



TESIS DOCTORAL

**Diseño, implementación y gestión de
nuevos sistemas de medida en redes
de vigilancia radiológica automáticas**

Jose Manuel Caballero Andrada

PROGRAMA DE DOCTORADO EN MODELIZACIÓN Y
EXPERIMENTACIÓN EN CIENCIA Y TECNOLOGÍA

2020



TESIS DOCTORAL

**Diseño, implementación y gestión de
nuevos sistemas de medida en redes
de vigilancia radiológica automáticas**

Jose Manuel Caballero Andrada

PROGRAMA DE DOCTORADO EN MODELIZACIÓN Y
EXPERIMENTACIÓN EN CIENCIA Y TECNOLOGÍA

Conformidad de los Directores:

La conformidad de los directores de la tesis consta en el original en papel de esta Tesis Doctoral

Fdo: María Ángeles Ontalba Salamanca

Fdo: José Ángel Corbacho Merino

2020

Índice

0.- Documentación para la presentación y defensa de la tesis doctoralI	
1.- Introducción	3
1.1.- Necesidad de la vigilancia radiológica ambiental	3
1.2.- Contexto internacional, nacional y autonómico	4
1.3.- RARE: origen y evolución	9
1.4.- Desempeño de la RARE en el ejercicio CURIEX2013	15
2.- Motivación y objetivos	19
2.1.-Precedentes: Estaciones de monitorización atmosférica comerciales de la RARE	20
2.2.-Precedentes: Estaciones de monitorización de agua comerciales de la RARE	23
2.3.- Propuesta: Actualización de las estaciones: incorporación de espectrometría gamma y nuevas funcionalidades	28
2.4.-Objetivos específicos y organización de la tesis doctoral.....	31
3.- Métodos y resultados	33
3.1.- Monitores de tasa de equivalente de dosis ambiental (\dot{H}_{10}).....	34
3.1.1.- Definición de niveles de tasa de equivalente de dosis ambiental para la RARE	35
3.2.- Actualización de las estaciones de monitorización atmosférica espectrométricas de la RARE.....	36
3.2.1.- Modificaciones y dispositivos auxiliares.....	36
3.2.2.- Calibración para el análisis de la fracción de partículas y la fracción gaseosa	39
3.2.3.- Carácter dual del sistema: modos de vigilancia y emergencia.....	46
3.2.4.- Consideraciones del funcionamiento rutinario del sistema.....	47
3.2.4.1.- Efectos de la temperatura en los detectores	47
3.2.4.2.- Isótopos identificados y cuantificados en análisis de espectros gamma.	52
3.2.4.3.- Determinación del ^{131}I en aire.....	57
3.2.4.4.- Incremento de tasas de dosis asociados a sucesos de lluvia.	62

3.2.5.- Resultados obtenidos con las estaciones actualizadas de monitorización en aire	69
3.3.- Estaciones de monitorización acuática espectrométricas de la RARE.....	71
3.3.1.- Modificaciones y dispositivos auxiliares	71
3.3.2.- Calibración del sistema de detección.....	74
3.3.3.- Carácter dual del sistema: vigilancia y emergencia	77
3.3.4.- Estudio de sensibilidad del sistema	78
3.3.5.- Resultados obtenidos	86
4.- Conclusiones.....	88
5.- Bibliografía.....	92
6.- Publicaciones de la Tesis Doctoral	99
7.- Sistemas de detección de la RARE 2020.....	209

0.- Documentación para la presentación y defensa de la tesis doctoral

En este apartado, se incluye la documentación requerida para la presentación la tesis doctoral con título “DISEÑO, IMPLEMENTACIÓN Y GESTIÓN DE NUEVOS SISTEMAS DE MEDIDA EN REDES DE VIGILANCIA RADIOLÓGICA AUTOMÁTICA” mediante el formato de compendio de artículos/publicaciones. La información aportada se corresponde con lo establecido en el Procedimiento para la presentación de la tesis doctoral en la Universidad de Extremadura en el Formato de Compendio de Artículos/Publicaciones:

- Autorización del director y codirector para la presentación de la tesis mediante el formato de compendio de artículos/publicaciones.
- Apartado en el que se refleja la coherencia y relación directa entre los artículos/publicaciones presentados.
- Trabajo realizado para el desarrollo de esta tesis doctoral.
- Copia completa de las publicaciones originales que conformarán la Tesis Doctoral.

María Ángeles Ontalba Salamanca, Doctora en Física por la Universidad de Sevilla y Profesora Titular del Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Extremadura, y **José Ángel Corbacho Merino**, Doctor en Física y Profesor Sustituto del Departamento de Didáctica de Ciencias Experimentales de la Universidad de Extremadura, y como miembros del Grupo de Investigación LARUEX, “Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura” con código FQM0001 del catálogo de Grupos de Investigación de la Junta de Extremadura,

CERTIFICAN

Que la presente Memoria de Tesis Doctoral, titulada “*Diseño, implementación y gestión de nuevos sistemas de medida en redes de vigilancia radiológica automáticas*”, ha sido realizada por **José Manuel Caballero Andrada**, bajo su dirección, en el Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Extremadura.

Que, revisada la Memoria de Tesis, expresan su conformidad para que ésta sea sometido a su defensa frente al Tribunal correspondiente, ya que consideran que reúne los requisitos necesarios para optar al grado de Doctor.

Que, habiéndose realizado la Memoria de Tesis por la modalidad de compendio de publicaciones, declaran que el doctorando ha sido responsable de los desarrollos experimentales y ha contribuido de manera esencial en la elaboración de dichas publicaciones. Además, ninguna de las publicaciones en la que se basa esta tesis ha sido ni será utilizada para ninguna otra tesis doctoral.

En Cáceres, a 30 de abril de 2020

Fdo. María Ángeles Ontalba Salamanca

Fdo. José Ángel Corbacho Merino

Coherencia de los artículos

En Extremadura, desde 1992, se dispone de una red automática y en tiempo cuasi-real de vigilancia radiológica ambiental (RARE) centrada, principalmente, en el entorno de la Central Nuclear de Almaraz (CNA) para la monitorización radiológica de aire y agua de dicho ecosistema (Baeza et al., 1993). Esta red se ha ido desarrollando en diferentes etapas en un doble sentido. Por un lado, ha aumentado el número de estaciones radiológicas en funcionamiento, incluyendo algunas fuera del entorno de la CNA, como la de Cáceres capital, la de Santiago de Alcántara, la de Badajoz capital y las del sur de la provincia de Badajoz, en Fregenal de la Sierra y Azuaga, y más recientemente en las poblaciones portuguesas limítrofes de Castelo Branco, Portalegre y Évora. Por otra parte, se han aumentado las capacidades analíticas y de control de las estaciones y esto ha implicado un incremento muy significativo de la cantidad de parámetros, ya sean radiológicos u operacionales, que cada estación registra. En 2013, con motivo del Urgent Response International Exercise (CURIEX 2013), las estaciones (fijas y móvil) de monitorización atmosférica y de agua fueron examinadas frente al movimiento de una nube radiactiva liberada por la central nuclear de Almaraz. Las lecciones aprendidas de este simulacro, reflejadas en el artículo: ***“Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013”***, permitieron consolidar la idea de que era necesario migrar los equipos de análisis de recuentos totales hacia aquellos que nos permitieran reconocer qué radionucleidos son los causantes de una alteración radiológica y cuáles son sus concentraciones en el medio que se está midiendo. Para ello, se toma la decisión de modificar los diferentes equipos de medida y análisis de muestras de aire (aerosoles y gas) [BAI 9850-6, 1997] y agua [BAI 9125, 1992], incorporando un sistema espectrométrico gamma que permita, a través de sus líneas de energía de emisión gamma, identificar y cuantificar los isótopos que provocan alteraciones radiológicas en los medios monitorizados.

La implementación de la espectrometría gamma sobre los equipos de monitorización radiológica entrañó una un estudio exhaustivo, no sólo del diseño estructural de las estaciones, sino, sobre todo, de los resultados analíticos que se podían obtener de ellas.

Para ello, sobre una estación prueba de análisis de aire disponible en Cáceres, se implementaron 2 dos espectrómetros gamma enfrentados a diferentes muestras de aerosoles y carbón activo dopadas con disoluciones de actividad conocida. Los resultados, que permitieron realizar las calibraciones necesarias y, además, obtener los valores de actividad mínima detectable para un rango amplio de isótopos en función del tiempo, fueron publicados en el artículo: ***“Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry”***.

Paralelamente, tras reconocer la importante mejora que suponía la incorporación de la espectrometría gamma sobre las estaciones de monitorización atmosférica, se abordó la modificación de la estación de aguas establecida en el embalse de Valdecañas. El nuevo sistema espectrométrico de la estación mejoró, sobre todo, el análisis de las muestras de agua permitiendo la desaparición de falsos positivos por la acumulación de materia orgánica en el fondo de la vasija tanto por la decantación paulatina de la materia orgánica e inorgánica que contiene el agua que circula continuamente por la vasija como por el agua turbia que se genera tras fenómenos de precipitaciones abundante. Estos resultados son descritos en el artículo: ***“Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks”***.

Los buenos resultados obtenidos sobre la estación de agua así como la estabilidad ofrecida por el sistema espectrométrico gamma y su software asociado, permitió dar el salto a la actualización de las estaciones de monitorización de aire que son intrínsecamente más complejas. En estas, además de la incorporación de la espectrometría gamma, se realizaron modificaciones estructurales para una mejor medida de la muestra y, también, para aumentar la autonomía de la estación. Tras un año de puesta a punto, las capacidades de la nueva estación de monitorización, situada en la localidad de Saucedilla, fueron publicadas en el artículo: ***“Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks”***.

La actualización de las estaciones monitorización de aire ha permitido dar claridad a uno de los fenómenos radiológicos que siempre han estado presentes en los valores de \dot{H}_{10} durante eventos de lluvia. En el artículo ***“Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused***

dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels.” se muestra como este fenómeno es debido al incremento de la concentración de los descendientes del ^{222}Rn (^{214}Pb y ^{214}Bi) en el entorno próximo de los dosímetros Geiger-Müller que se disponen en el exterior de la estación.

Así, desde 2012 que comenzó el inicio de la modificación de las estaciones de monitorización radiológica de la RARE hasta la actualidad (abril de 2020), la RARE dispone de 3 estaciones de monitorización de agua y 4 estaciones de monitorización atmosférica dotadas de espectrometría gamma, ofreciendo monitorización radiológica en modo de emergencia (medidas en tiempo cuasi-real) y en modo de vigilancia (medidas de 6 y 24h), así como valores de otros parámetros no radiológicos relativos a sus respectivos entornos aéreos y acuáticos. Esto ha supuesto un incremento muy elevado del número de datos enviado por cada estación al centro de supervisión, cuyo adecuado tratamiento ha requerido el diseño y desarrollo de aplicaciones informáticas. Tanto la configuración de la RARE en la actualidad como una somera descripción de dichas aplicaciones, son incluidas en el artículo: ***“Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) at 2020: 30 years of development and current performance of on-real time monitoring”***.

1.- Introducción

1.1.- Necesidad de la vigilancia radiológica ambiental

La radiación es un fenómeno físico por el cual determinados cuerpos emiten ondas electromagnéticas o partículas subatómicas que se propagan en su entorno dando lugar a una transferencia de energía al medio. En el caso de que se trate de radiaciones suficientemente energéticas como para ionizar los átomos de los materiales que atraviesen, se denominan radiaciones ionizantes. La radiactividad es una propiedad dinámica de los núcleos caracterizada por una transición desde un estado inicial a uno final con la liberación de energía en forma de radiación.

