DESMANTELAMIENTO

# VALORACIÓN DE LA 1ª CAMPAÑA DE INTERCOMPARACIÓN *IN SITU* DENTRO DEL PROYECTO INSIDER (H2020)

MARGARITA HERRANZ[1]
FERNANDO LEGARDA[1]
JESÚS RUIZ[2]
SVEN BODEN[3]
PETER VOLGYESI[4]
RAQUEL IDOETA[1]
POLINA OTIOUGOVA[5]
LOUSAI LEONG[6]
AXEL KLIX[7]
MARIELLE CROZET[8]

[1]UNIVERSIDAD DEL PAÍS VASCO (UPV/EHU)
[2]TECNATOM, ESPAÑA
[3]SCK-CEN, BÉLGICA
[4]MTA-EK, HUNGRIA
[5]PSI, SUIZA
[6]MIRION, FRANCIA
[7]KIT, ALEMANIA
[8]CEA, FRANCIA;

**INSIDER es un proyecto europeo financiado dentro de H2020-EURATOM e iniciado en junio de 2017. Con una duración de 4 años, una financiación de 4 M€ y coordinado desde el CEA, participan en él 18 instituciones de 10 países y un total de 68 investigadores. Se desarrolla en 5 grupos de trabajo (WP) técnicos y uno de ellos está liderado desde la UPV/EHU.**
**El objetivo de este proyecto es la optimización de la caracterización radiológica de las instalaciones nucleares, en ambientes restrictivos, para obtener una estimación más precisa del contenido de materiales contaminados en ellas y optimizar la cantidad de este a gestionar como residuo. Este proyecto actúa en diferentes líneas y en esta presentación el foco está en la evaluación de los resultados obtenidos en la realización de medidas *in situ* dentro del primer ejercicio de intercomparación en instalaciones reales (reactor en desmantelamiento). Los puntos de medida han sido definidos a partir de la realización de aproximaciones estadísticas y geo estadísticas al proceso de muestreo, cuya optimización es otro de los objetivos de este proyecto. Los resultados obtenidos están ahora en fase de contrastación con los resultados obtenidos en laboratorio, usando análisis destructivo sobre muestras tomadas en los mismos lugares donde se han realizado la medidas *in situ*.**

## INTRODUCCIÓN

De las tres campañas de intercomparación *in situ* previstas dentro del proyecto europeo INSIDER, ya se ha realizado la correspondiente a las medidas a realizar en el blindaje biológico de un reactor nuclear en desmantelamiento.

En este caso se he elegido el del reactor denominado BR3, situado en el SCK-CEN (Mol, Bélgica). Se trata de un prototipo a escala de un PWR, de 40 MW, que después de haber operado entre 1962 y 1987, se encuentra en desmantelamiento. La Figura 1 nos muestra la simulación del foso del reactor y la plataforma para poder realizar las medidas. A esta zona se ha podido acceder a realizar las medidas *in situ*, y también se han podido tomar y transportar muestras del hormigón a diferentes laboratorios para su medida. El material está bastante bien caracterizado y la lista de radionucleidos, incluye: $^{3}$H, $^{14}$C, $^{41}$Ca, $^{55}$Fe, $^{60}$Co, $^{63}$Ni, $^{133}$Ba, $^{134}$Cs, $^{137}$Cs,$^{152}$Eu, $^{154}$Eu y $^{155}$Eu.

Se han realizado 3 tipos de medidas, en tres puntos distintos del blindaje, a tres alturas determinadas; uno con alta tasa de dosis, otro a tasa media y otro a tasa baja:

- Tasa de dosis: como tipo de determinación ampliamente utilizada en protección radiológica; son medidas rápidas y baratas, pero proporcionan tan solo lo que podemos considerar como información secundaria de la zona.
- Gamma-total: también son medidas muy habituales en protección radiológica, permiten la localización de puntos calientes y la comparación relativa entre puntos; son también medidas muy rápidas y baratas y los equipos son robustos; pero, como en el caso anterior, tan solo proporcionan información secundaria de la zona.
- Espectrometría gamma; que nos permite obtener información cualitativa de los contaminantes, así como el perfil; son medidas que se realizan con equipos poco robustos, consumen mucho tiempo y son caras; ahora bien, de las tres consideradas son las únicas que nos proporcionan información primaria.

