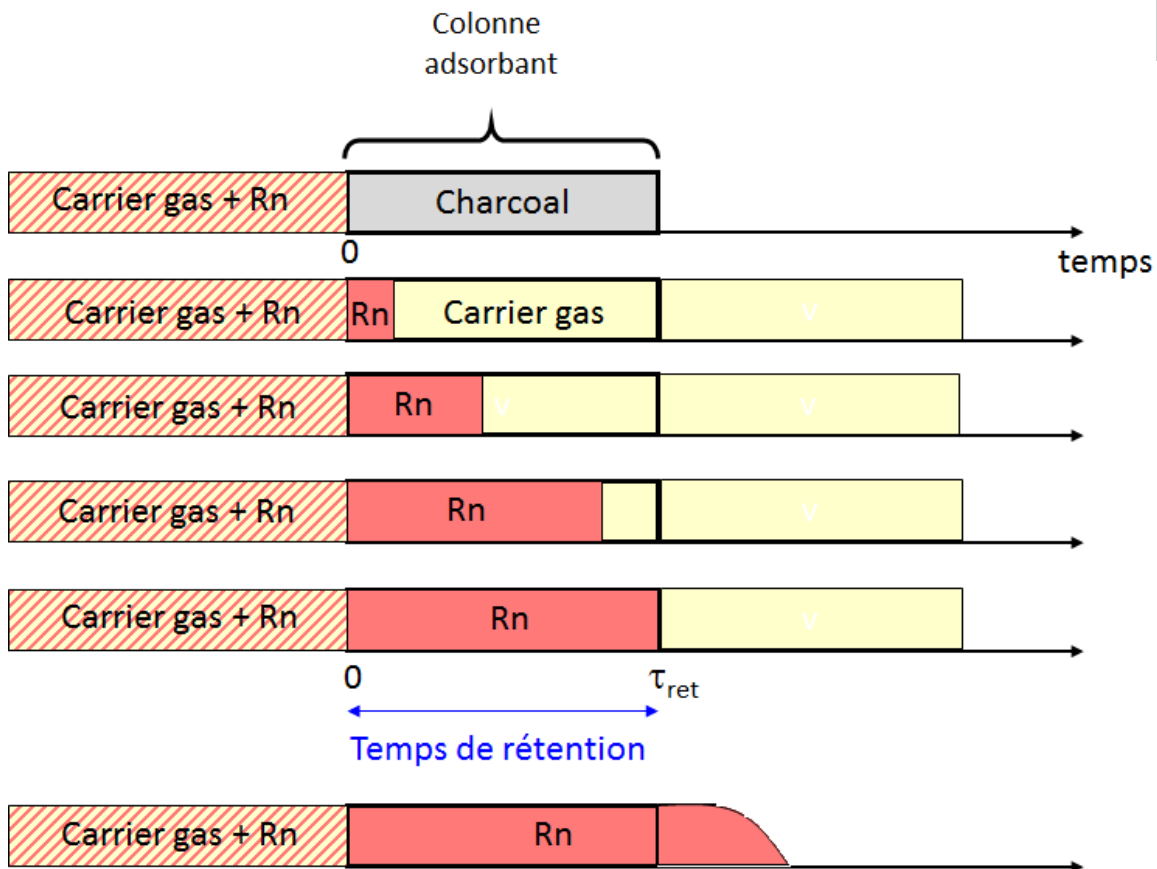
*=> Très difficile d'enlever le Rn du Xe par adsorption.*

Capture de Rn dans un Charbon Actif pour 3 gaz



# Capture

## Capture du radon par chromatographie

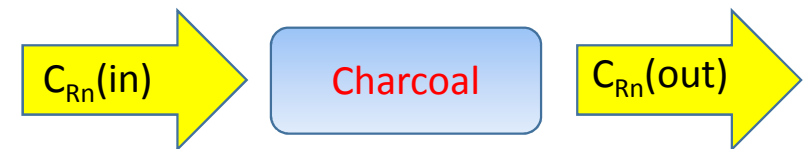


Vitesse carrier > Vitesse Rn

↳ Séparation des deux composantes

Tant que  $t < \tau_{ret}$  pas de radon a la sortie

➤ Réduction de la concentration de Rn



$$\frac{C_{Rn}(out)}{C_{Rn}(in)} = \exp \left[ - \ln 2 \cdot \frac{\tau_{ret}}{T_{1/2}} \right]$$