Dentro del conjunto de las radiaciones ionizantes, hay una notable contribución natural debida a los elementos radiactivos presentes en la corteza terrestre y a los procedentes del espacio exterior, pero, adicionalmente, cada vez son más las instalaciones y actividades de las que puede derivarse la emisión de isótopos radiactivos de carácter artificial. El riesgo que entrañan las radiaciones ionizantes no controladas para los seres vivos se ha puesto de manifiesto de forma muy evidente en diversas ocasiones. Se puede destacar el uso de bombas atómicas en Hiroshima y Nagasaki durante la segunda guerra mundial (1945) y los accidentes de las centrales nucleares de Chernóbil (1986) y Fukushima (2011), como los ejemplos más notorios de las dramáticas consecuencias que puede tener la liberación intencionada o accidental de material radiactivo al medioambiente.

Por todo ello, la protección radiológica tiene como propósito minimizar los potenciales riesgos radiológicos de las instalaciones nucleares derivados de la manipulación y el almacenamiento de sustancias radiactivas o del uso de la energía nuclear para la obtención de energía eléctrica, tanto en circunstancias normales como en caso de incidentes. En particular, la vigilancia radiológica ambiental debe tener como objetivos esenciales: 1) la evaluación del impacto de las descargas al medioambiente y 2) la detección de cambios en las tendencias, a largo plazo, de las concentraciones de actividad o de las tasas de equivalente de dosis ambiental (\dot{H}_{10}) y, de ser el caso, llevar a cabo las

acciones pertinentes que permitan evitar o aminorar los riesgos radiológicos para los trabajadores de las instalaciones nucleares, el público y el medioambiente.

En el caso de las redes automáticas de alerta radiológica ambiental, el objetivo es la cuantificación, en el menor tiempo posible, de un conjunto de parámetros radiológicos en el medio a controlar (agua y/o aire), tales que permitan ofrecer una rápida información de las alteraciones que en él se producen y de su gravedad.

1.2.- Contexto internacional, nacional y autonómico

El Acta de Adhesión de España a las Comunidades Europeas es un tratado por el que España ingresó en la Comunidad Económica Europea –en la actualidad Unión Europea- el 1 de enero de 1986 y, entre otros aspectos, supuso la aceptación del Tratado de la Comunidad Europea de la Energía Atómica o Euratom, firmado en 1957. En él, se establecía como objetivo, dado el déficit generalizado de energía “tradicional” de los años cincuenta, el desarrollo de una industria nuclear propia en Europa mediante la creación de un mercado común de equipos y materiales nucleares, así como el establecimiento de unas normas básicas en materia de seguridad y protección de la población. Consecuentemente, España tuvo que incorporar a la legislación nacional directivas sobre la protección radiológica requerida por la Unión Europea. En particular, los artículos 35 y 36 de Euratom establecen, respectivamente, que “Cada Estado miembro creará las instalaciones necesarias a fin de controlar de modo permanente el índice de radiactividad de la atmósfera, de las aguas y del suelo, así como la observación de las normas básicas” y que “La información relativa a los controles mencionados en el artículo 35 será comunicada regularmente por las autoridades competentes a la Comisión, a fin de tenerla al corriente del índice de radiactividad que pudiere afectar a la población.” [BOE, 1986].

En España, la autoridad competente en materia de seguridad nuclear y protección radiológica es el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) que tiene como principal objetivo asegurar el cumplimiento de los compromisos adquiridos en el Tratado Euratom [CSN_EURATOM,2020]. Para ello, ha establecido una serie de redes y programas de vigilancia radiológica ambiental con objeto de detectar y controlar las posibles alteraciones radiológicas en el medioambiente, así como establecer las posteriores actuaciones, precauciones y medidas correctoras que sean necesarias.

El CSN dispone, desde 1992, de un Programa de Vigilancia de la Radiación Ambiental (programa Revira) de alcance nacional integrado por una Red de Estaciones de Muestreo (REM) y una Red de Estaciones Automáticas de vigilancia en continuo (REA). Además, establece a los titulares de las centrales nucleares un programa de vigilancia radiológica que es ejecutado antes, durante y posteriormente al cese de la actividad en instalaciones nucleares para conocer la evolución radiológica ambiental durante las diferentes etapas de vida de la instalación (PVRA). En el caso de los programas REM y PVRA, se toman muestras ambientales (suelos, aire, agua potable, leche, dieta tipo, aguas fluviales o marítimas) en diferentes emplazamientos del territorio nacional (*Figura 1*) para ser trasladadas a laboratorios de universidades u otros organismos públicos o privados, especializados en medidas de muestras ambientales de baja actividad radiactiva, donde, posteriormente, serán preparadas y analizadas con el propósito de determinar sus niveles de actividad radiactiva abarcando las diferentes vías de exposición de los individuos a las radiaciones ionizantes.

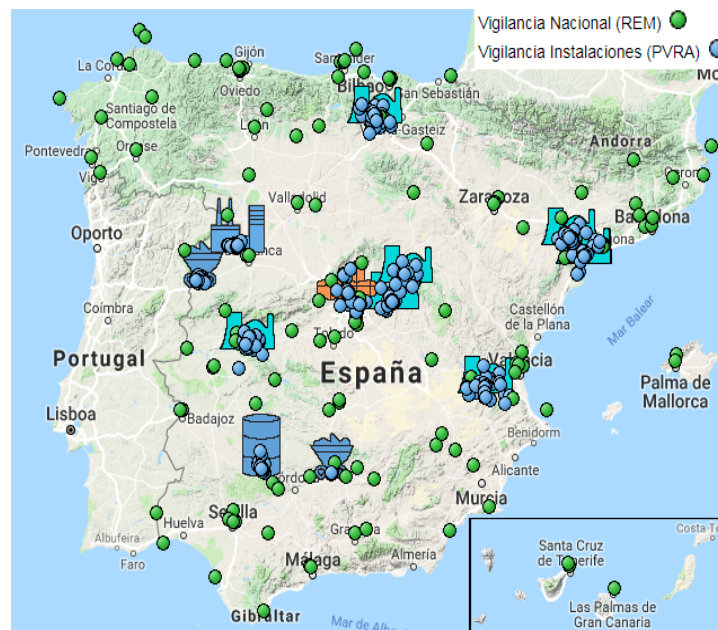


Figura 1. Estaciones de muestreo de las redes de estaciones de muestreo del CSN: vigilancia Nacional (REM) y vigilancia de instalaciones nucleares (PVRA) [CSN_PVRAREM, 2020].

Por otra parte, la REA tiene por objeto la vigilancia en tiempo real de la radiactividad en la atmósfera. Esta red está constituida por 25 estaciones de monitorización radiológica integradas con instrumentación para la medida de variables radiológicas (\dot{H}_{10} , concentración de radón en aire, radioyodos, índices alfa y beta en aire) y de variables meteorológicas (temperatura, humedad relativa, dirección y velocidad del viento, precipitación y presión atmosférica). Además, determinadas comunidades autónomas como Valencia, Cataluña, País Vasco y Extremadura disponen de sus propias redes de vigilancia radiológica ambiental, con equipamientos similares a los de la REA y cuyos valores radiológicos se integran en dicha red mediante acuerdos con las administraciones públicas involucradas. A nivel nacional, la recepción, gestión y análisis de los diferentes valores radiológicos procedentes de las estaciones de la REA y de las estaciones autonómicas anteriormente mencionadas, se realiza desde el Centro de Supervisión y Control (CSC) ubicado en la sala de emergencias (Salem) del CSN, permitiendo realizar un seguimiento permanente de los diferentes niveles de actividades y tasas de dosis registradas en cada emplazamiento, incluyendo aquellas posibles alarmas debido a incrementos de la tasa de dosis equivalente ambiental y que suponen recibir una dosis superior a 1 mSv/año. Este valor es el límite de dosis efectiva que pueden recibir los miembros del público, aunque puede ser modificado excepcionalmente por el CSN durante un año siempre que el promedio de la dosis recibida en un periodo de 5 años sea inferior al 1mSv [**Real Decreto 783/2001, 2001**]. Toda información radiológica recabada de las diferentes estaciones de medida es emitida por el propio CSN, previo análisis exhaustivo de sus valores, a través de su página web (<https://www.csn.es/mapa-de-valores-ambientales>) indicando el valor medio diario y mensual de los valores de tasa de dosis equivalente ambiental registrados en cada una de ellas (*Figura 2*).



Figura 2. Valores medios diarios y mensuales de la tasa de dosis equivalente ambiental registrada en las diferentes estaciones automáticas de la REA y las Redes de Alerta Autonómicas [CSN_REA,2020].

Adicionalmente, la Dirección General de Protección Civil y Emergencias (DGPCYE) tiene instaladas por todo el territorio nacional 907 estaciones de monitorización de \dot{H}_{10} con una distribución bastante uniforme en todo el territorio nacional (Figura 3), aunque existen zonas de mayor densidad de medidas junto a las centrales nucleares e instalaciones radiactivas situadas con mayor densidad de dispositivos ubicadas en las proximidades de las zonas limítrofes al país, así como las adscritas a la Dirección General de la Energía [Ministerio de Energía de España, 2020].

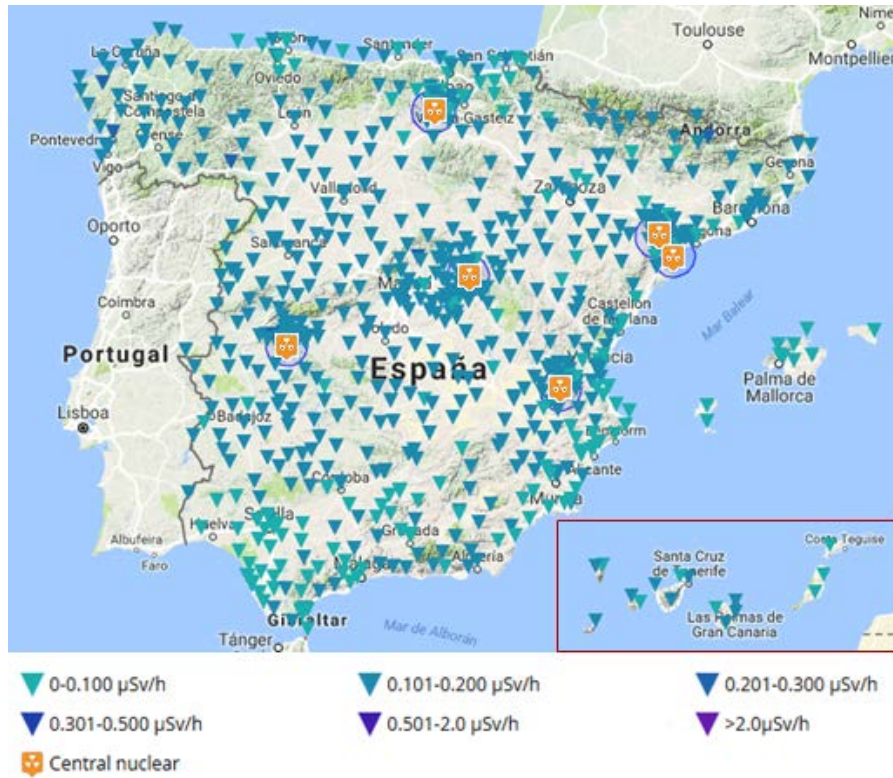


Figura 3.- Valores medios diarios de la tasa de dosis equivalente ambiental de la red de alerta temprana RAR (Red de Alerta de Radiactividad) de la DGPCYE [Protección Civil_RAR, 2020].

Por último, mencionar que España, de acuerdo con la Decisión del Consejo 87/600/Euratom y la Recomendación 2000/473/Euratom, participa en la European Radiological Exchange Platform (EURDEP, <https://remon.jrc.ec.europa.eu/Services>, Figura 4) que integra automáticamente los valores de tasa de equivalente de dosis ambiental en continuo proporcionados por unas 5000 estaciones instaladas en 39 países.

