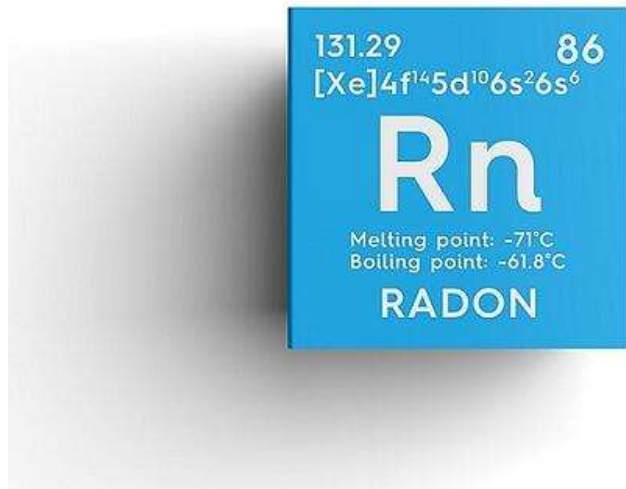




# Projet MicroRadon

Jose Busto  
CPPM, Université d'Aix-Marseille

Journées R&T IN2P3 – IJCLab 5/10/2021



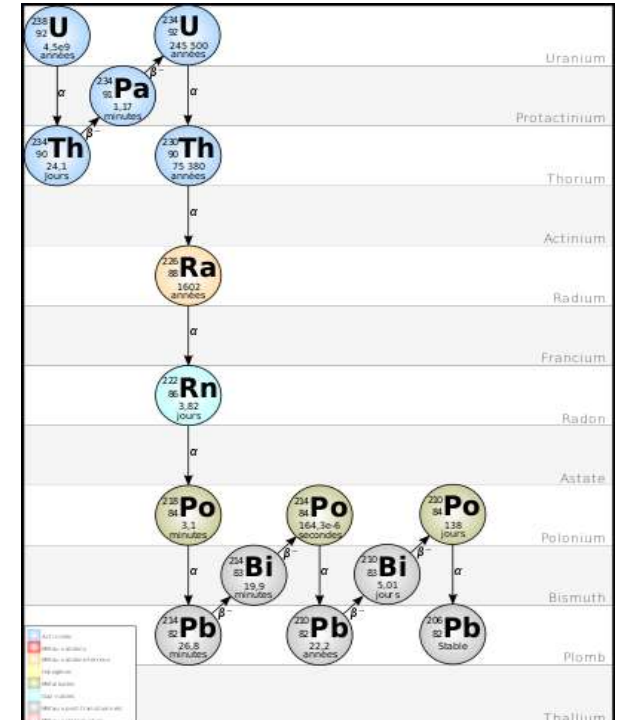
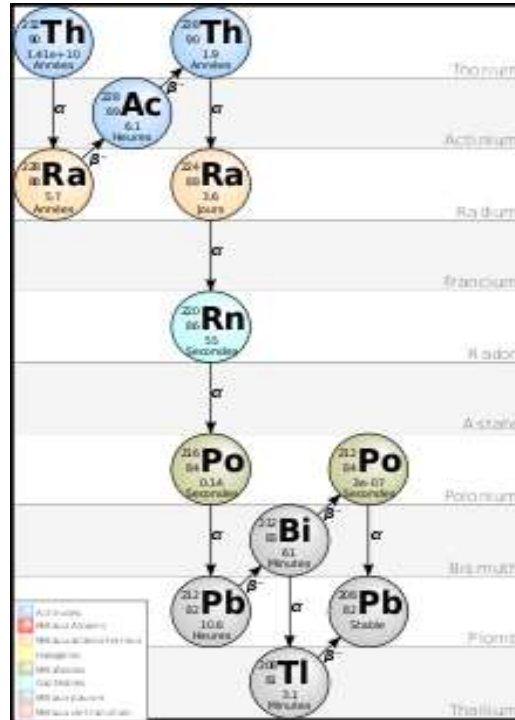
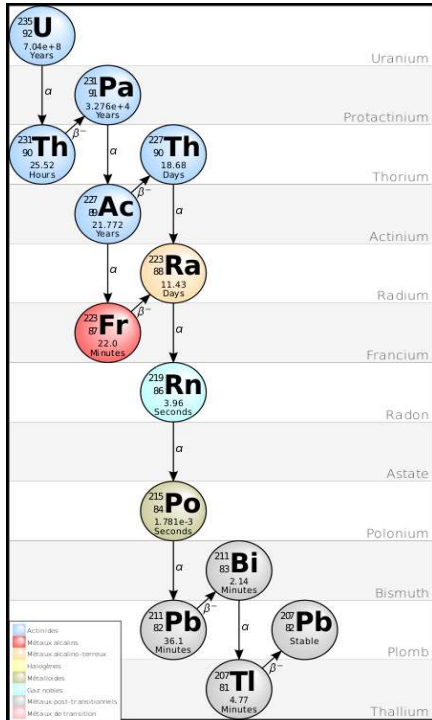
*Gaz noble, radioactif, produit dans les chaînes naturelles d'U et Th*

Gaz noble => pas liaison de chimie -> diffusion importante, capture complexe

Radioactif ( $T_{1/2} < 4$  j) => forte activité intrinsèque

Naturel => de 10 à 10<sup>6</sup> Bq/m<sup>3</sup> dans l'air -> problème santé publique