$$T_{1/2} = 3.8 \text{ j}$$

# Capture

Temps de rétention v.s. capacité de capture

Chromatographie =>

$$\tau_{ret} = \frac{M}{\Phi} \times K$$

M : masse adsorbant  
 $\Phi$  : flux de gaz  
**K : Coefficient de capture**

$$K = \frac{\text{Concentration Rn dans l'adsorbant}}{\text{Concentration Rn dans le gaz}} \left[ \frac{m^3}{kg} \right]$$

K dépend de {

- ❖ propriétés microscopiques de l'adsorbant (porosité, *composition chimique*)
- ❖ Température
- ❖ ...

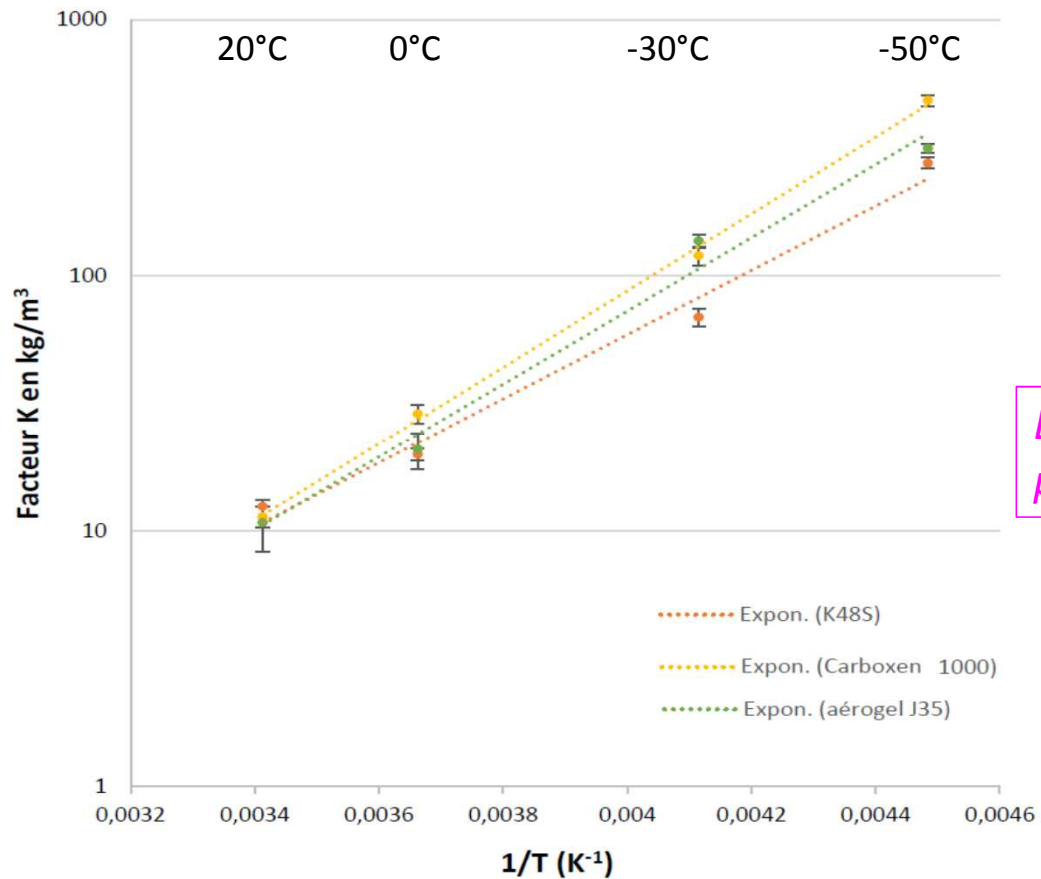
(pas si noble) →

Table 1. Experimentally identified noble-gas hydride molecules by the year 2009.