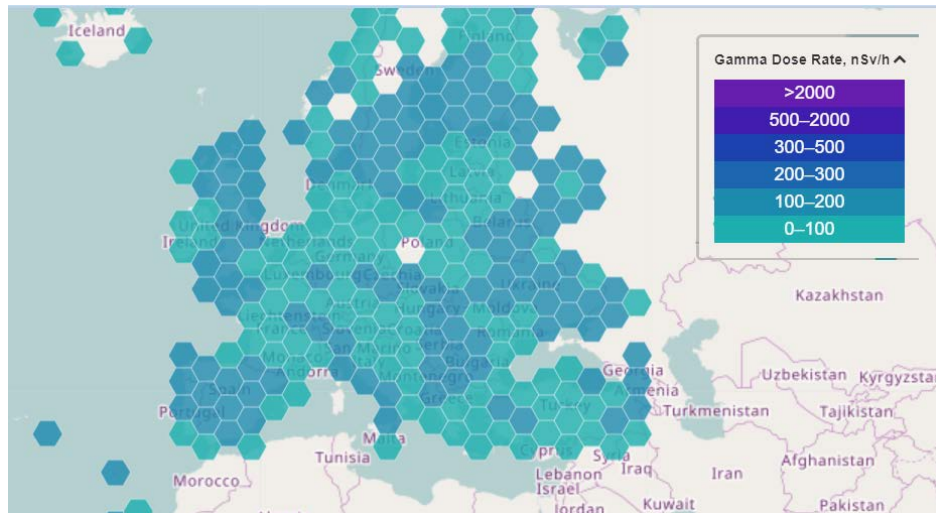


Figura 4. Valores medios o máximos diarios, según selección, de la tasa de dosis equivalente ambiental registrada en las diferentes estaciones integradas en EURDEP [EURDEP, 2020].

1.3.- RARE: origen y evolución

En Extremadura, el gobierno de la comunidad autónoma lleva a cabo un plan de vigilancia radiológica ambiental paralelo al PVRA implementado en la Central Nuclear de Almaraz (CNA), que tiene como función el análisis periódico de contenidos radiactivos de origen artificial en la atmósfera (aerosoles), biota y productos de consumo (agua, peces, carnes, vegetales, leche) a fin de diagnosticar y cuantificar el potencial impacto radiológico en los ecosistemas afectados por el funcionamiento rutinario de la CNA y, además, poder comparar estos datos con aquellos aportados al CSN procedentes del PVRA de la CNA. Adicionalmente, Extremadura también cuenta con una Red de Alerta Temprana que se denomina Red Automática de Alerta Radiológica de Extremadura (RARE). La RARE fue diseñada e instaurada en 1990 por el grupo de investigación LARUEX de la Universidad de Extremadura [Baeza et al, 1993] y desde esa misma fecha también se encarga de su operación y gestión. Tiene como objetivo la medida, en tiempo real, de los niveles radiactivos y dosimétricos del entorno de la CNA, así como de otras estaciones emplazadas en el entorno limítrofe de la región e incluso estaciones ubicadas en Portugal.

Los resultados de las diferentes medidas de los niveles de radiactividad presentes en aire y agua de los distintos enclaves donde se encuentran las estaciones de monitorización automáticas, son transferidos no sólo al centro de operaciones de Cáceres, emplazado en la Universidad de Extremadura y denominado ALERTA2, sino también al CSN y a la Junta de Extremadura, de acuerdo con los convenios existentes entre las tres instituciones involucradas.

Por otra parte, es importante señalar que la RARE, desde sus inicios, está en continuo desarrollo y evolución, con el doble propósito de, por una parte, fomentar el aumento del número de estaciones en funcionamiento y, por otro, incrementar las capacidades radiológicas que éstas pueden registrar. De hecho, en la actualidad, 2020, la RARE se encuentra integrada por 17 estaciones fijas destinadas a la vigilancia atmosférica donde, 3 de ellas, además están dedicadas a la vigilancia acuática. La distribución de las 17 estaciones en el entorno de Extremadura mostrado en la *Figura 5* es:

- 9 en poblaciones del entorno próximo de la CNA.
- 1 en el Centro de Operaciones ALERTA2, situado en la ciudad de Cáceres.
- 1 en la provincia de Cáceres en un enclave fronterizo con Portugal.
- 3 en la provincia de Badajoz (una de ellas próxima al almacén de residuos radiactivos de baja y media actividad de El Cabril (Córdoba)).
- 3 en Portugal, situadas en enclaves fronterizos con Extremadura.



Figura 5. Estatus de la Red de Alerta Radiológica de Extremadura, en cuanto a emplazamiento de estaciones fijas y móviles de monitorización, en 2020.

En lo referente a las estaciones de vigilancia atmosférica, todas ellas (17) están dotadas de contadores Geiger-Müller para la determinación de \dot{H}_{10} , pero, además, existen 5 estaciones que cuentan con la capacidad de monitorizar un mayor número de parámetros de control radiológico y que denominamos multiparamétricas. Estas estaciones multiparamétricas son de dos tipos, por un lado, una que cuenta con un monitor de aerosoles que proporciona concentraciones de actividad total de emisores α y β de origen artificial junto con un monitor que cuantifica la actividad de ^{131}I en el aire [BAI 9850-6, 1997] (estación de Serrejón) y, por otro lado, aquellas que están constituidas por un evolucionado monitor de aire que, a través de sistemas espectrométricos basados en detectores de centelleo, proporciona concentraciones de actividad de diversos isótopos presentes la fracción de partículas del aire retenida por un filtro de fibra de vidrio más la

de aquellos posibles isótopos del yodo de la fracción gaseosa del aire captada por un cartucho de carbón activo (estaciones de Saucedilla, Santiago de Alcántara, Azuaga y Fregenal de la Sierra).

Para la vigilancia de los efluentes líquidos vertidos sobre los ríos Tajo y Guadiana, la RARE dispone de 3 estaciones multiparamétricas de vigilancia radiológica integradas, todas ellas, por un sistema de análisis consistente en una vasija de 25L de capacidad y un sistema espectrométrico gamma basado en un detector de centelleo sólido que proporciona los valores actividad de diversos radionucleidos contenidos en el agua que fluye de forma continuada en la vasija. Dos de las estaciones de monitorización del agua están situadas en el río Tajo, concretamente en el embalse de Valdecañas (aguas arriba de la CNA) y junto al canal de descarga del embalse de Arrocampo (aguas abajo de la CNA), y la tercera se encuentra en el río Guadiana en las cercanías la ciudad de Badajoz.

Las principales características de los equipamientos de estas 17 estaciones a fecha de 01/04/2020 quedan especificadas en el **Apartado 7**. Además, un elevado número de estaciones cuentan con una estación meteorológica propia de carácter automático, capaz de medir distintas variables meteorológicas que faciliten obtener una posible interpretación sobre los incrementos de radiactividad registrados en la estación ante posibles alteraciones de los contenidos radiológicos. Entre estas variables se encuentran la dirección y la velocidad del viento, la pluviometría, la presión atmosférica, la temperatura, la humedad, y, en algún caso particular, la irradiación solar.

Precisamente, el diseño y la puesta a punto de los sistemas espectrométricos gamma en la RARE anteriormente mencionados, tanto para la monitorización de aire y agua, pueden ser considerados como la piedra angular de la presente Tesis Doctoral, si bien su desarrollo ha implicado tanto la incorporación de equipamientos auxiliares como la contribución al desarrollo de aplicaciones informáticas para la adecuada gestión de la información generada.

Además de las estaciones fijas, la RARE cuenta con un Laboratorio Móvil, ampliamente descrito en **Baeza et al. [Baeza et al, 2013]**, para identificar y cuantificar contaminaciones radiactivas allí donde sea requerido, pudiendo ofrecer en tiempo cuasi

real niveles de actividad y/o dosimétricos gracias al uso de distintos tipos de espectrómetros gamma.

Los datos medidos en las distintas estaciones de la RARE son enviados a Alerta2 y, desde allí y cuando procede, a los centros decisorios (CSN y Dirección General de Medio Ambiente de la Junta de Extremadura) para que se establezcan, si fueran necesarias, las medidas de actuación oportunas y así evitar o minimizar una exposición de las personas frente a radiaciones ionizantes que suponga sobrepasar los diferentes niveles de dosis establecidos para actuantes y público general o, al menos, minimizar sus efectos [**Real Decreto 783/2001, 2001**]. Para ello, resulta esencial la incorporación de diferentes vías posibles de comunicación así mostradas en la *Figura 6*. Los criterios analizados para su elección en cada estación son: capacidad de envío de datos (ancho de banda), coste económico, cobertura y disponibilidad. Así, en base a estos criterios, las estaciones de la RARE que se encuentran en el entorno de la CNA disponen de hasta 2 ó 3 sistemas de comunicaciones privados (radiofrecuencia analógica, radiofrecuencia digital e intranet) y/o público (4G) dependiendo de la cantidad de bytes que requiera el envío de la información obtenida en la estación. Además, los centros de operaciones y decisorios, cuentan con líneas públicas y privadas con capacidad para permitir tanto el envío como la visualización remota desde otros organismos de todos los datos registrados en las estaciones (*Figura 6*).

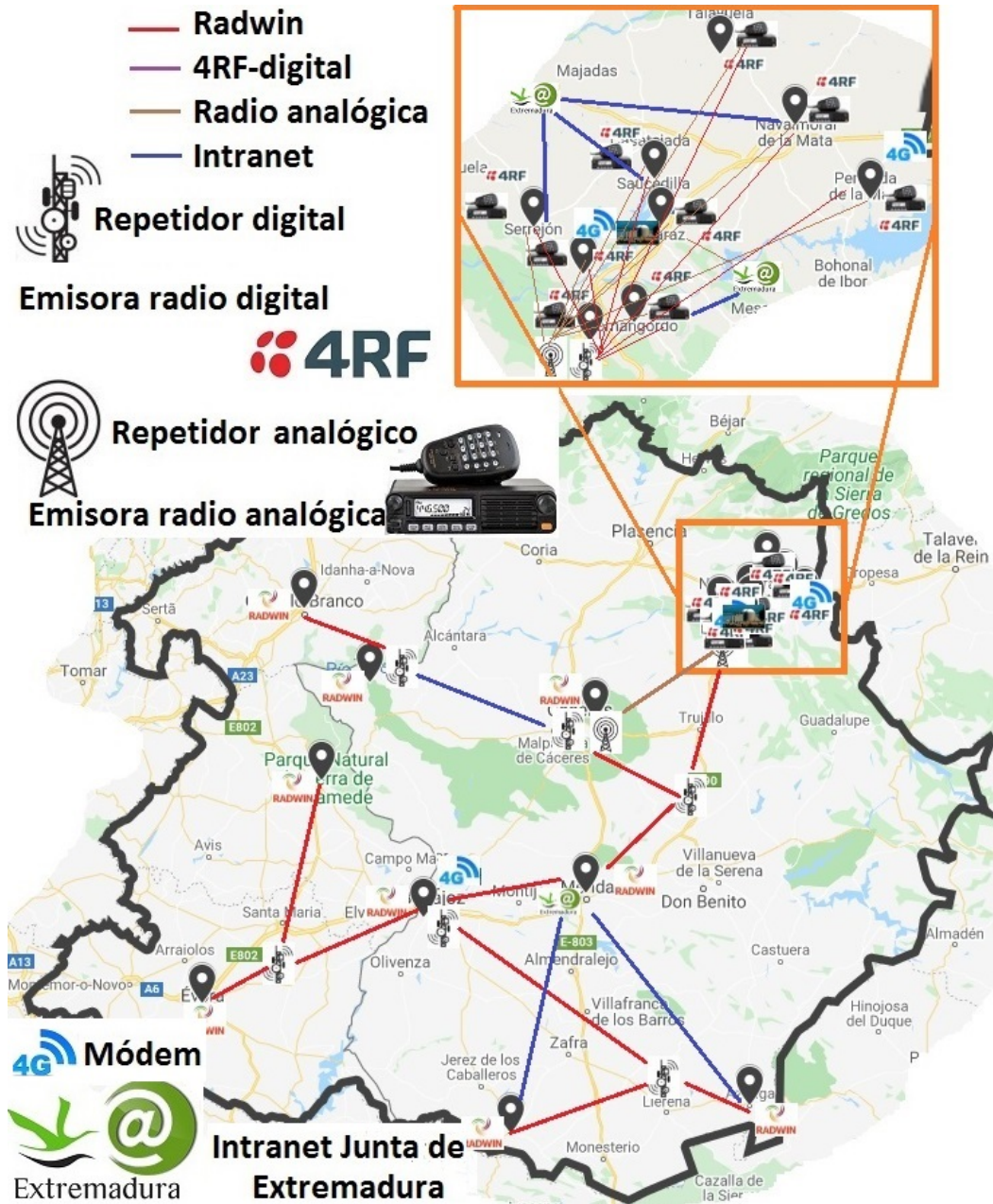


Figura 6. Estatus de las vías de comunicación de datos en Red de Alerta Radiológica de Extremadura en 2019.