## Trois isotopes naturels

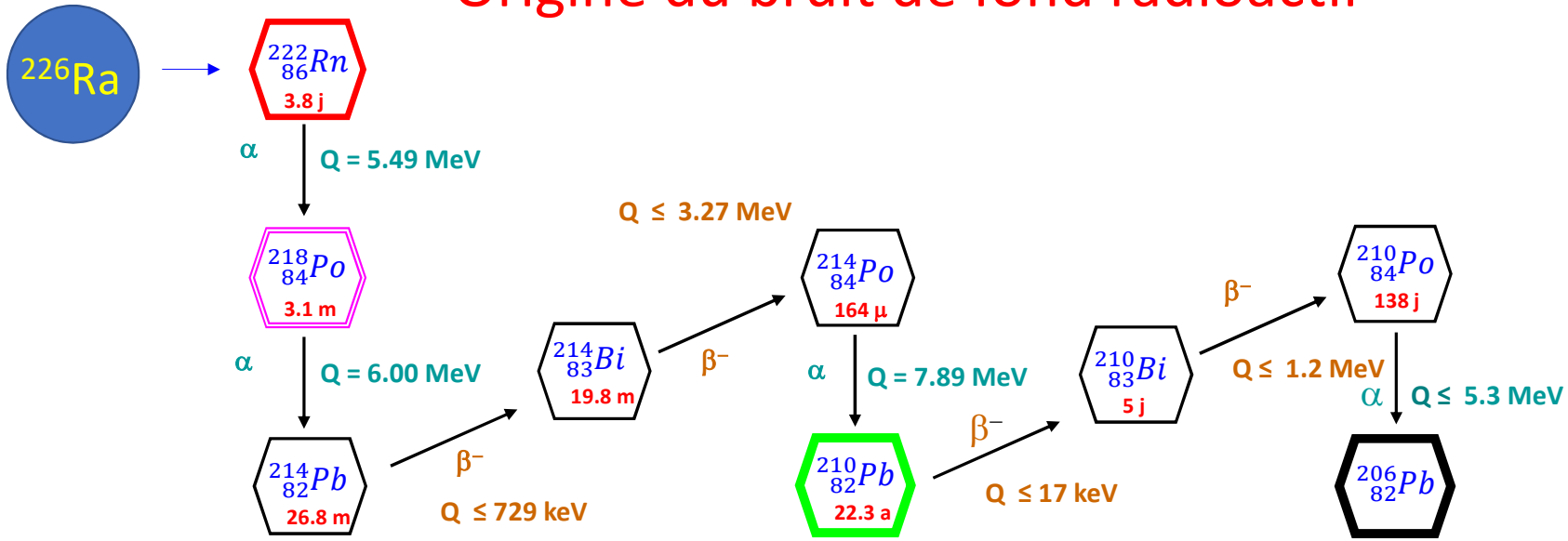


$^{219}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3.96 \text{ s}$ )

$^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 55 \text{ s}$ )

$^{222}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3.82 \text{ j}$ )

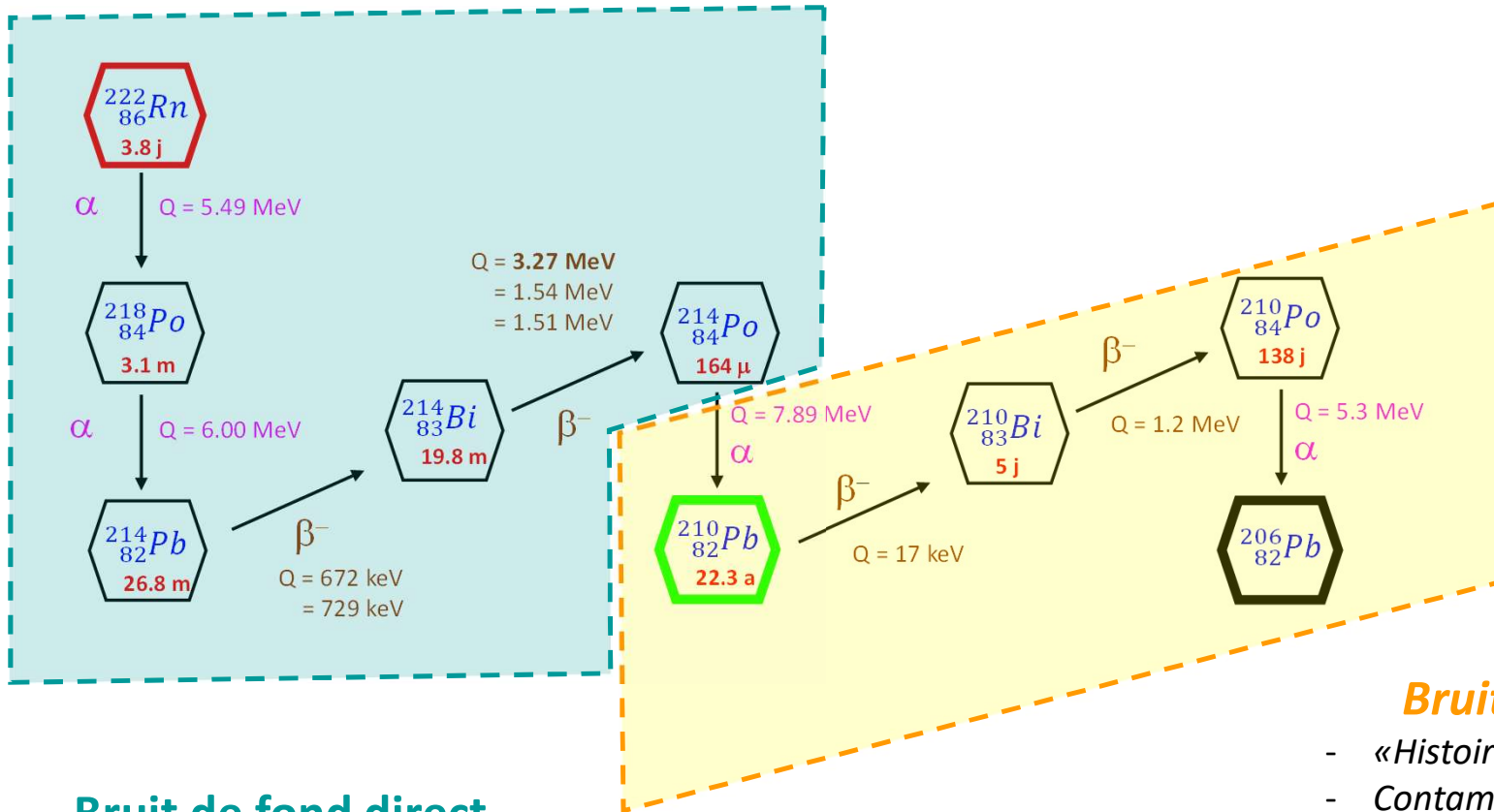
# Origine du bruit de fond radioactif



$\alpha$	5.5 à 8 MeV
$\beta$	$\leq 3.27 \text{ MeV}$
$\gamma$	$\leq 2.20 \text{ MeV}$
Nucleus recoil	$\sim 100 \text{ keV}$