Por limitaciones de espacio y tiempo tan solo 6 equipos de trabajo han podido participar en esta intercomparación de 7 organismos distintos.

En este texto se reseñan los equipos participantes en el ejercicio, así como los equipos de medida empleados, se describe brevemente la realización de las medidas y se muestran los resultados obtenidos, y, finalmente, se realiza una valoración inicial de los mismos.

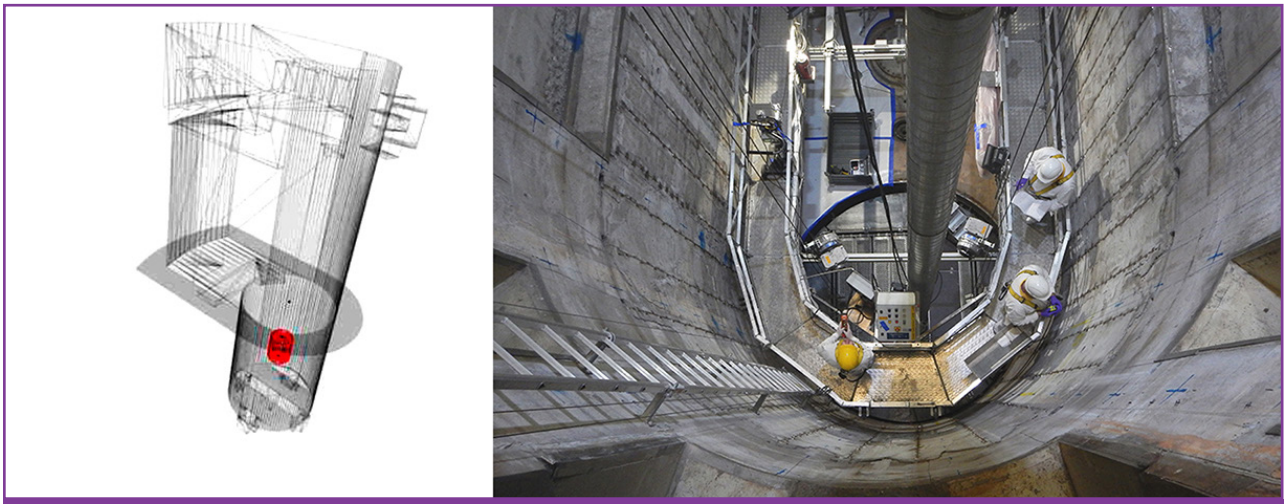

**Figura 1.** Esquema de la zona a caracterizar y plataforma para las medidas.

# DESARROLLO Y RESULTADOS

## Organismos participantes

- UPV/EHU (Universidad del País Vasco), España.
- SCK - CEN (Studiecentrum voor Kernenergie/Centre d'Étude de l'énergie Nucléaire), Bélgica.
- MTA - EK (Hungarian Academy of Sciences Centre for Energy Research), Hungría.
- TECNATOM, España.
- MIRION Technologies, Inc. Francia.
- PSI Institute (Suiza).
- KIT Institute (Alemania).

## Medidas de tasa de dosis

Cada uno de los organismos utilizó sus propios equipos, todos distintos para poder chequear la mayor cantidad posible de ellos, aunque se agrupan en 4 tipos (Tabla 1).

Todos los equipos han proporcionado las medidas de tasa de dosis en términos de H*(10) (microSv/h), calibrando todos los grupos con $^{137}$Cs. Todos ellos verificaron su equipo in situ con una fuente proporcionada por la propia instalación. Los detectores se han usado sin blindar ni colimar y las medidas han realizado en contacto.

## Resultados de las medidas de tasa de dosis

En total se realizaron 25 medidas en cada punto, realizándose 5 medidas seguidas, retirando el equipo y volviéndolo a posicionar para realizar otra tanda de 5 medidas y así un total de 5 tandas de 5 medidas por tanda. El valor medio de los resultados obtenidos en cada uno de los puntos (A, B y C) por cada uno de los 7 participantes aparece en la Tabla 2.

No hay valores de referencia para comparar, pero se puede observar que las desviaciones estándar en cada uno de los puntos son 0,04; 0,1 y 0,22, respectivamente; por debajo del 10 % de los correspondientes valores medios. Y las desviaciones entre los valores máximos y mínimos en cada punto son del 26 %, 25 % y 17 %, respectivamente. Como se puede observar, no hay una diferencia significativa entre los resultados obtenidos para el punto A, aquel que proporciona la menor tasa de dosis y el punto C, que proporciona la más alta.