1.4.- Desempeño de la RARE en el ejercicio CURIEX2013

La evolución y actualización del equipamiento de la RARE es uno de los principales propósitos que el grupo de investigación LARUEX ha tenido para mantener, en todo momento, una vigilancia precisa y exhaustiva sobre los niveles de radiactividad en las diferentes zonas controladas de nuestra región, así como en aquellas donde se puedan producir accidentes y sea necesaria la participación de los equipos móviles.

En base a estos principios, en noviembre de 2013, la RARE participó en el **Cáceres Urgent Response International Exercise (CURIEX)** poniendo a disposición de la organización del ejercicio toda la información radiológica de las diferentes estaciones fijas que se encuentran en el entorno de la CNA además del Laboratorio Móvil, con el objetivo de conocer las capacidades de los sistemas de detección, las comunicaciones y el suministro eléctrico en ambos tipos de equipamiento como respuesta a un hipotético accidente nuclear. El ejercicio se desarrolló en 3 días, estando el primero de ellos dedicado a simular un accidente de categoría IV en la CNA, donde se produce una liberación accidental de concentraciones significativas de material radiactivo durante la noche implicando el establecimiento de medidas de protección sobre la población clasificadas como nivel 3. Este nivel 3 de medidas de protección requiere aplicar medidas urgentes como el confinamiento y/o evacuación de los habitantes de aquellas poblaciones situadas en un área circular de radio 10 km con respecto a la CNA y definido como Zona I (*Figura 7*), y, además, establecer controles de acceso a dicha zona y distribuir profilaxis de yodo entre la población residente en ella **[Real Decreto 1546/2004, 2004]**. Dentro de esta zona I, donde se encuentran las estaciones de monitorización radiológica de aire situadas en las poblaciones de Serrejón, Saucedilla, Romangordo y Casas de Miravete más la estación de monitorización radiológica de agua emplazada en el río Tajo junto al canal de descarga del Embalse de Arrocampo, se fueron progresivamente registrando las variaciones de valores de \dot{H}_{10} producidos por el desplazamiento simulado de la pluma radiactiva liberada en la dirección Almaraz-Trujillo. El segundo y tercer día del ejercicio se destina a las correspondientes tareas de caracterización radiológica de las áreas potencialmente afectadas por la liberación de efluentes radiactivos y, para las cuales, la RARE emplea su Laboratorio Móvil recorriendo 3 itinerarios diferentes dentro de las zonas I y II

(Figura 7) enviando a los Centros de Operaciones (Alerta2, SALEM- CSN- y Dirección de Consejería de Medio Ambiente de la Junta de Extremadura), cada 3 minutos, los valores de tasa de dosis georreferenciados y las concentraciones de actividad en suelo y aire muestreadas y analizadas con un espectrómetro gamma, en cada punto geográfico marcado por el organismo regulador del evento [CNAT, 2013][Protección Civil, 2013][CSN, 2013].

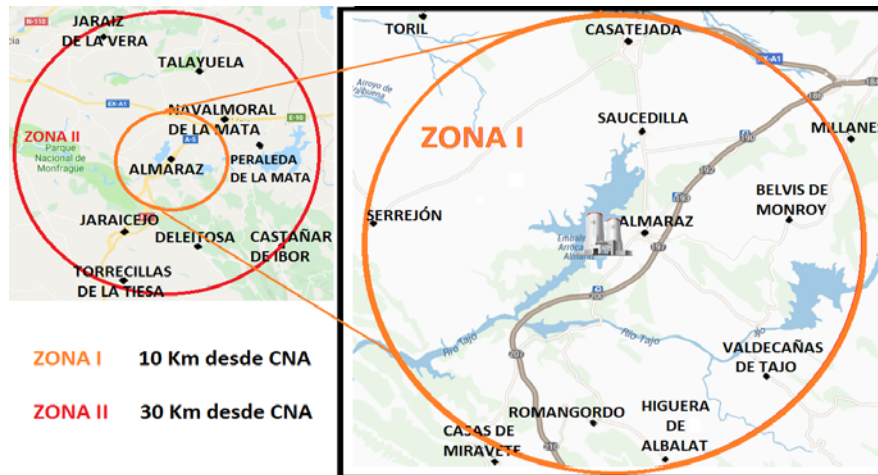


Figura 7. Zonas de planificación de emergencia entorno a la Central Nuclear de Almaraz y poblaciones incluidas. Zona I: 10 Km de radio. Zona II: entre 10 y 30 km de radio. [PENCA, 2009].

El balance de la experiencia en el ejercicio del CURIEX 2013, muestra una más que satisfactoria respuesta de las comunicaciones entre las estaciones de monitorización radiológica fijas y el Laboratorio Móvil con Alerta2. La operatividad alcanzada en las comunicaciones fue del 98% en ambos casos. Además, los equipos de medidas radiológicas dispuestos en las distintas estaciones de vigilancia de la zona I, es decir, los monitores medida de \dot{H}_{10} y equipos que monitorizan en los aerosoles las concentraciones de radón y radioyodos así como los índices alfa y beta total, mantuvieron su capacidad para realizar medidas pese a la pérdida de suministro eléctrico externo y hasta agotar los recursos energéticos propios de la estación compuestos por sistemas de alimentación ininterrumpida y grupos electrógenos. En esta experiencia, además, se puso

principalmente de manifiesto la necesidad de identificar los radionucleidos responsables del incremento de la \dot{H}_{10} registrada al paso de la nube radiactiva. Por otra parte, se evidenció la necesidad de aumentar la posibilidad de realizar medidas simultáneas de muestras en el laboratorio móvil utilizando los diferentes espectrómetros gamma que este dispone, así como mejorar los procedimientos para la toma de muestras de suelos (entre otros) evitando una posible contaminación interna del Laboratorio Móvil e incorporar nuevos equipos de acumulación de energía eléctrica en lo referente a las estaciones fijas. Finalmente, esta experiencia muestra que es necesario mejorar la velocidad y la seguridad de los datos enviados entre Alerta2 y la SALEM, sobre todo, en los momentos críticos propios de un posible accidente nuclear.

El análisis de los resultados de la participación del LARUJEX en el ejercicio CURIEX 2013 queda plasmado en la siguiente publicación que es parte de la presente tesis doctoral:

Artículo 1: “Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013”

De hecho, dicho análisis de resultados, tanto de las estaciones fijas como del Laboratorio Móvil, supuso el punto de partida para ir desarrollando e implementando las mejoras y correcciones necesarias en la RARE a través de la participación en diferentes proyectos I+D relacionados con la protección radiológica. Uno de los proyectos, financiado por el CSN, ha sido: *“Puesta a punto, gestión y optimización de una estación piloto para la detección automática y en tiempo cuasi real de actividades específicas de radiopartículas y radioyodos en aire”*. Este proyecto ha tenido como objetivo principal la modificación de los equipos de monitorización radiológica de aire que proporcionan medidas de índice de actividad alfa y beta total y concentración de radón y radioyodos [BAI 9850-6, 1997] mediante la implementación de sistemas espectrométricos que, además de proporcionar valores de actividad específica, permitan identificar el radionucleido responsable. De hecho, se tienen como antecedentes los estudios de la Unitat de Física Médica de la Universitat Rovira i Virgili, donde se muestran las capacidades de los sistemas espectrométricos gamma en equipos de monitorización radiológica ambiental [Casanovas, 2014] [Prieto, 2017]. Por otro lado, se han incorporado nuevos sistemas de

alimentación eléctrica ininterrumpidos (SAI) en aquellas estaciones fijas donde la autonomía era inferior a 24 horas y se ha definido el diseño del actual laboratorio móvil donde se encuentran integrados los diferentes equipos de detección para la caracterización del suelo y facilitar medidas rápidas de concentraciones de radioyodos en aire más la posibilidad de presurización del habitáculo del vehículo, resolviendo así las carencias apreciadas durante la participación en el ejercicio CURIEX.

2.- Motivación y objetivos

En este apartado, a fin de poner de manifiesto las fortalezas y limitaciones de los equipos de monitorización radiológica de carácter comercial de la RARE, como precedentes, se va a comenzar con una descripción de los elementos que la integran y las capacidades analíticas de las que disponen, tanto para la monitorización atmosférica como del agua. A continuación, motivados por el convencimiento de la necesidad de implementar la espectrometría gamma en los sistemas de monitorización, se incluye la propuesta de actualización de las estaciones en base al equipamiento disponible en la RARE y la existencia en el mercado de sistemas espectrométricos de carácter compacto. Además, decir que el grupo de investigación LARUEX cuenta, por un parte, con una extensa experiencia en el empleo de la espectrometría gamma como método para la determinación de concentraciones de actividad en diferentes tipos de muestras en laboratorios de medidas de baja actividad a través de distintas aplicaciones informáticas, pero, también, con las capacidades para su manipulación cuando es necesaria la incorporación de librerías de análisis en nuevas aplicaciones con funcionalidades añadidas. El objetivo principal es identificar y cuantificar cerca del 90% de los isótopos del material radiactivo que una central nuclear puede liberar al medioambiente, por lo que se ha apostado por la actualización de las estaciones originales de monitorización radiológica implementando la espectrometría gamma en los diferentes equipos. La incorporación de la espectrometría evitará futuras suposiciones sobre la procedencia de las alteraciones de los niveles de radiactividad detectados a partir de equipos de recuento y que, en ocasiones, puede llevar a interpretaciones erróneas o incompletas. Para llevar a cabo todo ello de forma satisfactoria, se incluyen en este apartado los objetivos específicos necesarios. Por ejemplo, dado que los equipos constituyen parte fundamental dentro de una red de alerta radiológica automática que aporta niveles de radiactividad en tiempo cuasi real, es interesante dotarlos de la mayor autonomía posible tanto para el muestreo como para mantenerse activa en ausencia de alimentación eléctrica y realizar de forma correcta su cometido, evitar la interferencia de radionucleidos artificiales ya identificados y cuantificados sobre la muestra que está siendo captada, facilitar la posibilidad de aislar

una muestra con niveles de radiactividad superiores a los registrados históricamente para un análisis más exhaustivo en laboratorios de medidas de baja actividad.

2.1.-Precedentes: Estaciones de monitorización atmosférica comerciales de la RARE

Las estaciones comerciales de monitorización de aerosoles de la RARE, que siguen activas en algún emplazamiento y están constituidas por el sistema BAI-9850-6 de la compañía Berthold [**BAI 9850-6, 1997**], el cual dispone de dos módulos para captación y medida de muestra atmosférica:

a) Monitor de aerosoles: El sistema, gracias a la acción de una bomba de aspiración con un caudal de 22 m³/h, permite la acumulación de los aerosoles sobre un filtro de fibra de vidrio que se mueve en continuo con una velocidad de 10 mm/h. Sobre la zona de captación de muestra se dispone de un doble detector de centelleo, ZnS(Ag)+plástico, junto con su cadena electrónica que, basándose en un método de pseudocoincidencias, permite estimar el índice de actividad alfa y beta total de origen artificial, así como la concentración de equivalente de radón en las partículas retenidas en el filtro [**Barriuso C, 2010**]. Concretamente, dicho método consiste en que el sistema electrónico de medida, cuando detecta simultáneamente, en un tiempo inferior a <163µs, una partícula alfa y una partícula beta, asume que estas proceden de la desintegración beta del ²¹⁴Bi y alfa del ²¹⁴Pb, ambos pertenecientes a la serie del ²³⁸U y descendientes del radón y, por lo tanto, de origen natural.