( $\alpha, n$ ) on light nucleus

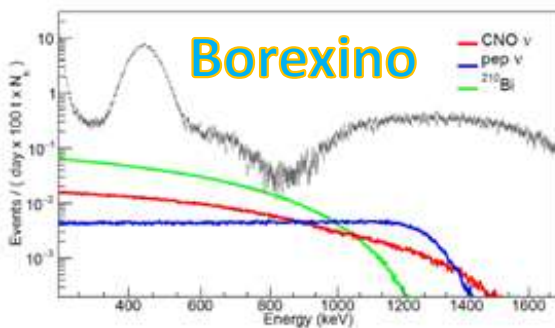
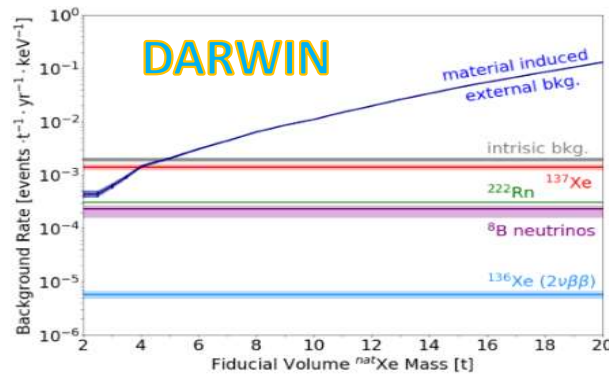
## Bruit de fond à deux composantes



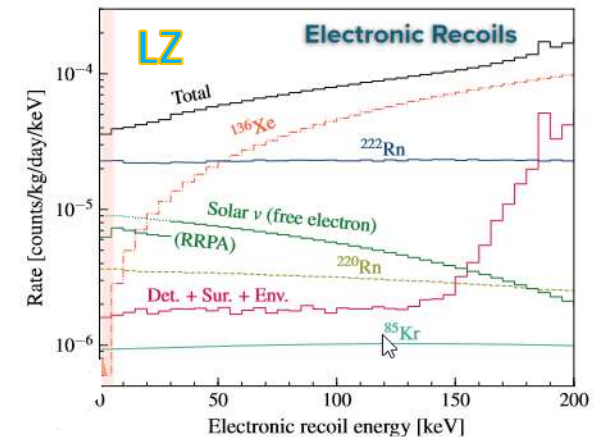
**Bruit de fond direct**  
 No radon => No background

- Bruit décorrélé**
- «Histoire» des matériaux
  - Contamination de surface

# Source de bruit de fond extrême en physique et astrophysique des particules à basse énergie et très faible taux de comptage



*Quelques atomes de Rn par m $^3$  / kg est la condition souvent nécessaire*





## Projet MicroRadon

Janvier 2020

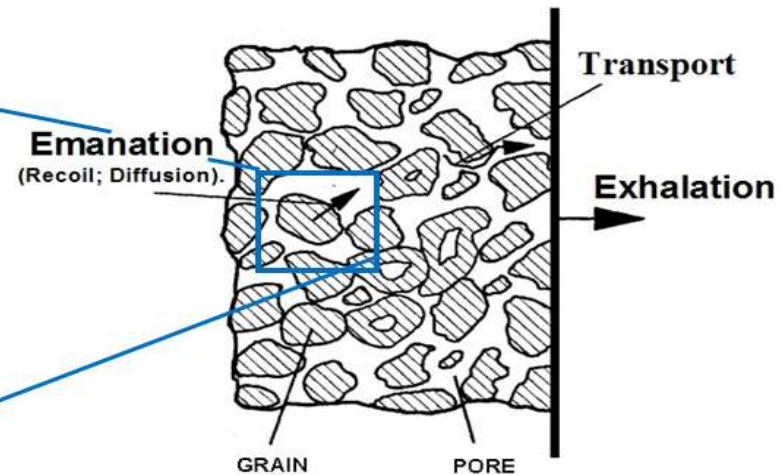
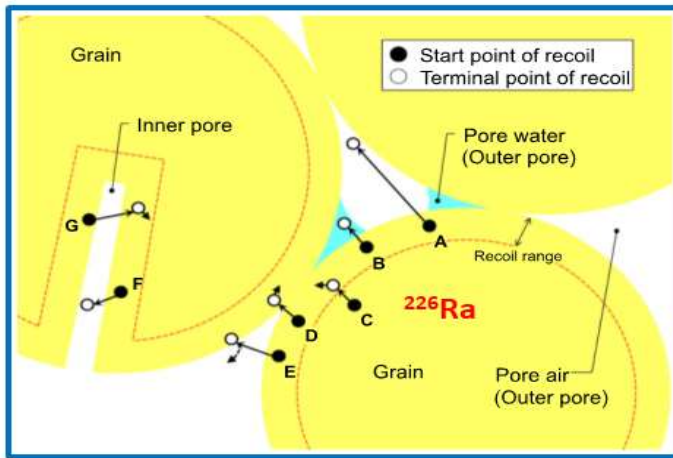
*But : Etudier les mécanismes fondamentaux qui sont à la base du bruit de fond induit par le radon (émanation, transport) dans de conditions extrêmes ou particulières.*

*: Développer de nouvelles techniques et matériaux pour la de capture du radon.*





## Emanation et transport



DETECTOR

- A => radon in inter-grain => transport
- E => radon is inserted in neighbouring grain => radon lost
- B => radon stop in liquid => transport

➤ L'émanation et transport dépendent fortement du milieu

➤ Très peu de données en fonction de P, T, « rien » pour le Xe !

La présence de radon dans le détecteur dépend de :

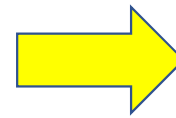
- La concentration de  $^{226}\text{Ra}$  dans les grains
- La composition de inter-grain (eau, He, Xe, ....)
- La température
- La Porosité => self-adsorption
- etc



## Capture du Radon

Gaz noble => pas de liaison chimique => Capture par physisorption (surface)  
→ Forces de Van der Waal

### Adsorption dans des adsorbants microporeux



⇒ Pas de capture permanente  
⇒ Ralentissement du du Rn ->  $\tau_r$   
**Si  $\tau_r \gg T_{1/2}$  => disparition du Rn**

L'adsorption du radon dépend de :

- porosité (taille et densité des pores)
- composition chimique (pas très noble le Rn)
- température
- pression
- ....