		HXeH
		HXeI
		HXeBr
		HXeCl
HArF	HKrCl	
	HKrF	
	HKrCN	HXeCN
		HXeNC
		HXeOH
		HXeO
		HXeOXeH
		HXeSH
		HXeNCO
	HKrCCH	HXeCCH
	HKrCCCN	HXeCCCN
		HXeCCXeH
		HXeCC
	HKrCCCCH	HXeCCCCH

# Capture

Dépendance de K avec la température  
(Loi d'Arrhenius )



$$k = Ae^{-\frac{E_a}{RT}}$$

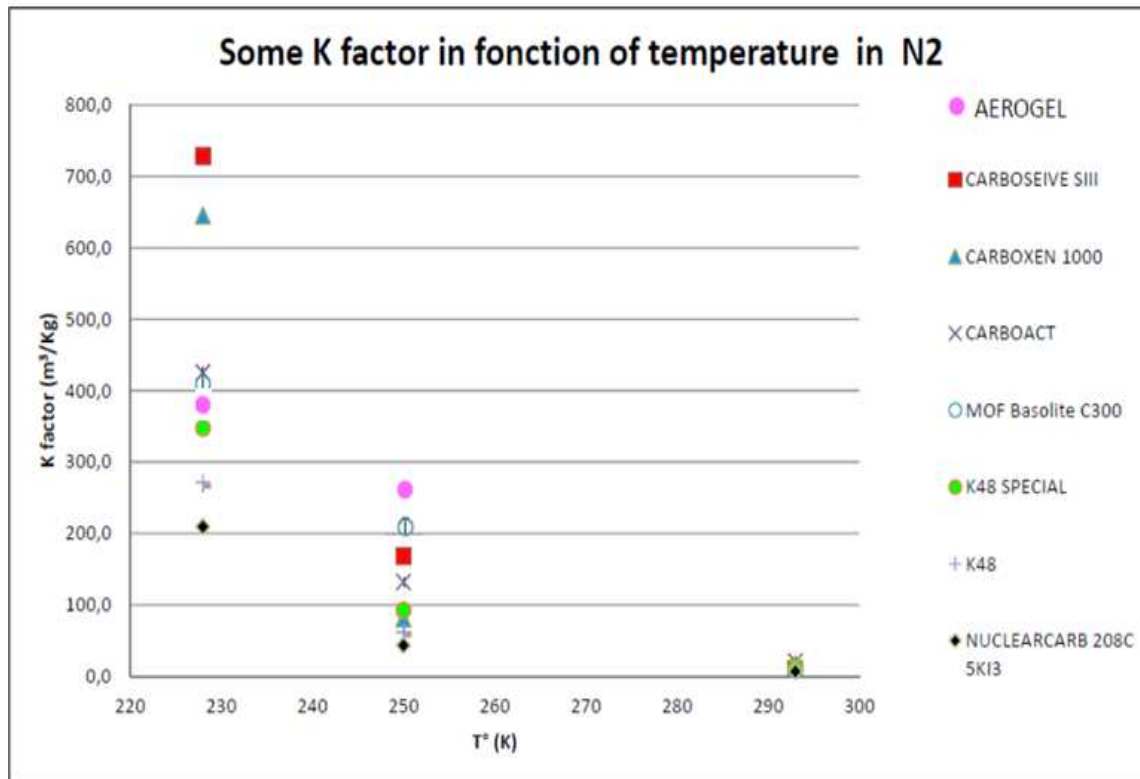
- A = Pre-exponential Factor
- E<sub>a</sub> = Activation Energy
- R = Gas Constant
- T = Temperature in Kelvin

*La température est un paramètre important pour augmenter la capture du Rn*

# Capture

Mesures de K (Marseille)

T = 20°C, -30°C, -50°C, -80°C dans l'N<sub>2</sub> et He



Physico-chimie coll.