Los resultados que proporciona este monitor son, por sí mismos, una limitación, pues resulta imposible la identificación y cuantificación independiente de los isótopos naturales y/o artificiales presentes en el filtro continuo. Pero, además, si se examinan los valores que proporciona el monitor, se puede cuestionar la fiabilidad del funcionamiento del circuito de pseudocoincidencia. En la *Figura 8*, se muestra la evolución de los índices de actividades alfa y beta total de origen artificial, así como la concentración equivalente de radón, para dos estaciones de la RARE, Saucedilla y Serrejón, durante un mismo día de medida.

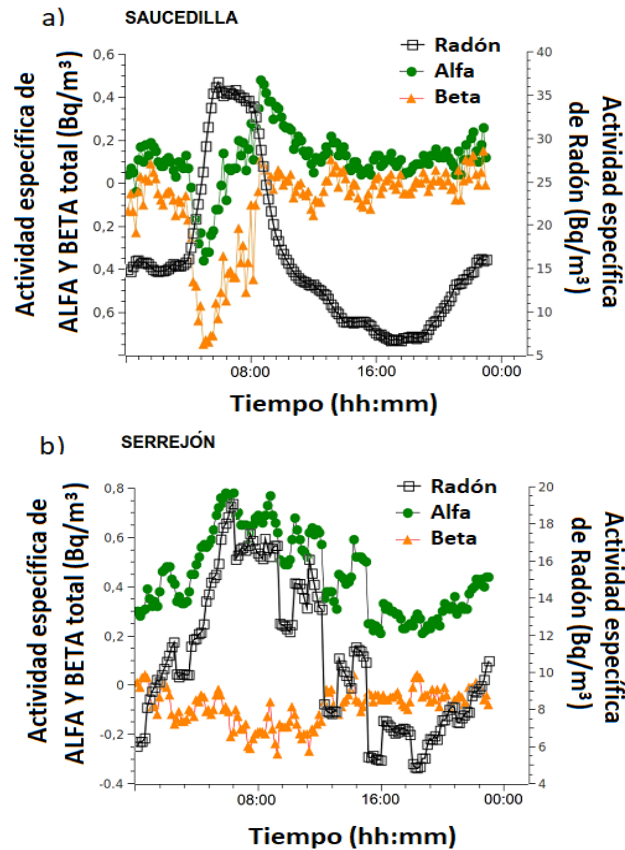


Figura 8. Valores de actividades específicas alfa total, beta total y radón obtenidas para las estaciones de la RARE (Saucedilla y Serrejón) en un mismo día.

En el caso de la estación de Saucedilla (*Figura 8.a*), puede verse cómo al aumentar la concentración equivalente del radón de forma significativa (primeras horas del día), se observa un incremento de los valores de los índices de actividad alfa y beta total, lo que indica que la sustracción mediante el método de las pseudocoincidencias de la componente natural no se está realizando de forma adecuada. En el caso de la estación de Serrejón (*Figura 8.b*), la evolución temporal de los índices de actividad alfa y beta total es diferente, aumentando con la disminución de la concentración del radón, lo que indica, para este caso, que la sustracción de la contribución del fondo es demasiado elevada.

Para resolver estas discrepancias, debe ajustarse diariamente el funcionamiento del circuito de pseudocoincidencias tal y como se propuso en un trabajo anterior [Baeza et

al, 1997] y, si bien es un proceso tedioso, también requiere la necesidad de asumir que las alteraciones radiológicas del día previo son únicamente de carácter natural, es decir, debidas al radón y sus descendientes.

b) Monitor de radioyodos gaseosos: El sistema, donde parte del caudal de aire que atraviesa el filtro continuo es impulsado gracias a la acción de una bomba adicional de caudal en el rango de 4 a 6 m³/h, hace pasar el aire a través de un cartucho de carbón activo impregnado con TEDA (trietilendiamina) que tiene una excelente eficiencia de retención de radioyodos gaseosos. Frente al cartucho, se encuentra un detector gamma de NaI(Tl) que cuenta con una cadena electrónica basada en 2 monocanales centrados en la energía de 364,5 keV y con anchuras una doble de la otra que permite calcular los recuentos totales de ambas regiones y, por tanto, estimar la actividad del ¹³¹I a partir de ellas. Este cálculo de actividad no es adecuado porque no se tiene en cuenta la contribución del fondo ambiental (²¹⁴Pb a 351,99 keV) sobre todo si los niveles de actividad de ¹³¹I retenidos son del orden de los niveles de ²¹⁴Pb.

Inicialmente, la mayoría de estas estaciones de monitorización de aire se encontraban acompañadas de un monitor de H₁₀ tipo Geiger-Müller, modelo LB6361 de la compañía Berthold, con rangos de medida de 10⁻⁴ a 1 Sv/h y de 80 keV a 1,3 MeV. [LB6361, 2010] y que han ido sustituyéndose, debido a su deterioro en el tiempo, por monitores de tasa de dosis similares como el Gammtracer [GAMMATRACERXL2, 2020].

La experiencia adquirida sobre este tipo de estaciones de monitorización radiactiva del aire permite mostrar una serie de limitaciones:

a) Información limitada del contenido radiactivo del aire. Los resultados proporcionados en la fase de partículas hacen imposible la identificación y cuantificación independiente de los isótopos naturales y/o artificiales presentes en el filtro continuo. En la fase gaseosa tampoco es posible la identificación de otros isótopos radiactivos gaseosos que pudieran estar presentes así mismo en el aire y consecuentemente quedar retenidos en el cartucho de carbón.

b) Incorrecto cálculo de los niveles de actividad específica de radioyodos en forma gaseosa debido al método indirecto de sustraer del recuento total el fondo ambiental. Para el caso de los radioyodos presentes sobre partículas y retenidos en el filtro de fibra de

vidrio, se cuestiona la fiabilidad del funcionamiento del circuito de pseudocoincidencia a la vista de las diferencias observadas en los índices de actividad beta total medidos simultáneamente en las estaciones de Saucedilla y Serrejón en un mismo periodo de tiempo.

- c) Ausencia de un sistema automático que permita controlar remotamente el cambio del cartucho de carbón activo sin necesidad de que un operario acuda a la estación de manera presencial, reduciendo notablemente el coste de mantenimiento de la misma.
- d) Imposibilidad de realizar la toma de muestras de aerosoles o gases independientes tras la detección de niveles radiactivos puntuales durante la monitorización continua del aire. En el caso concreto de los cartuchos de retención de gas, puede que el cartucho lleve un tiempo considerable expuesto al caudal de aire que por él circula y esté parcialmente colmatado, no siendo fiable el resultado que proporciona su medida en presencia de radioyodos.
- e) Imposibilidad de realizar un segundo o tercer análisis, si fuera necesario, sobre una muestra en la que se ha detectado un valor de concentración radiactiva anómalo.

2.2.-Precedentes: Estaciones de monitorización de agua comerciales de la RARE

De la misma manera, las estaciones de monitorización de aguas originalmente instaladas en la RARE y que, a día de hoy, ya están actualizadas, correspondían al sistema BAI 9125 de la compañía Berthold [BAI 9125, 1992]. Este equipamiento estaba integrado por: a) un detector de centelleo de NaI(Tl) de 2" x 2", con una resolución energética del 8% a 661,65 keV, b) una cadena electrónica de análisis y c) una vasija de acero inoxidable de 25L de capacidad dentro de un blindaje de plomo. La cadena electrónica de análisis lo componían una fuente para proporcionar una diferencia de tensión al detector dentro del rango los 400 y 1400 V, un amplificador de señal y un sistema analizador con dos monocanales, con rangos energéticos seleccionables por el usuario y que proporcionaban valores de recuentos proporcionales a las actividades específicas de, como máximo, los dos radionucleidos preseleccionados, que pudieran estar presentes en el agua que circulaba a través de la vasija de la estación de monitorización. Generalmente, se adecuaba

el sistema para determinar las actividades del ^{131}I y del ^{137}Cs , asignando en cada analizador monocanal un rango de energías, de forma que todos los recuentos gamma registrados por el detector NaI(Tl), con energías comprendidas en dichos rangos serán contabilizados por él. El rango de energías seleccionado para cada analizador monocanal era, 320 a 400 keV para ^{131}I (que principalmente emite a 364,5 keV) y 596 a 728 keV para el ^{137}Cs (que principalmente emite a 661,65 keV).

Junto con este sistema de detección y a los sistemas de gestión de datos, las configuraciones estándar de las estaciones de monitorización de aguas de la RARE disponían de una bomba de aspiración de agua, con la que se hacía circular el agua a monitorizar por el interior de la vasija y un rotámetro mecánico, el cual permitía conocer, tras su regulación mediante llaves manuales de paso, el caudal de agua instantáneo que entraba en la vasija.

En la *Figura 9* se muestran los datos de actividad específica medidos en las aguas de la estación del embalse de Valdecañas durante 2011 para los radionucleidos ^{131}I y ^{137}Cs . De su observación cabe destacar, en primer lugar, que los niveles de actividad para estos dos radionucleidos no son nulos, como inicialmente cabría de esperar, al encontrarse este punto de toma de aguas a más de 100 Km de potenciales fuentes de ^{131}I y ^{137}Cs aguas arriba (hospitales de Toledo y Madrid y Central Nuclear de Trillo) y fuera de la influencia de la CNA:

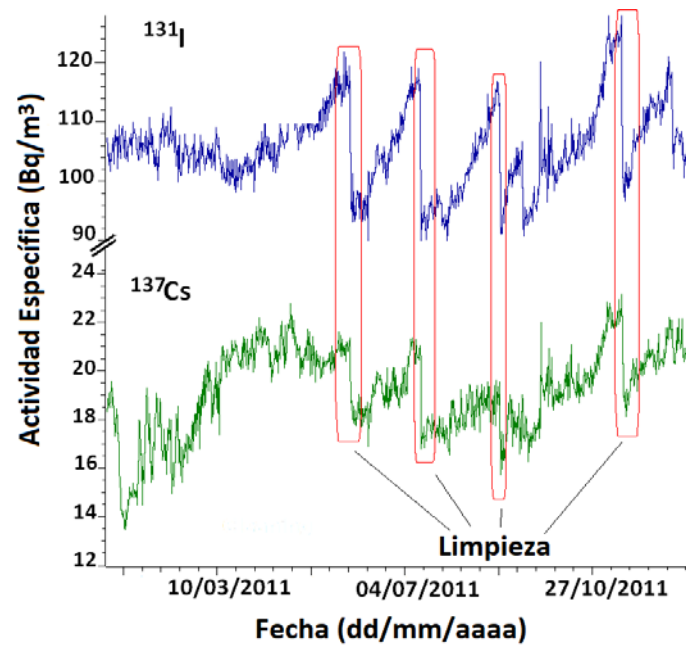


Figura 9.- Evolución temporal de los valores de ^{131}I y ^{137}Cs registrados por la estación de monitorización de aguas original, modelo BAI 9125.

Por otro lado, se observa que su evolución temporal tampoco es constante, sino que presenta unos incrementos progresivos, seguidos de unos descensos bruscos de los recuentos totales. Estos incrementos paulatinos y simultáneos de las supuestas concentraciones del ^{131}I y del ^{137}Cs en las aguas, se deben fundamentalmente a la presencia creciente de los radionucleidos naturales en los lodos y materia orgánica que, progresivamente, se acumulan en el interior de la vasija. Las principales contribuciones gamma a este recuento son fundamentalmente dos: Por un lado, los fotones emitidos por radionucleidos naturales con líneas intensas de desintegración gamma dentro de las ventanas definidas para registrar los fotones originados por las desintegraciones de ^{131}I y ^{137}Cs , tales como las líneas de 351,9 keV del ^{214}Pb y la de 609,4 keV del ^{214}Bi , entre otras. Por otro lado, los fotones generados por efecto Compton debido a las emisiones gamma de radionucleidos naturales con líneas intensas de desintegración gamma a mayores energías que las ventanas energéticas de interés del ^{131}I y ^{137}Cs , tales como las líneas de 911 keV del ^{228}Ac , la del 1460,7 keV del ^{40}K y la de 1764,5 del ^{214}Bi .