Tampoco se aprecian diferencias que se puedan achacar al tipo de equipo utilizado, sí que las hay en cuanto a las incertidumbres pero que no se explican por los diferentes tipos de equipos utilizados sino por sus volúmenes activos. Ahora bien, todas las determinaciones realizadas son tales que se produce un solapamiento de sus bandas de incertidumbre (Figura 2).

Dos de los retos más significativos de estas medidas, que eran el ambiente restrictivo con radiación llegando desde todos los puntos y también el tiempo necesario, no para realizar la medida, sino para estabilizar el equipo entre medidas, no parecen haber afectado a la calidad de estas.

## Medidas de gamma total

Cada uno de los participantes utilizó sus propios equipos, distintos en todos los casos para poder chequear la mayor cantidad posible de ellos dentro de las características de la instalación. En total, 6 centelladores y un contador proporcional, han sido usados porque un participante llevó dos equipos distintos, tal y como se refleja en la Tabla 3.

| Instrumentos | Participantes |
|---|---|
| Geiger- Müller | 1; 4 |
| Centelleador orgánico | 2 |
| Cámara de Ionización | 3 |
| Centelleador BGO | 5 |
| Contador proporcional | 6 |
| Centellador CSI(Tl) | 7 |

**Tabla 1.** Tipo de instrumentos utilizados y código de los participantes que lo han hecho.

| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| A | 0,37 ± 0,17 | 0,41 ± 0,04 | 0,33 ± 0,06 | 0,31 ± 0,06 | 0,42 ± 0,07 | 0,36 ± 0,05 | 0,4 ± 0,02 |
| B | 0,90 ± 0,27 | 1,21 ± 0,09 | 1,04 ± 0,14 | 0,96 ± 0,18 | 1,07 ± 0,10 | 0,99 ± 0,08 | 1,02 ± 0,08 |
| C | 3,07 ± 0,64 | 3,36 ± 0,26 | 3,03 ± 0,24 | 3,04 ± 0,31 | 3,29 ± 0,12 | 2,72 ± 0,11 | 2,89 ± 0,10 |

**Tabla 2.** Valores medios de la tasa de dosis obtenida, en µSv/h, por cada punto de los 7 participantes.

| Instrumentos | Participantes |
|---|---|
| Contador proporcional | 3a; 6 |
| Centelleador plástico | 1; 2; 5 |
| Centelleador NaI | 8 |
| Centelleador BGO | 7 |
| Centelleador LaBr3 | 3b |

**Tabla 3.** Instrumentos utilizados y código de los participantes que lo han hecho.

Todos los equipos proporcionaron las medidas en términos de cuentas/(s-cm$^2$), sin embargo, y con el objetivo de poder comparar los resultados, se realizó una calibración *in situ* usando una fuente de $^{137}$Cs, proporcionada por la propia instalación; así es que los resultados también se han proporcionado en Bq equivalentes $^{137}$Cs. La sistemática para la realización de las medidas es la misma que en el caso de la tasa de dosis, con los detectores sin blindar ni colimar y las medidas se realizaron en contacto en los 3 puntos.

## Resultados de las medidas de gamma total

En total se realizaron 25 medidas en cada punto, en 5 tandas de 5 medidas cada una, con el mismo procedimiento que para las medidas de tasa de dosis. El valor medio de los resultados obtenidos en cada uno de los puntos por cada uno de los 8 equipos aparece en la Tabla 4.

Aquí se puede observar muy fácilmente que hay una enorme dispersión en los resultados en todos y cada uno de los puntos. Además, esta dispersión no está realmente relacionada con el tipo de detector de que se trate, de hecho, los grupos 2, 5 y 6 han usado el mismo tipo de detector, pero presentan resultados que difieren en más de un 300 % entre sí. Sin embargo, se puede representar el valor relativo de los resultados obtenidos en los 3 puntos medidos (Figura 2) y se observa que todos las medidas presentan valores para estos cocientes muy similares. El análisis detallado de los equipos y metodologías utilizados han mostrado lo siguiente:

- Las diferencias no dependen del tipo de detector utilizado, sino de la fabricación específica de queda equipo, que incluye, por ejemplo, la relación entre superficie y volumen: al tratarse de un ambiente en el cual la radiación llegaba al detector desde todos los puntos, para iguales superficies, mayores volúmenes activos del detector implicaban mayores tasas de recuento.
- Otro tema a considerar es la distinta respuesta de cada detector a los fotones en función de su energía y también a la radiación beta. Aunque todos los equipos se hayan calibrado frente al $^{137}$Cs, no era éste el radionúclido mayoritario en la zona.
- Tampoco las metodologías fueron del todo comunes en este caso: hubo grupos que midieron directamente con sus equipos, tuviesen estos las características de atenuación para bajas energías y electrones que tuviesen, y otros que optaron por blindar, adicionalmente, el equipo frente a los electrones. Esta opción la eligieron algunos de los grupos que trabajaron con detectores de gran superficie.
- Esto nos lleva a considerar que no se pueden comparar los resultados en gamma total desde el punto de vista de los valores absolutos obtenidos. Ahora bien, si se opta por representar el cociente de los valores obtenidos, por cada grupo, entre un punto y otro punto, se obtienen los resultados que aparecen en la Figura 3, que sí resultan comparables.

Este resultado se puede interpretar como la capacidad adecuada de este tipo de medidas para proporcionar resultados relativos entre diferentes puntos, pero no para proporcionar medidas absolutas. Por lo tanto, estas medidas son idóneas no sólo para localizar puntos calientes, sino también para controlar los procesos de descontaminación.

Otros retos, como puede ser los tiempos de estabilización, etc. no han podido ser evaluados en este ejercicio dada la gran disparidad de resultados presentada.

## Medidas de espectrometría gamma

De nuevo, cada uno de los participantes utilizó sus propios equipos, y también sus propias metodologías de cálculo, para poder chequear la mayor cantidad posible de ellos dentro de las características de la instalación. En cuanto a la tipología de los detectores empleados, 4 HPGe, un CZT y un $LaBr_3$ han sido usados (ver Tabla 5).

**Figura 2.** Valores medios de tasas de dosis, en µSv/h, con sus bandas de incertidumbre asociadas.

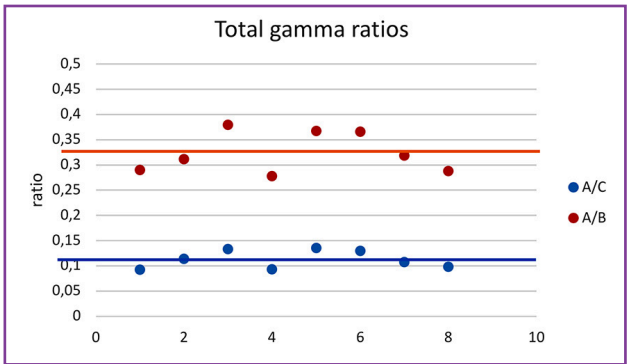


**Figura 3.** Cociente de resultados gamma total entre puntos.

| | 1 | 2 | 3a | 3b | 5 | 6 | 7 | 8 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| A | 25 ± 4 | 28 ± 2 | 67 ± 8 | 31 ± 0 | 8 ± 1 | 13 ± 2 | 56 ± 6 | 188 ± 66 |
| B | 87 ± 7 | 90 ± 3 | 178 ± 13 | 112 ± 1 | 23 ± 2 | 35 ± 5 | 177 ± 11 | 654 ± 229 |
| C | 275 ± 15 | 248 ± 13 | 508 ± 34 | 333 ± 7 | 63 ± 7 | 98 ± 14 | 525 ± 19 | 1918 ± 671 |

**Tabla 4.** Valores medios de medida gamma total obtenida por cada punto de los 8 detectores en cada uno de los 3 puntos, en Bq/cm$^2$ equivalente $^{137}$Cs.

| Instrumentos | Grupos |
|---|---|
| HPGe (ISOC'S) | 1, 5, 6 |
| HPGe (montaje propio) | 2 |
| HPGe (Falcon 5000) | 6 |
| $LaBr_3$ | 3 |
| CZT | 4 |

**Tabla 5.** Instrumentos utilizados y código de los grupos que lo han hecho.

En este caso el procedimiento de medida fue un tanto diferente. Se ha medido en un solo punto, en la base de la instalación (punto C). Cada grupo tomó dos espectros de larga duración, una con el colimador abierto y otro con el colimador cerrado para obtener un espectro de fondo. Siempre enfocando a un punto definido del blindaje biológico, a 30 cm de este y con colimador de 90º.