Cas particulier : expériences travaillant avec du Xénon

Rayon atomique | Xe : 140 pm  
Rn : 150 pm

=> Très grande compétition entre Xe et Rn

**Véritable challenge expérimental**

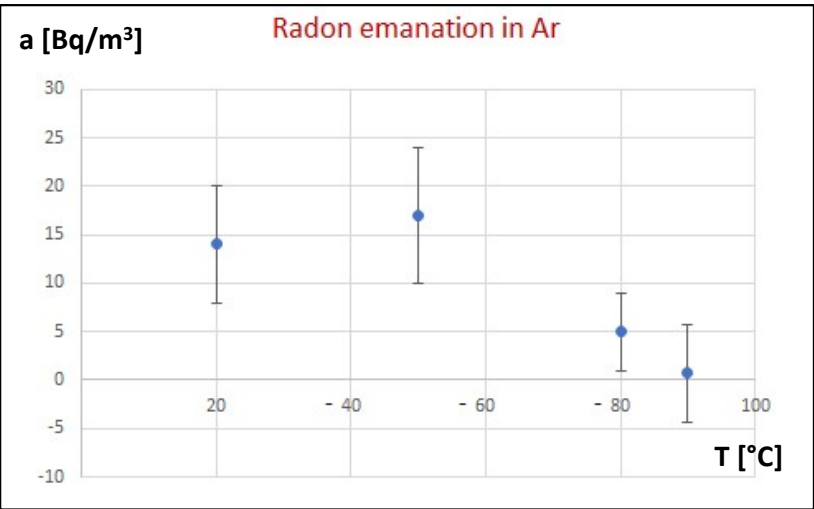
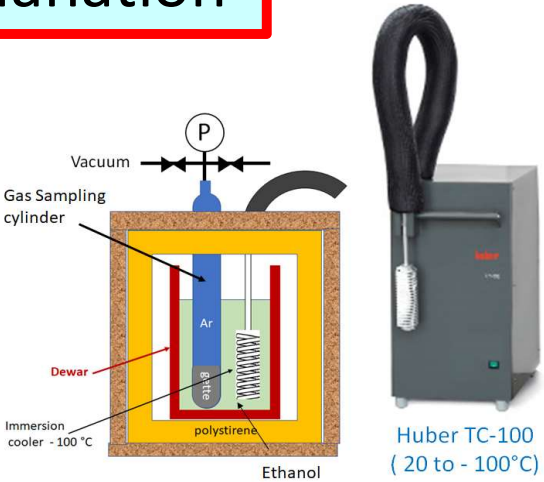
$\mu\text{Rn}$

# Mesures d'émanation

CPPM

Emanation dans Ar pour DUNE

Radon emanation from Cu-getter in Ar  
Radon emanation from zeolite in Ar



Amélioration de la sensibilité avec détecteur Rn IEAP (50 mBq/m3)

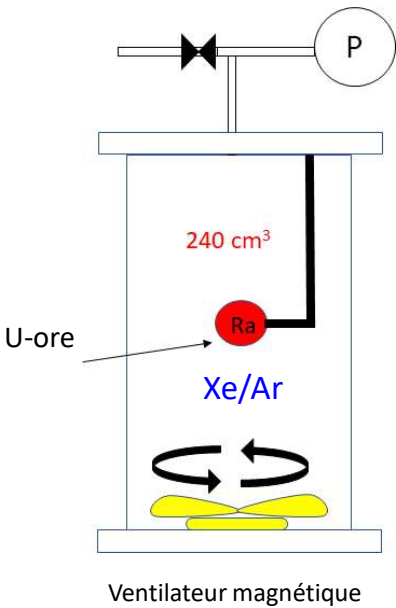
Résultats présentés périodiquement dans la réunion de collaboration DUNE

Associé a DUNE – France  
=> mesures au ArL



$\mu Rn$

CPPM



Emanation dans Xe/Ar @ 1bar et 20°C

Ar :  $11261.9 \pm 266.8 \text{ Bq/m}^3$   
Xe :  $11169.6 \pm 275.6 \text{ Bq/m}^3$

Très préliminaire

Efficacité détecteur en Xe = 0.7 x Efficacité détecteur en Ar

=> Emanation Xe > Emanation Ar

A confirmer et affiner

« Très peu » de données disponibles sur le Xe



Fiole scintillante (ZnS)

$\mu R \eta$

CPPM

Emanation dans gaz liquide

Difficile à pression atmosphérique :  $\Delta T$  utile (liquide) très petit

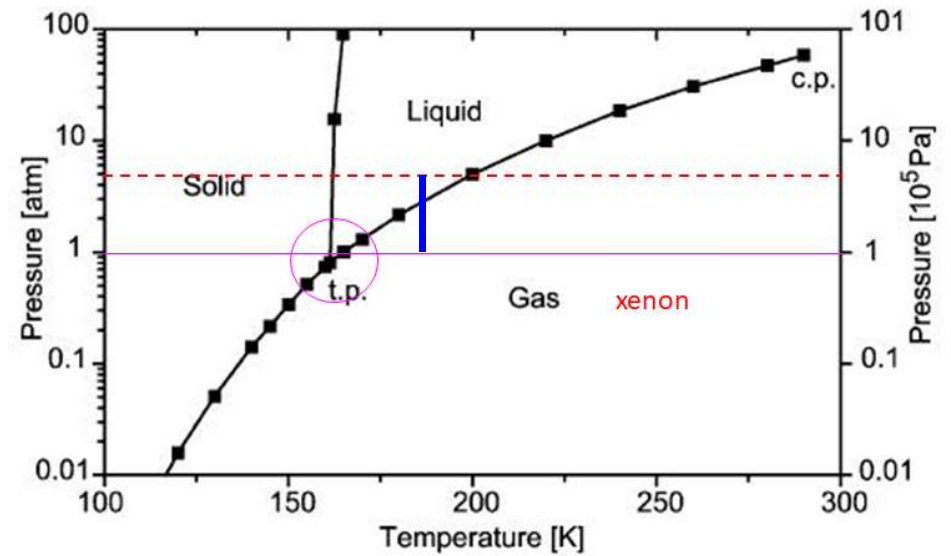
=> Système cryogénique très précis

Solution intermédiaire :

Emanation @ 6 bar et  $-80^\circ\text{C}$ ,  
→ Plage phase liquide importante

=> Etude de la contribution de la phase liquide à l'émanation

➡ MPI Heidelberg (Hardy Simgen) très intéressé.