## K v.s. Porosité

=> Taille optimale pour la capture du Rn

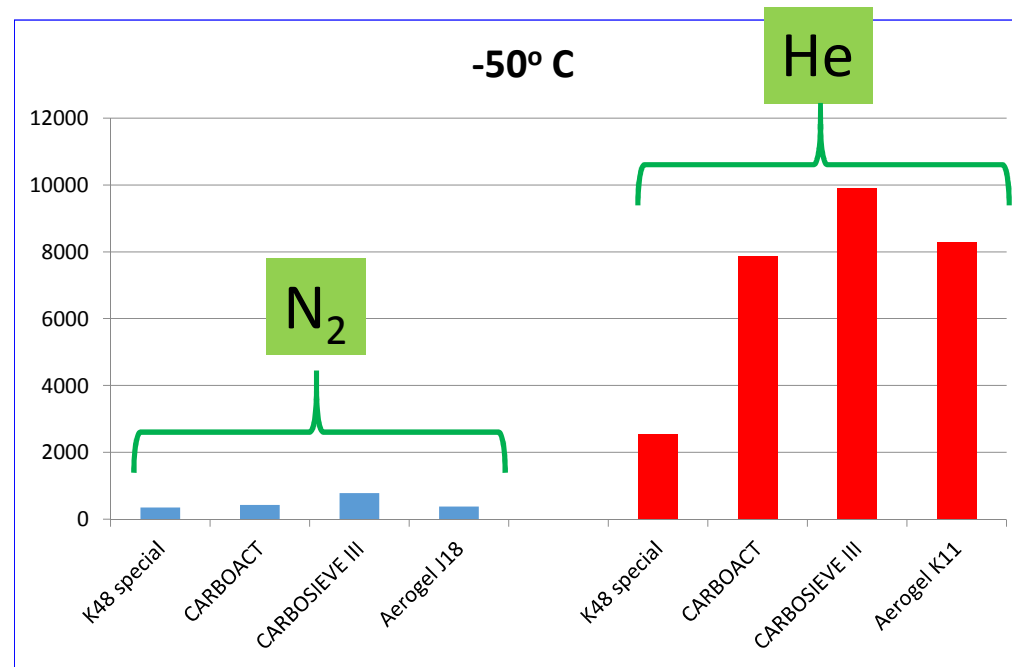
R optimal (pores) → 0.5 - 0.7 nm

- Charbons Actifs
- Tamis moléculaires organiques
- Metal Organic Framework
- Aerogels
- Zeolites

## Conclusion

- Rn est l'une des principales sources de bruit de fond en physique et astrophysique des particules à basse énergie.
- Progrès important dans la prise en compte de ce BdF (émanation, détection,...)
- Mesures difficiles et longues (chimie-physique, matériaux ...)  
=> Besoin de métrologie précise.
- On a besoin d'une coordination des savoirs et d'un renforcement interdisciplinaire.

## K\_factor for several materials in He / N<sub>2</sub>



Very low competition between Rn and He

# Last but not least : Emanation

## Radioactivity of some active charcoals

Charcoal sample	Activity (Bq/kg)			
	$^{137}\text{Cs}$	$^{40}\text{K}$	$^{228}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$
K48	$0.23 \pm 0.07$	$306 \pm 8$	$\leq 0.11$	$\leq 0.25$
K48 spe	$0.22 \pm 0.07$	$19 \pm 2$	$0.36 \pm 0.13$	$0.28 \pm 0.18$
EnviroCarb 207c 8x16 US	$1.1 \pm 0.1$	$256 \pm 8$	$0.45 \pm 0.11$	$0.23 \pm 0.17$
KG10	$\leq 0.22$	$\leq 3.3$	$14 \pm 1$	$23 \pm 1$
NuclearCarb 208c 5ki3	$\leq 0.13$	$475 \pm 12$	$\leq 0.11$	$\leq 1.7$
NuclearCarb 208c 5TEDA	$\leq 0.23$	$335 \pm 12$	$0.64 \pm 0.16$	$\leq 0.30$

Radon emanation from the trap it self

- *Very pure adsorbent ( synthetic materials )*
- *Mass of adsorbent as low as possible*

▪ *Self adsorption can help*

**J –Trap (SuperNEMO)**  
 $20 \pm 10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$   
 with standard Active Charcoal @  $-80^\circ\text{C}$