Cada grupo realizó su propia calibración y todos utilizaron unas u otras versiones de códigos Monte-Carlo para simular la zona y la calibración. Se esperaba obtener resultados para los siguientes parámetros y en las siguientes unidades:

| Parámetro | Unidades |
|---|---|
| Profundidad donde Ba-133 concentración <= 0.1 Bq/g | Cm |
| Profundidad donde Eu-152 concentración <= 0.1 Bq/g | Cm |
| Profundidad donde SUMA (Ba-133/0.1 + Eu-152/0.1) Bq/g <1 | Cm |
| Eu-152/Eu-154 | |
| Cs-137 concentración de actividad superficial | Bq/m² |

Para ello, el SCK/CEN proporcionó ciertos datos sobre la densidad y composición de los dos tipos de hormigón, los perfiles y las longitudes de relajación esperadas, datos que aparecen en la Figura 4. El objetivo de estos datos era que todos los grupos trabajaran con los mismos datos de partida para poder realizar las simulaciones y comparar los resultados, por lo que la validez formal de esta información no fue contrastada.

## Resultados de las medidas de espectrometría gamma

El valor medio de los resultados obtenidos por cada uno de los 6 participantes aparece en la Tabla 6. En este caso, las incertidumbres presentadas son relativas (%).

Se puede observar en esta Tabla 6 que los valores proporcionados por los diferentes grupos para los tres primeros parámetros son bastante coherentes entre sí, siendo las correspondientes desviaciones estándar menores del 10 % en los tres casos. Por otra parte, no se puede observar una tendencia bien definida respecto al tipo de detector empleado; los grupos 3 y 4 son los únicos que no son HPGe, pero los valores que han calculado no siguen una sistemática con respecto a los otros que se pueda considerar común para todos los parámetros determinados.

La situación es distinta en el caso del cociente Eu152/Eu154; en este caso claramente los valores reportados por los grupos 3 y 4 son claramente diferentes a los reportados por los otros grupos. Esto denota las dificultades para evaluar el Eu154 cuando está en pequeñas concentraciones con detectores que no sean HPGe, debido a la alta resolución que estos presentan con respecto a los otros detectores.