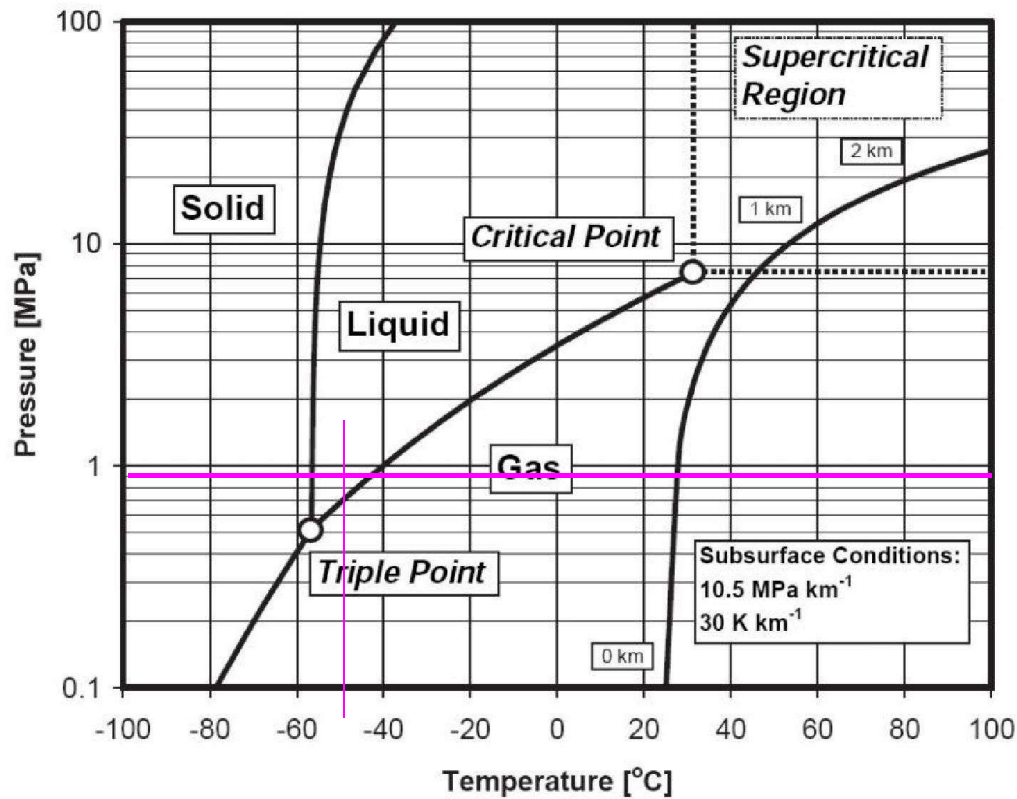
$\mu R \eta$

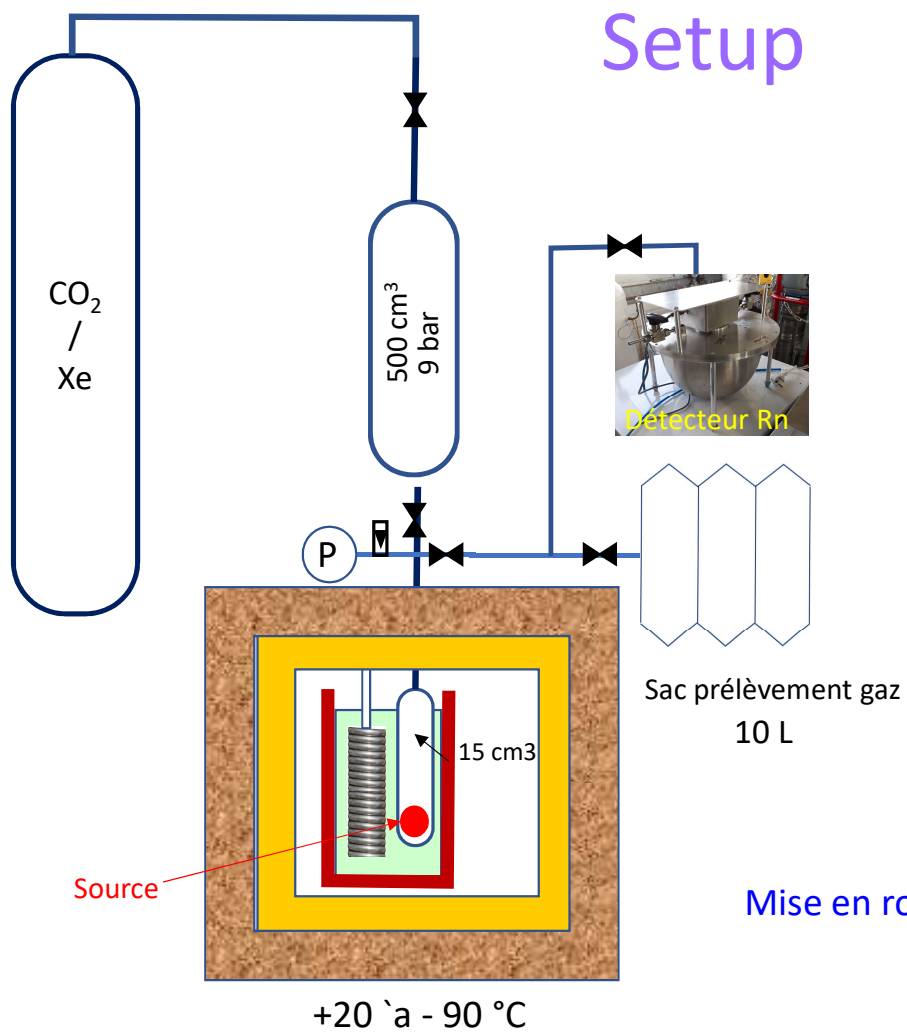
CPPM

Emanation dans gaz liquide

Test preliminaires dans le CO<sub>2</sub>

@ ~ 9 bar et - 50° C





Mise en route courant novembre avec du CO<sub>2</sub>

Si OK tests au Xe

μRn

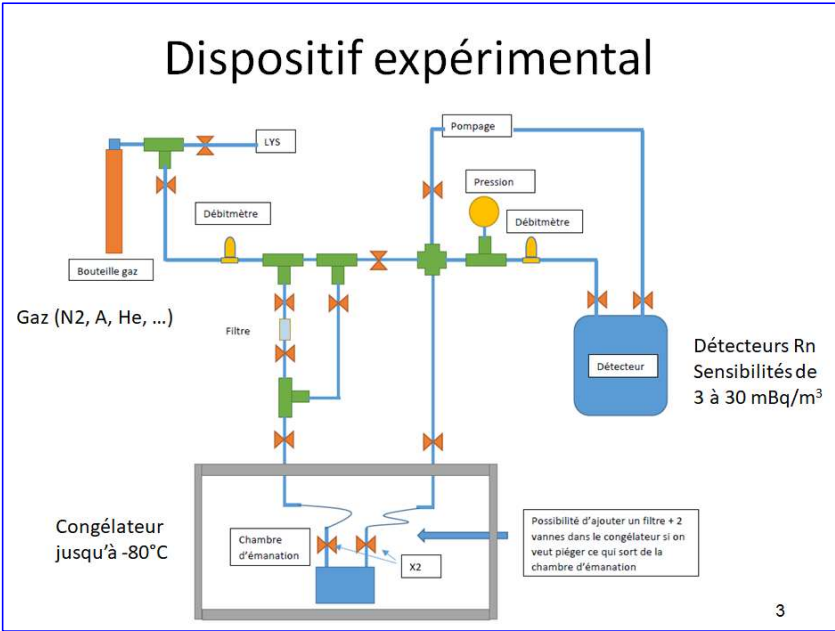
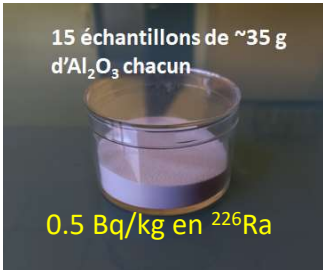
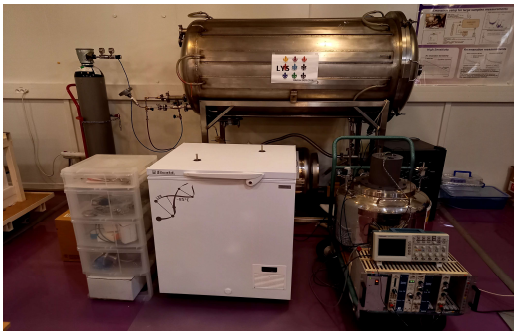
CPPM