Debido a este fenómeno se estableció que, cuando los valores de actividad específica de ^{131}I alcanzaban valores superiores a uno predefinido y del orden de 110 Bq/m^3 durante varios días consecutivos, se debía proceder a la limpieza de lodo acumulado en el interior de la vasija, que, en algunas ocasiones, ha llegado a ocupar hasta un 20% del volumen total de la misma. Este proceso de mantenimiento era el responsable de que, inmediatamente después de la limpieza, los supuestos niveles de actividad de ^{131}I y ^{137}Cs registrados disminuyeran hasta en un 50%, tal y como se visualiza en la *Figura 9*.

Otra serie de valores que precisan una adecuada interpretación son los incrementos de actividad específica de ^{131}I y ^{137}Cs que se registran durante los periodos de lluvias relativamente intensas en la zona de la monitorización de las aguas. Como puede verse en la *Figura 10*, la presencia de dichas precipitaciones produce un incremento significativo en los valores de la actividad específica de ^{131}I y ^{137}Cs registrados por el sistema de medida BAI 9125. La posible justificación de dichos incrementos tiene su origen en una mayor presencia de partículas sólidas en suspensión en el agua del río Tajo, aumentando, en consecuencia, el contenido de isótopos naturales cuyos fotopicos y fondo Compton asociados produce el incremento del recuento que registran los dos monocanales de la cadena electrónica de análisis BAI-9125.

En conclusión, las configuraciones originales de las estaciones de monitorización radiactiva de agua comerciales que originalmente poseía la RARE presentaban una serie de limitaciones que se resumen a continuación:

a) Incorrecta asignación de los niveles radiactivos que, para los radionucleidos seleccionados, poseía el agua analizada, siendo de hecho muy frecuente que los incrementos de recuento detectados no sean directamente imputables a los fotones gamma emitidos por el ^{131}I y el ^{137}Cs .

b) Información limitada del contenido radiactivo del agua monitorizada, puesto que, en principio, sólo era posible identificar la presencia de los dos radionucleidos preseleccionados.

c) Ausencia de un sistema que permitiera determinar remotamente si el agua que se está analizando fluía o no por la vasija o si, incluso, la vasija estaba vacía por un mal funcionamiento del sistema de bombeo.

d) Imposibilidad de realizar la toma de una muestra de agua en la que durante su monitorización se habían detectado niveles radiactivos puntuales anómalos para su posterior análisis en un laboratorio de bajo fondo, de forma que, mediante técnicas radioquímicas mucho más precisas, se pudiera validar o

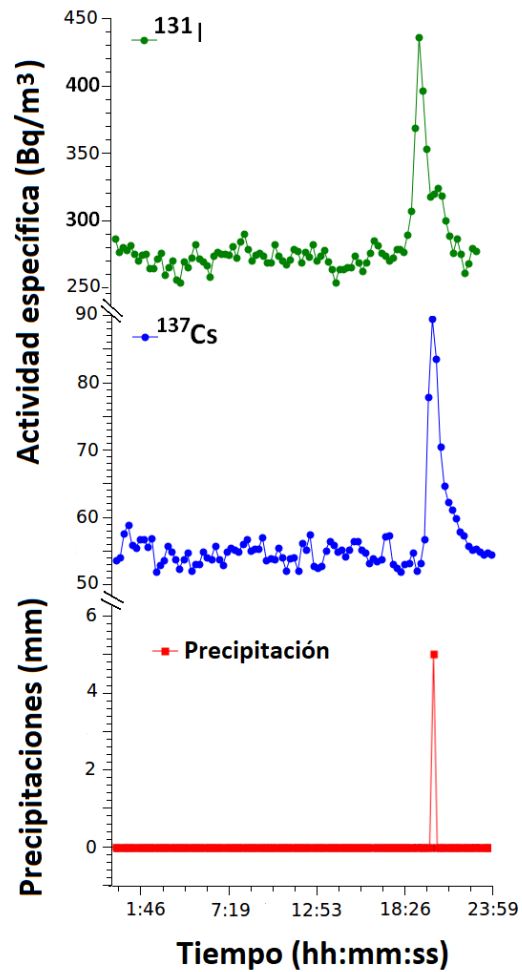


Figura 10. Incrementos de las supuestas actividades específicas de ^{131}I y ^{137}Cs registrados por la estación de monitorización de aguas original, BAI 9125, así como los registros de pluviometría efectuados por la estación meteorológica de la RARE.

no la anomalía radiológica detectada y, en su caso, cuantificarla en toda su amplitud.

e) Ausencia de un sistema automático de eliminación de lodos acumulados en el interior de la vasija, de forma que se disminuyera el fondo que registra el detector, minimizando las tareas de mantenimiento de la estación de monitorización.

2.3.- Propuesta: Actualización de las estaciones: incorporación de espectrometría gamma y nuevas funcionalidades

Tal y como se ha analizado en los subapartados anteriores, el análisis de los resultados radiológicos registrados durante más de 20 años desde la instauración de la RARE con los sistemas de monitorización originales de la compañía Berthold en la región de Extremadura, pone principalmente de manifiesto y de manera genérica, la necesidad de mejorar la capacidad de identificación y cuantificación de la actividad de los radionucleidos responsables tanto de los incrementos sobre los niveles de \dot{H}_{10} característicos de la zona monitorizada como de los valores de actividad específica determinados por los equipos de monitorización de aire y agua. Esta actualización se basa fundamentalmente en la incorporación de sistemas de espectrometría gamma modernos y compactos en las estaciones de monitorización radiológica que permitirían, a partir de la adquisición y análisis de espectros gamma sobre los medios monitorizados, aumentar las capacidades analíticas y solventar las limitaciones de los equipos originales de medida radiológica. Además, el empleo de sistemas de espectrometría gamma permite no sólo medidas en tiempo cuasi real, sino que, gracias a la posibilidad para sumar algebraicamente espectros, se pueden obtener registros de actividades correspondientes a tiempos de medida mayores propiciando la disminución de los límites de detección proporcionados por el sistema. Es decir, resulta posible poner a punto un sistema que permite trabajar de forma dual: emergencias y vigilancia.

Por otro lado, las estaciones de monitorización de agua y aire originales de Berthold presentan diferentes limitaciones en relación a la autonomía que proporcionan en las situaciones de emergencias y sobre las tareas de mantenimiento. Así, en situaciones de emergencia radiológica, ambos tipos de estaciones de monitorización, no contemplan la

posibilidad de capturar muestras para, a posteriori, poder realizar un análisis más exhaustivo en los laboratorios de medidas de baja actividad. En particular, para las estaciones de monitorización radiológica de aire, el diseño del equipo BAI 9850-6, en el que el filtro de fibra de vidrio se desplaza de forma continua y a una velocidad de 10 mm/h frente al detector, si ocurre una contaminación radiológica que es captada como depósito de aerosol en el filtro, es imposible conocer la duración del evento puesto que el filtro estará expuesto al detector hasta 7 horas y, además, incluso una vez retirada la zona de captación contaminada de la posición frente al detector, las emisiones pueden seguir alcanzando el mismo (Figura 11).

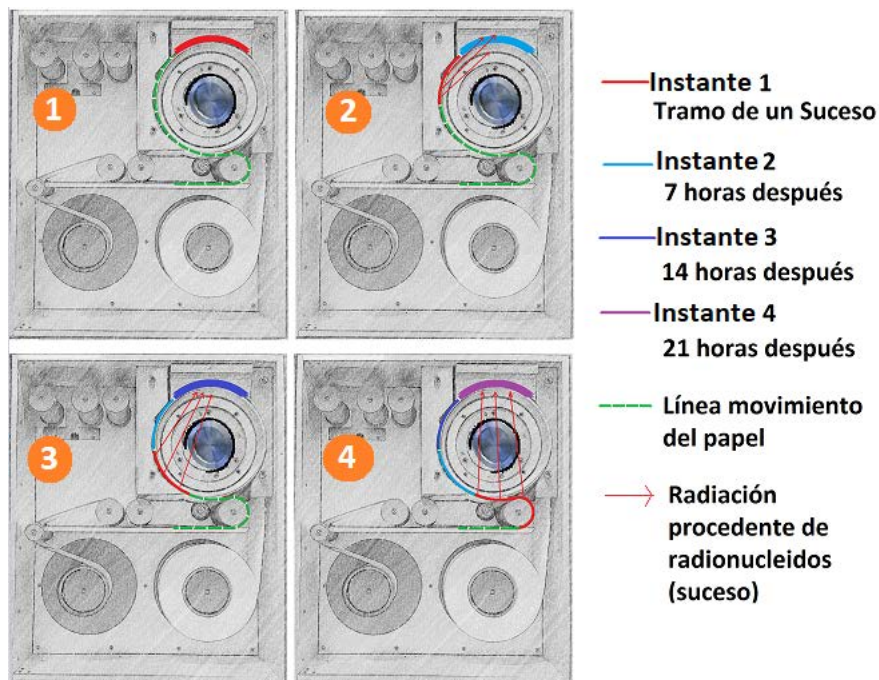


Figura 11. Movimiento de las muestras de aerosoles elaboradas en las estaciones Berthold BAI-9125.

La alternativa desarrollada, que se describirá con mayor detalle más adelante, presenta una nueva forma de captación independiente de muestras de aerosoles en las estaciones de aire y una particular gestión de los espectros registrados cada, por ejemplo, 10

minutos, para que, en caso de evento radiológico, poder determinar cuándo ocurre y su duración en el tiempo.

En las estaciones de monitorización radiológica de agua, tanto si la muestra de agua analizada contiene los niveles radiológicos de referencia de la zona como si contiene concentraciones elevadas de actividad, el agua es expulsada al exterior sin la posibilidad de retener parte de la misma para un posterior análisis exhaustivo en los laboratorios de análisis de muestras de baja actividad que corrobore los valores de actividad de los radionucleidos artificiales detectados. La solución propuesta en este trabajo e implementada sobre todas las estaciones de aguas de la RARE cuenta con un sistema automatizado para la captación de una alícuota de agua en un recipiente de 50L de capacidad gestionado por un conjunto de válvulas eléctricas que son activadas cuando los niveles de radiactividad registrados para el ^{131}I y el ^{137}Cs superan los valores límites establecidos en el RD 314/2016 [BOE, 2016] para agua potables que son 6 y 11 Bq/L respectivamente o, por otro lado, se observa que el valor de recuentos totales por espectro supera el 30% del valor promedio de la estación.

Respecto al mantenimiento de las estaciones de monitorización radiológica, el principal problema observado es la elevada falta de automatización para realizar tareas básicas y frecuentes en el tiempo. Prueba de ello es, por ejemplo, que en las estaciones de monitorización de aire, el cambio del cartucho de carbón activo se debe realizar tras 7 días de exposición, como recomienda su fabricante [RADECO, 2019]. Esto es así porque la estación BAI 9850-6 se diseñó de forma que sólo permite albergar un cartucho en el módulo de retención de gas y esto obliga a acudir a la estación con frecuencia a sustituirlo por uno nuevo. Por otro lado, en las estaciones de monitorización de agua, la presencia de personal técnico es necesaria para la limpieza de lodos que se acumulan en el interior de la vasija de retención de agua con una periodicidad entre 15 y 30 días, según la turbidez del agua y, aún más frecuentemente, cuando hay precipitaciones o el nivel de agua del embalse disminuye en la zona de captación o por la proliferación de materia orgánica en el agua de la zona, favorecida por las condiciones climatológicas, que, posteriormente, decanta en la vasija aumentando los falsos niveles de actividad de ^{137}Cs y ^{131}I por incremento del fondo Compton [Ferrer, 2015] . Tanto en las estaciones de

monitorización atmosférica como de agua, las necesidades de mantenimiento pueden ser aminoradas mediante la incorporación de nuevos dispositivos, que permitan tanto el cambio programado del cartucho de carbón como la limpieza automática de lodos acumulados en el interior de la vasija.