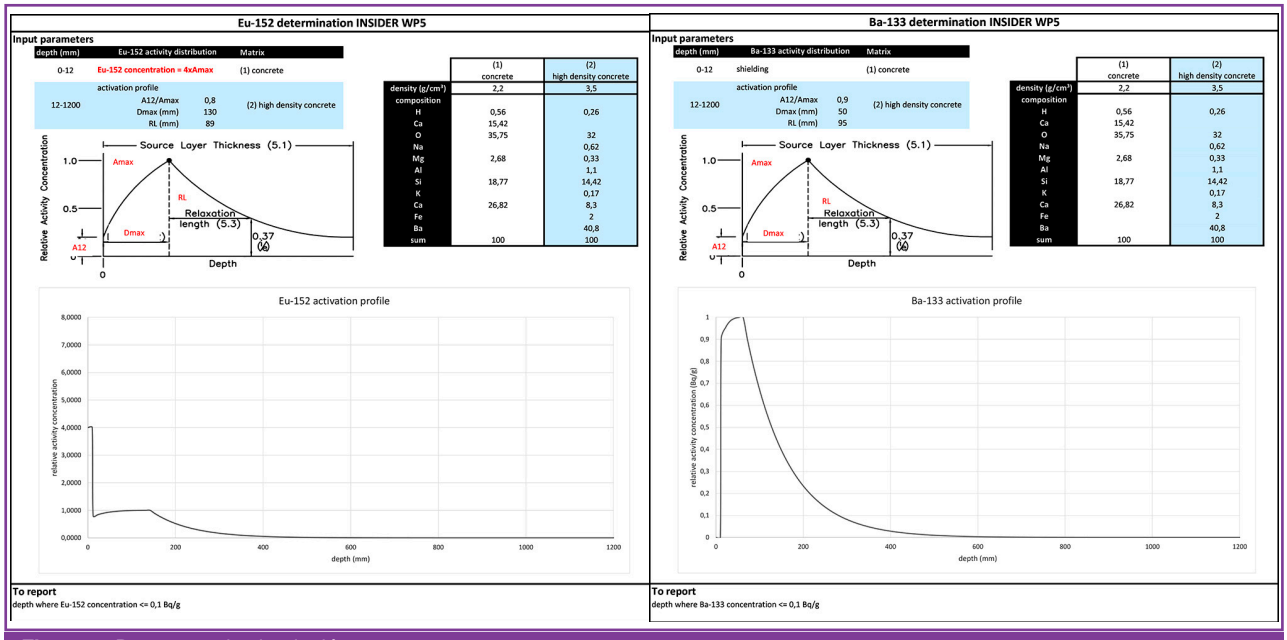


**Figura 4.** Datos para la simulación.

| Parámetros | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| cm Ba-133 c. <= 0.1 Bq/g | 55 +/- 1,2 | 57 +/- 1 | 45,8 +/- 2,1 | 50,5+/-1,6 | 56,9+/- 0,05 | 50,3 |
| cm Eu-152 c. <= 0.1 Bq/g | 38 +/- 4,9 | 45 +/- 2 | 39,7 +/- 2,4 | 36,9+/-2,4 | 37+/-0,2 | 34,5 |
| cm SUMA(Ba-133/0.1 + Eu-152/0.1) Bq/g <1 | 57 | 59 | 65 | 52,2+/-1,2 | 58 | 51,8 |
| Eu-152/Eu-154 | 18 +/- 11 | 13 +/- 10 | 30 +/- 26,9 | 1,8+/-2,3 | 17,2+/-0,9 | 15,62 +/- 0,8 |
| Cs-137 act. con. (Bq/m²) | 3950+/-1,3 | 7385+/-30 | 3680+/- 89 | 8830+/-50,2 | 3437+/-1,3 | 20400+/-0,2 |

**Tabla 6.** Parámetros obtenidos por los seis grupos participantes a partir de espectrometría gamma.

El caso del $^{137}Cs$ es claramente atípico. Se pueden considerar tres bloques de resultados, completamente diferentes entre sí. En uno de bloques aparecen dos detectores de HPGe y el de $LaBr_3$ que han presentado resultados compatibles entre sí; lo mismo podemos decir de los valores reportados por otro de los HPGe y el CZT; sin embargo, el grupo que ha utilizado el Falcon 5000, también HPGe, ha reportado resultados radicalmente distintos al del resto de los grupos. Por lo tanto, se puede concluir que las diferencias no están tanto relacionadas con el detector usado, sino más bien, con los sistemas de calibración, cálculo o evaluación del espectro, que en todos los casos han sido códigos de Monte Carlo.

Mención aparte merece el tema de las incertidumbres. En los dos primeros parámetros, las incertidumbres son similares entre sí e independientes del equipo utilizado. En el caso del cociente entre europios, el detector de $LaBr_3$ es el que proporciona la incertidumbre más alta, como consecuencia de sus dificultades para realizar una correcta evaluación del $^{154}Eu$. Sin embargo, es en la evaluación de la contaminación superficial del $^{137}Cs$ donde se pone de manifiesto las diferencias en las incertidumbres, de nuevo motivadas por la baja resolución de los equipos utilizados por los grupos 3 y 4.

## CONCLUSIONES

Este ejercicio representa la primera intercomparación de medidas *in situ* en el desmantelamiento de un reactor, lo cual ya de por sí en un hito en sí mismo, con el añadido de haberse realizado en un ambiente restrictivo para las medidas. Respecto de los resultados obtenidos se puede decir que las medidas de dosis equivalente ambiental han resultado ser muy satisfactorias con resultados similares entre los diferentes equipos y desviaciones estándar inferiores al 10 %. Asimismo, las medidas de gamma total de los distintos equipos expresadas como cocientes relativos de un punto de medida respecto de otro, también proporcionan similares con desviaciones estándar inferiores al 14 %. Y respecto de las medidas de espectrometría gamma, en el caso de concentraciones media-altas de radionúclidos, los resultados son también muy coherentes con desviaciones estándar inferiores al 10 %. Sin embargo, para concentraciones bajas, las medidas espectrométricas resultan ser muy dependientes del tipo de equipo, en cuanto a resolución y eficiencia, así como de los sistemas de evaluación empleados.

## AGRADECIMIENTOS

Este Proyecto está financiado por el programa de investigación e innovación, Horizonte 2020, de la Unión Europea bajo el acuerdo No 755554. ■