$\mu Rn$

CENBG

- Caractérisation de l'émanation Radon avec source  $Al_2O_3$  dans différents gaz ( $N_2$ , Ar, He) et à différentes températures ( $0^\circ C$  à  $-60^\circ C$ ) et pressions.
- Etude émanation en fonction de l'état de surface



Opérationnel en octobre 2021



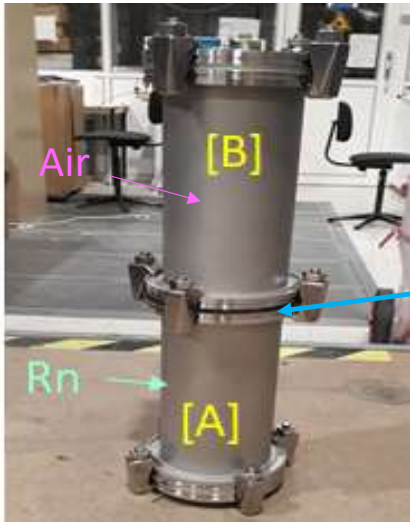
$\mu Rn$

CPPM

# Mesures de diffusion

Diffusion Rn dans emballage protection Dark Side

Sac de transport multi-épaisseur pour protection pièces en Cu  
-> dépôt  $^{210}\text{Pb}$

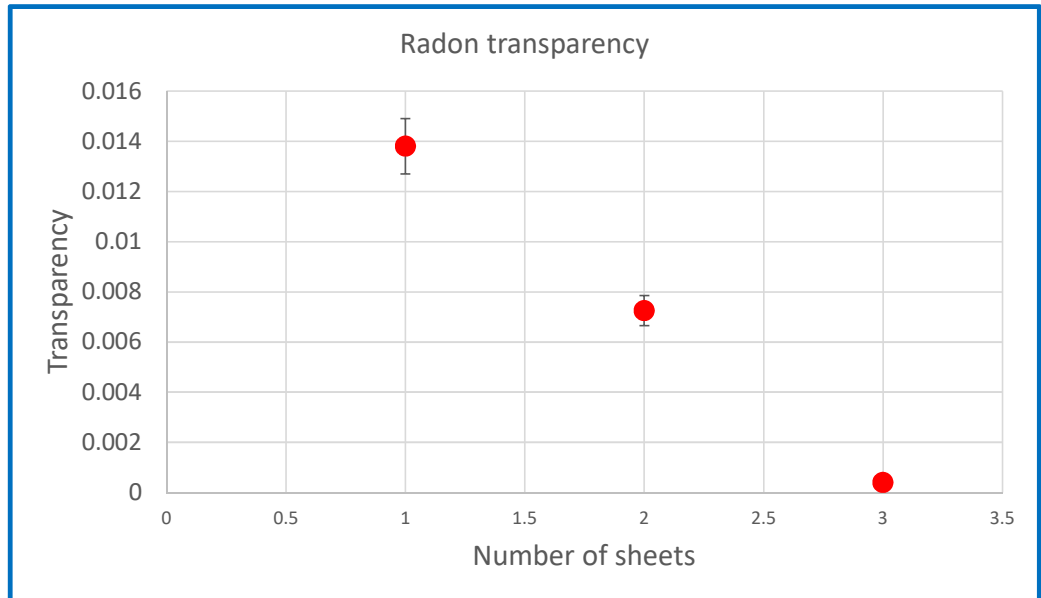


Bi-chambre

Rn avec membrane

Rn sans membrane

Membrane étudiée

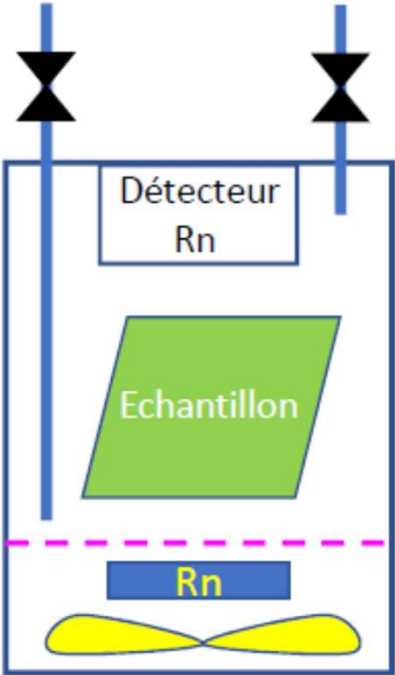


$\mu Rn$

CPPM

Diffusion Rn dans emballage protection Dark Side

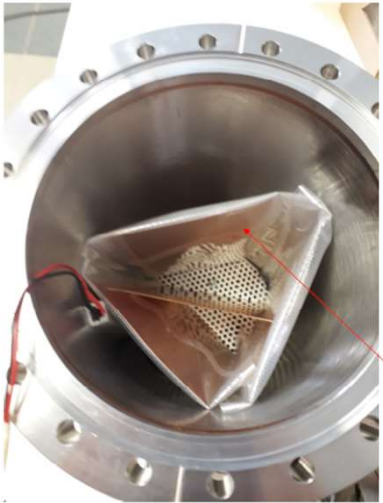
- Réalisation d'une chambre de radonisation
- Température constante (chambre climatique)
  - Humidité contrôlée entre 0 et 100 %
  - Mesure continue du radon
  - Homogénéisation air.