Toda esta actualización de las estaciones de ambos tipos de monitorización genera una gran cantidad de nuevos parámetros que han de ser gestionados y analizados, por lo que la revisión independiente de cada uno de ellos en cada estación de la RARE sería un trabajo ingente, arduo y de larga duración para una red de vigilancia en tiempo cuasi real de 17 estaciones de mayor o menor complejidad. Por ello, en colaboración con la sección informática de la RARE, se han desarrollado nuevos programas de visualización e interpretación de parámetros radiológicos, meteorológicos y de control de equipos que son necesarios con el fin de facilitar la labor diaria de revisión de resultados que proporciona la RARE y la necesaria generación de alarmas ante sucesos de índole radiológica o fallos de equipos de medida.

2.4.-Objetivos específicos y organización de la tesis doctoral

Si bien, el pilar principal sobre el que pivota la presente tesis doctoral y que es su principal objetivo, es la implementación y puesta a punto de los sistemas modernos de espectrometría gamma en las estaciones automáticas de monitorización radiactiva de agua y aire de la RARE, éste puede ser desglosado en los siguientes objetivos específicos:

- 1) Con la vista puesta en mejorar la cuantificación de la concentración de actividad de los radionucleidos detectados por la estación automática, uno de los objetivos es la modificación mecánica de los sistemas de captación de muestra, así como el desarrollo de nuevas lógicas de adquisición y análisis de espectros gamma que permitan cuantificar, con elevada precisión, la actividad de los radionucleidos considerados, cuándo tiene lugar una anomalía radiológica y, por otro lado, identificar de forma precisa su duración temporal.
- 2) En la actualidad existe un amplio abanico de espectrómetros gamma basados en cristales centelleadores. Por ello, otro de los objetivos de esta tesis es el estudio de

distintos tipos de centelleadores para los sistemas espectrométricos y su adaptación en los emplazamientos concretos de las estaciones, incluyendo el desarrollo de una adecuada metodología de calibración experimental.

3) Las mejoras en sistemas mecánicos y espectrométricos permiten ir un paso más allá en las capacidades de las estaciones automáticas, permitiendo la implantación en ellas de la capacidad dual de monitorización: red de alerta temprana y red de vigilancia.

4) Contribución al diseño de las aplicaciones informáticas destinadas a la adquisición y análisis de espectros, facilitando la calibración automática de los espectros gamma para evitar problemas causados, entre otros, por la influencia de la temperatura sobre la ganancia del detector.

5) Tratamiento automatizado de falsos positivos de actividad de radionucleidos de carácter artificial en situaciones donde la presencia de concentraciones de radón es elevada a fin de minimizar la generación de alarmas innecesarias.

6) Contribución al diseño del software que permita la gestión y revisión de la información generada por el conjunto de antiguos y nuevos sistemas de monitorización radiológica, así como de parámetros meteorológicos y aquellos que son de carácter operacional.

7) Estudio de las alteraciones de la tasa de dosis por irradiación externa durante los eventos de lluvia.

8) Análisis de la sensibilidad del sistema de detección en función de la concentración de actividad presente en las muestras.

9) Reducción de las tareas de mantenimiento de las estaciones.

10) Estudio e incorporación de elementos de control y de tipo auxiliar para mejorar la automatización y autonomía de las estaciones de monitorización radiológica.

3.- Métodos y resultados

El desarrollo fundamental de la parte experimental de la presente Tesis Doctoral queda reflejado en los siguientes artículos indexados bajo un índice de calidad del Journal Citation Report:

Artículo 2: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Ontalba-Salamanca, M. Á., & Vasco, J. (2014). Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 87, 57-60.

Artículo 3: Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. A., Vasco, J., & Valencia, D. (2017). Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 37(3), 642.

Artículo 4: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Salamanca, M. Á. O., & Vasco, J. (2014). Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 34(2), 313.

Artículo 5: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. A., Ontalba, M. A., & Vasco, J. (2020). Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels. *Radiation Measurements*, 106324.

No obstante, a fin de facilitar la lectura y una visión global del trabajo llevado a cabo, se dedica esta sección a describir, de una forma breve, los distintos aspectos abordados en cuanto a las nuevas capacidades de las estaciones de monitorización de la RARE tras el diseño, implementación y funcionamiento de los sistemas espectrométricos, así como las contribuciones para el desarrollo de las herramientas informáticas para la adecuada gestión de la información por las nuevas estaciones automáticas de monitorización de la RARE.

3.1.- Monitores de tasa de equivalente de dosis ambiental (\dot{H}_{10}).

La tasa de equivalente de dosis ambiental es una de las magnitudes fundamentales e imprescindibles en radioprotección y su determinación se realiza, principalmente, empleando detectores de ionización gaseosa que, en función de su diferencia de potencial entre cátodo y ánodo, pueden ser catalogados como cámaras de ionización, contadores proporcionales o contadores Geiger-Müller. El uso de este tipo de detectores está justificado por, entre otras características, su alta robustez, su bajo coste económico y, sobre todo, por su precisión de medida para altas dosis. Dichos detectores de gas, pese a disponer de una eficiencia de detección muy inferior frente a los detectores de centelleo o semiconductor, tienen una mayor capacidad para crear señales eléctricas procedentes de un gran número de partículas que lo atraviesan, es decir, poseen tiempos muertos más bajos en situaciones de elevada ionización [Ferrer, 2015] .

En la vigilancia radiológica atmosférica, el uso de \dot{H}_{10} tiene una especial relevancia para la detección inmediata de anomalías radiológicas. Esta magnitud global, proporciona una información pronta del estatus radiológico de la zona monitorizada, a través, mayoritariamente, de detectores Geiger-Müller operando en condiciones que pueden llegar a ser muy extremas desde el punto de vista radiológico (sensibilidad: de 10 nSv/h a 10 Sv/h, rango energético: de 45 keV a 2 MeV) o meteorológico (rango operacional de temperatura: 0 - 60 °C y humedad relativa: 0 - 95%) y sin influencia de la presión atmosférica [GAMMATRACERXL2, 2020]), con unas necesidades de mantenimiento calificables como mínimas y una configuración muy sencilla dentro de una red de alerta radiológica, en lo que se refiere a registro y transmisión de la información y, por supuesto, de generación de notificaciones ante niveles preestablecidos que son explicados en la siguiente sección.

Por lo tanto, aún sin disponer de la capacidad de identificación de el/los radionucleido/s que pueden provocar los incrementos de \dot{H}_{10} , dada su elevada capacidad de operación frente a exposiciones extremas de radiación, se considera esencial la presencia de detectores de gas en las redes de alerta radiológicas tempranas [EURATOM,1996].

3.1.1.- Definición de niveles de tasa de equivalente de dosis ambiental para la RARE

Debido a las características geológicas de Extremadura, existe una gran variabilidad en el fondo radiológico natural entre los diferentes emplazamientos de las estaciones de la RARE [Poncela et al, 2004]. Algunas estaciones situadas en el entorno de la CNA presentan valores promedio de la tasa de dosis por irradiación del orden de 0,132 $\mu\text{Sv/h}$. Este valor es aproximadamente 2,3 veces superior al promedio de la tasa de dosis por irradiación externa en los suelos de la provincia de Cáceres (0,057 $\mu\text{Sv/h}$) determinado en un estudio previo Baeza et al. [Baeza et al, 1994]. Por otro lado, está la variabilidad natural del fondo ambiental debida principalmente a la concentración de Radón y Torón en el aire y que presenta una oscilación no superior al 30 % del valor medio anual de la tasa de dosis equivalente ambiental de fondo. Por otra parte, la normativa española, en relación a la protección radiológica, establece como valor máximo de dosis al público de 1mSv en un año descontando el fondo ambiental. Por ello, en la RARE se han establecidos 3 niveles de aviso:

Nivel 1: incremento del 30% del promedio anual del fondo natural registrado en la estación.

Nivel 2: 0,114 $\mu\text{Sv/h}$ más el promedio anual del fondo natural registrado en la estación, que equivaldría al límite de tasa de dosis máxima por ley (1mSv/año) que recibiría una persona del público si ésta se mantuviera expuesta durante un año.

Nivel 3: 0,228 $\mu\text{Sv/h}$ más el promedio anual del fondo natural registrado en la estación, que equivaldría a que dicho límite (1mSv/año) se alcanzara en 6 meses.

El Nivel 1 garantiza la notificación de una alteración del valor de \dot{H}_{10} de la zona significativa, de forma que puede entenderse como una pre-alerta para los responsables de la RARE. El Nivel 2 y el Nivel 3, sin embargo, reflejan una situación de alarma de acuerdo con la normativa española, que establece, como ya se ha indicado, para el público general, 1 mSv/año como el máximo permitido exceptuando la contribución del fondo natural [Real Decreto 783/2001, 2001].

3.2.- Actualización de las estaciones de monitorización atmosférica espectrométricas de la RARE

3.2.1.- Modificaciones y dispositivos auxiliares.

La modificación esencial llevada a cabo en la estación de monitorización atmosférica reside en la sustitución de los sistemas de detección originales, detectores de SZn+plástico y NaI(Tl) con sus electrónicas, por sistemas espectrométricos gamma, tanto para la fracción de partículas como para la fracción gaseosa del aire, usando detectores de LaBr₃(Ce) y NaI(Tl) de tamaño de cristal 2"x 2" acoplados a sistemas multicanales compactos. Respecto del sistema Berthold original, obviamente se pierde la capacidad de analizar emisores alfa puros (^{238,239,240}Pu) y beta puros (^{89,90}Sr), pero tal y como se ha documentado sobre los accidentes nucleares de Chernobyl y Fukushima [**Steinhauser et al., 2014**], las contribuciones de los emisores alfa y beta puros constituyeron, respectivamente, un 1,3% y 0,3%, de la actividad total liberada al medioambiente. De hecho, en el accidente de Fukushima, los radionucleidos liberados más abundantes fueron gaseosos y volátiles (¹³³Xe, ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs), apareciendo en las etapas iniciales del accidente emisores gamma de vida corta, como ¹³³I, ¹³²I, ¹³⁶Cs, ¹³²Te, ^{129m}Te (¹²⁹Te), ⁹⁹Mo, ^{99m}Tc, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La, ⁹⁵Nb y ^{110m}Ag, todos ellos en el rango energético de 100–700 keV [**Steinhauser et al., 2014**], y siendo factible la detección de todos ellos por las estaciones de monitorización de aire de carácter espectrométrico.

Respecto al módulo BAI 9100D de la estación original, para el análisis de la fracción de partículas, se optó por conservar básicamente la estructura, si bien se optimizó el recorrido del filtro (*Figura 12*) y el tiempo de exposición de la zona de captación frente al detector. El filtro en la nueva estación no se mueve de forma continua frente al detector, si no que permanece estático frente a él durante 6 horas captando aerosoles siendo analizados a intervalos de 10 minutos. Transcurrido ese tiempo, se activan los motores que mueven el rollo de filtro de fibra de vidrio y se coloca una fracción limpia de éste para volver a iniciar el proceso. Los tiempos son configurables y el nuevo recorrido del filtro reduce la influencia de un tramo de filtro ya medido con anterioridad gracias a su

inserción inmediata fuera del blindaje de plomo que rodea el área de captación y el detector.