Chambre climatique



Chambre radonisation (5 L )



Echantillons Cu DS avec emballage



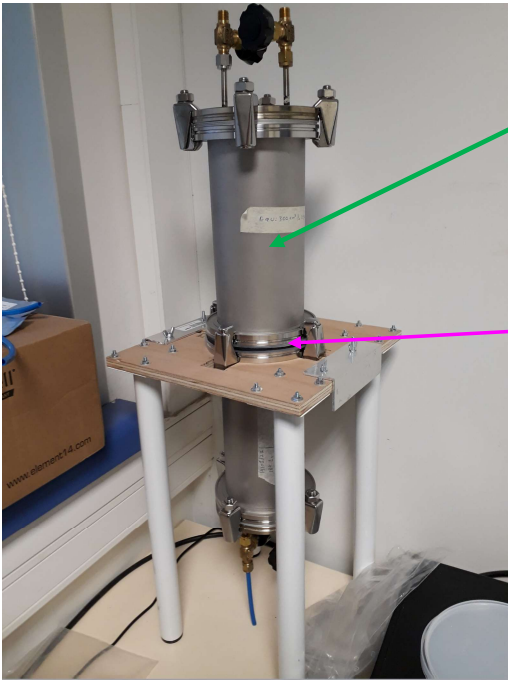
Détecteur Rn

$\mu Rn$

CPPM

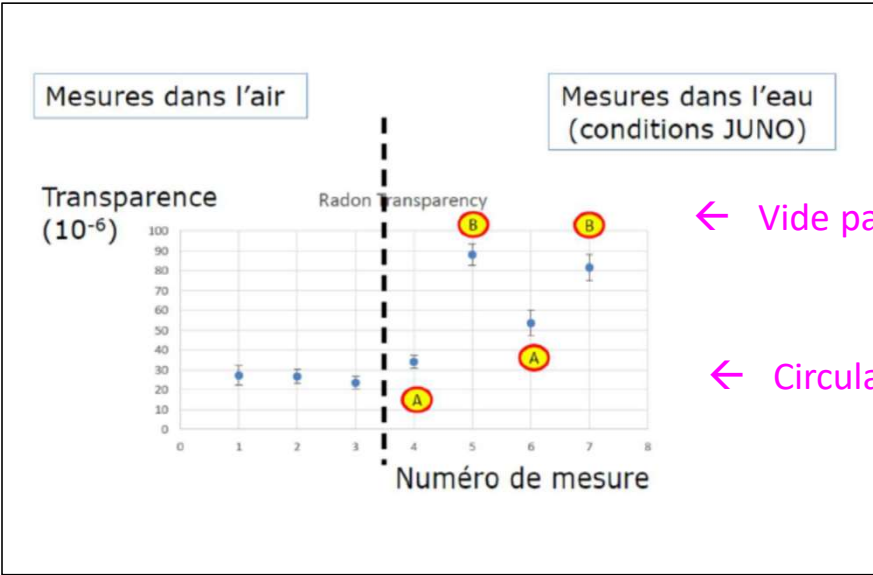
Diffusion Rn dans line JUNO

Etude de la diffusion du radon de la roche dans le liner du JUNO (5 mm HDPE) avec et sans présence d'eau.



Air + 3 cm eau

Liner



Vide partiel

Circulation

Accroissement de la diffusion du Rn en présence d'eau dans de membranes plastique épaisses.

$\mu\text{Rn}$

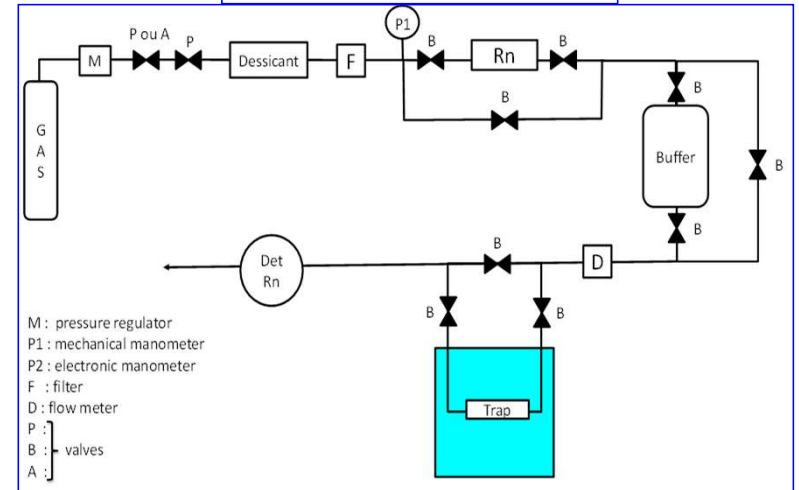
CPPM + IPHC



## Mesures d'adsorption

Adsorption du radon  
- type gaz ( $\text{N}_2$ , Ar, He, ...)  
(différent design pour le Xe)  
- température (20 à  $-80^\circ\text{C}$ )  
- pression (1 à 5 bar)

### Dynamical adsorption



Deux systèmes réalisés et testés (CPPM et IPHC) et une troisième en cours commandé par l'IEAP - Prague

*Adsorption : Facteur de partage :  $K = \frac{\text{Concentration Rn dans adsorban}}{\text{Concentration Rn dans gaz}}$*

Thèse Ramond Noel (2015) CPPM :  $\sim 50$  échantillons à base de carbone

$\mu Rn$

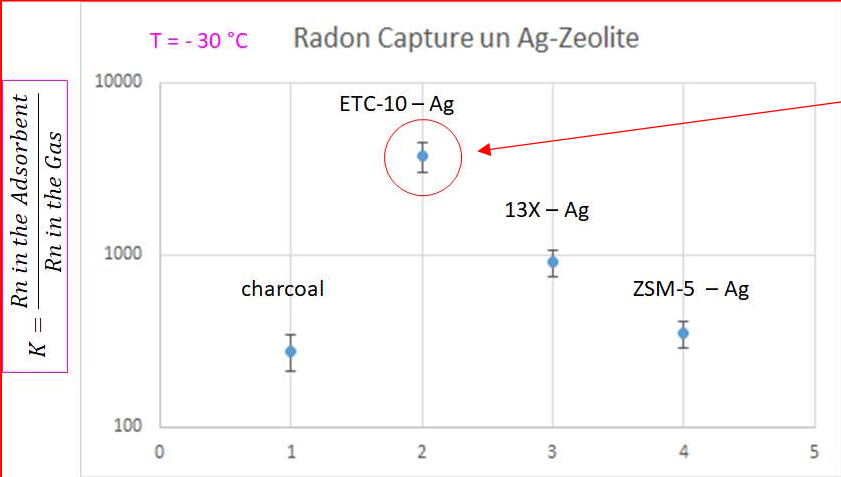
Adsorption zéolites à l'argent

CPPM + IPHC + IEAP

Zéolites Ag très utilisées pour la capture du xénon

- Etude de 3 Zéolites Ag
- : ETS-10 Ag Extraordinary Adsorbents (Canada) Canada
  - : 13X Ag Sigma-Aldrich
  - : ZSM-5 Ag Riogen (USA)

71 mesures entre 20 ° C et – 80 ° C avec régénération entre 250 et 400 ° C avec flux de N<sub>2</sub> ou sous vide [IEAP]



10<sup>9</sup> plus efficace pour la réduction du bruit de fond Rn.

ETC-10-Ag : Extraordinaire du point de vue de l'adsorption  
: très chère (5\$/g > 10 kg)  
: radioactivité intrinsèque (Ag)  
: extrêmement sensible aux traces d'humidité

Nécessite de changer le protocole expérimental

$\mu Rn$

Adsorption zéolites à l'argent

Effet de l'argent sur la capture du radon

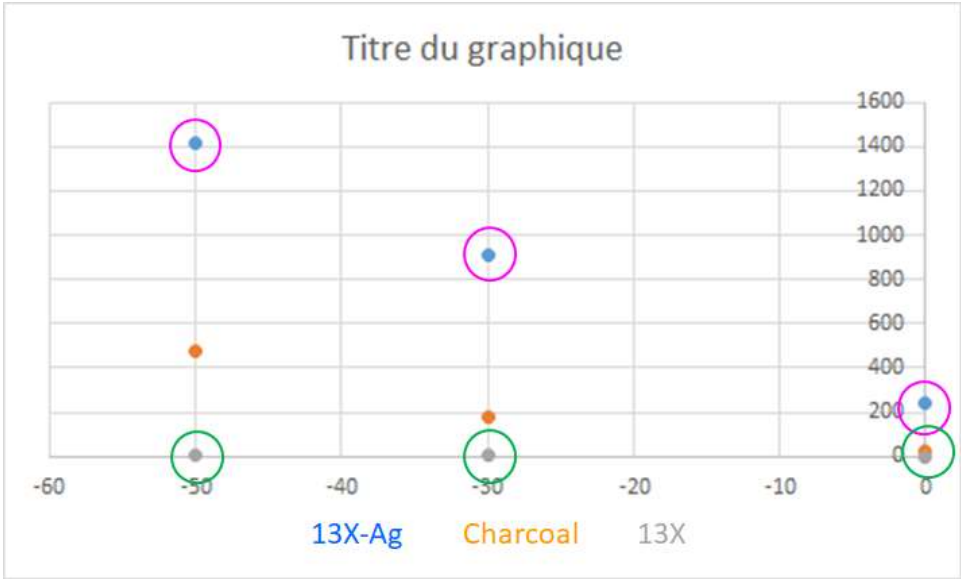
CPPM + IPHC + IEAP

La présence d'atomes d'Ag dans une structure poreuse comme la zéolite 13X, accroît de manière extrêmement forte la capacité d'adsorption

→ Polarisabilité du Rn en présence d'Ag

Papier en préparation

Peut on mieux faire ?



$$K = \frac{Rn \text{ in the Adsorbent}}{Rn \text{ in the Gas}}$$

Préparation d'une ANR Etude théorique et pratique pour le développement de nouveaux adsorbants a très forte capacité d'adsorption de radon.

MADIREL ( AMU ) + IS2M (UHA) + IJL (Univ. Lorraine) + CPPM ,....

Projet émergeant

$\mu Rn$

Capture du radon dans le xénon

Développement de cryptophanes pour l'encapsulation du xénon à but médical (anesthésie)

CPPM + ISM2

Xénon et Radon sont deux gaz avec une taille très proche  
=> si on adsorbe le Rn on doit adsorber le Xe  
=> on teste l'adsorption au Rn et on passe après au Xe



➤ Décembre 2020 préparation de deux type de cryptophanes

Adsorbent @ - 30°C in N2	Rn adsorption	Xe adsorption
Cryptophane YC – 125	107 m3/kg	< 0.1 mmol/g
Active charcoal K 48	180 m3/kg	2 mmol/g



Banc radon



Banc xénon

YC-125 : bonne adsorption au Rn mais pas d'adsorption de xénon

Résultat préliminaires mais très prometteur  
**Possibilité de filtration du Radon dans le Xénon par chromatographie !**  
Nouveaux adsorbants avec une plus forte concentration en cages sont déjà disponibles



$\mu\text{Rn}$

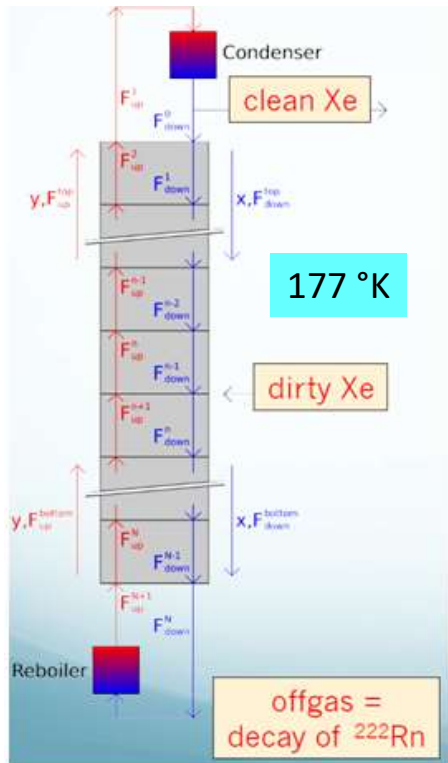
## *Conclusions et perspectives*

Après une première année pour l'acquisition d'équipements et la construction d'un banc d'adsorption, la deuxième année du projet nous a permis de réaliser au CPPM, plusieurs mesures, donc certaines avec de résultats, préliminaires, mais novateurs et potentiellement très intéressants.

- Emanation dans le Xe à pression atmosphérique
- Effet de l'eau sur la diffusion dans de matériaux plastiques épais
- Capture « extraordinaire » du radon dans de matériaux chargés à l'Ag
- Développement d'une synergie très large avec divers laboratoires de chimie
- Résultats très prometteur sur la capture sélective du Rn dans du Xe gazeux
  
- Dans la troisième année ce résultats pourront être confirmés et étendus
- Démarrage du banc d'émanation du CENBG
- Possible début des mesures exploratoires d'émanation en phase liquide



## ➤ Cryogenic distillation



Boiling point : Rn = 212 K  
: Xe = 165 K

*The most volatile is at the top  
and the least volatile is at the bottom*