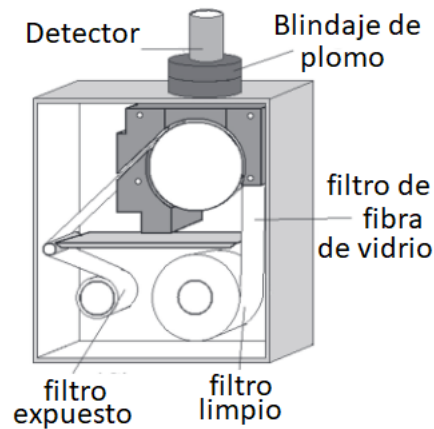


Figura 12. Esquema del módulo de análisis BAI 9100D, con nuevo recorrido del filtro de fibra de vidrio.

Para la medida de la fracción gaseosa del aire, el módulo original de Berthold, LB-BAI 9850, se reemplazó por un nuevo dispositivo que se esquematiza en la *Figura 13*. El dispositivo consta de una plataforma giratoria con tres orificios de idéntico diámetro al de los cartuchos de carbón activo. Sobre la plataforma, se dispone de un blindaje de plomo no giratorio, que alberga el detector de centelleo a utilizar para el análisis espectrométrico, así como de un dispensador lineal de cartuchos, con capacidad para 12 unidades. Parte del aire procedente del filtro de fibra de vidrio se hace circular a través del cartucho objeto de análisis y, simultáneamente, es analizado por el detector. Al finalizar la medida, la plataforma gira 120°. De manera, que el cartucho recientemente utilizado cae sobre una cesta y un nuevo cartucho, procedente del dispensador, queda colocado debajo del detector para comenzar un nuevo análisis. El movimiento y los tiempos de exposición de los cartuchos son gestionados por un autómata, siendo, actualmente, de una 1 semana como así indica su fabricante [RADECO, 2019]. El nuevo sistema reduce significativamente las tareas de mantenimiento, puesto que no es necesario desplazarse a la estación para cada sustitución. Por otro lado, es importante destacar que, en el caso de una situación de emergencia, este sistema permitiría el cambio

tanto del tramo de filtro de fibra de vidrio como del cartucho de forma remota por los responsables de la RARE, incluso incrementando el caudal, con objeto de aumentar la concentración de actividad en la muestra durante la anomalía radiológica.

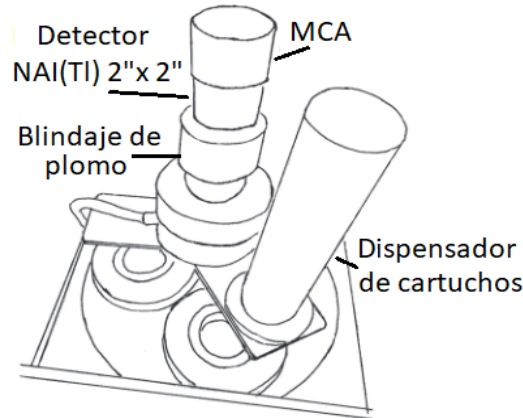


Figura 13. Esquema del nuevo módulo para el reemplazamiento automatizado de cartuchos de carbón activo y su análisis.

Además, se ha dispuesto de una nueva bomba de aspiración de caudal variable, entre 40 y 80 m³/h. Todo esto está controlado por un ordenador de tipo industrial, más robusto y resistente al polvo e inclemencias que los convencionales, que se encarga de la gestión tanto de todos los dispositivos de detección como de la información proporcionada por el resto de equipos auxiliares. Un nuevo software, desarrollado en la RARE, se encarga de establecer la lógica de adquisición deseada, así como del cálculo de actividades y su informe en tiempo real. Además, este software también es capaz de calcular las actividades de los radionucleidos emisores gamma detectados en los espectros gamma acumulados de intervalos de tiempo mayores y enviar, al instante, toda la información resultante al Centro de Operaciones de la RARE (ALERTA2). También en esta nueva estación actualizada, se cuenta con una estación meteorológica compacta, un sistema de alimentación ininterrumpida (SAI), un generador eléctrico y cámaras para la supervisión remota de los sistemas en funcionamiento o incluso para el apoyo remoto al técnico desplazado a la misma durante una operación de mantenimiento.

3.2.2.- Calibración para el análisis de la fracción de partículas y la fracción gaseosa

La nueva configuración de las estaciones actualizadas implica un cambio en la geometría de adquisición de las muestras, así como en los detectores seleccionados para el análisis radiológico de las mismas, obligando a realizar una nueva calibración en eficiencia de los detectores. En primer lugar, con el objeto de poner a punto el espectrómetro gamma, instalado en el monitor de aerosoles, para la detección de aerosoles sobre un filtro de fibra de vidrio y poder comparar y valorar las ventajas e inconvenientes del empleo de diferentes detectores de centelleo para la realización de dichas medidas, se ha realizado la calibración en eficiencia del sistema de medida, tanto para un detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ como para uno $\text{NaI}(\text{Tl})$, ambos con un cristal de dimensiones 2"x 2" pero, por la propia naturaleza del cristal, con resoluciones energéticas diferentes (concretamente, para el fotopico de ^{137}Cs , 2,6% y 7% respectivamente). Para ello, se ha realizado una calibración experimental a partir de la fabricación de una serie de muestras de actividad conocida, con una geometría lo más similar posible a la del depósito de los aerosoles sobre el filtro. En la *Figura 14.a*, se muestra una imagen de la estructura metálica curva que soporta y desplaza el filtro de fibra de vidrio frente al detector y que, gracias a la bomba de aspiración de aproximadamente $22\text{m}^3/\text{h}$, forma un área de captación de aerosoles con una geometría de bandas (9 bandas de 55 mm y 6 mm de ancho y largo respectivamente, pero separadas entre sí por 1,5 mm [*Figura 14.b*]).

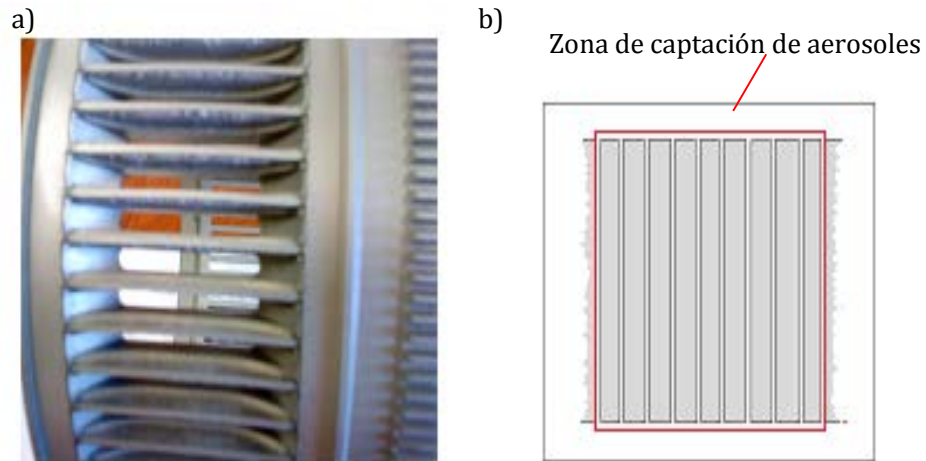


Figura 14. a) Elemento soporte y rotor del filtro de fibra de vidrio en el módulo de monitorización de aerosoles b) Zona de captación de aerosoles sobre el filtro de fibra de vidrio.

Así, se incorporaron actividades bien conocidas sobre un fragmento de filtro de fibra de vidrio, reproduciendo el área de captación y medida para las muestras reales. Concretamente, se prepararon 3 réplicas con disoluciones de actividades totales similares, del orden de 700 Bq (incertidumbre del 0,4%) del cóctel radiactivo 011211NPL-A, certificado por el National Physical Laboratory, Reino Unido, y que presenta radionucleidos de emisión γ con energías dentro del rango 60-1900 keV. Para ello, se dispuso de 3 muestras de papel con las dimensiones mencionadas sobre láminas de plástico endurecido, se pipeteó el volumen de cada una de las disoluciones depositándolo, gota a gota y homogéneamente, sobre las 9 bandas de cada una de las muestras. Finalmente, se dejó secar bajo una lámpara de luz infrarroja para obtener las 3 muestras de referencia empleadas en la calibración del detector (*Figura 15*).

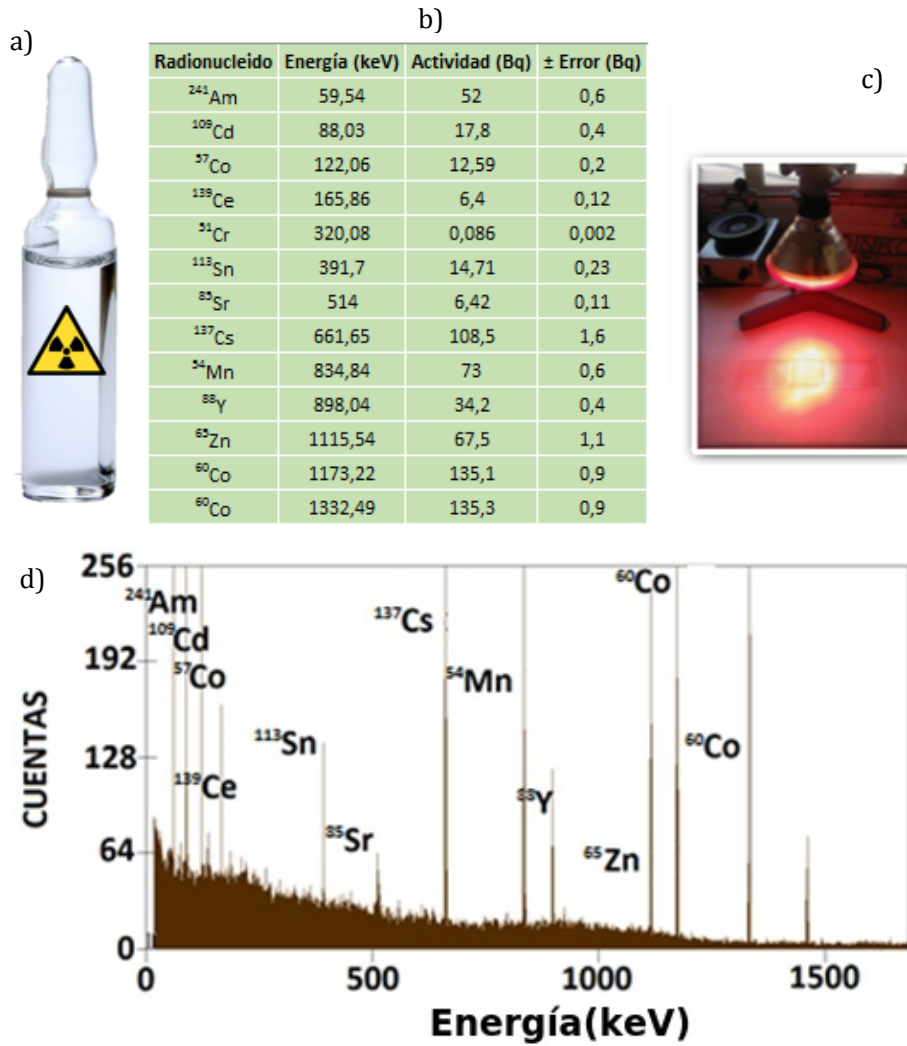


Figura 15. Elaboración de muestras de actividad conocida para la geometría del módulo de monitorización de la fracción de partículas: a) vial con contenido radiactivo, b) datos de los radionucleidos contenidos en el vial con sus actividades a fecha del día de análisis, c) proceso de secado d) espectro gamma donde se muestran los radionucleidos presentes en la muestra de actividad conocida.

El resultado de la calibración en eficiencia para los dos detectores utilizados se muestra en la *Figura 16*. Debido a la densidad del cristal, se puede apreciar una mayor eficiencia relativa para el detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ que para el $\text{NaI}(\text{Tl})$.

Energía (keV)	Eficiencia (*10 ⁻³)	
	LaBr ₃ (Ce)	NaI(Tl)
59,54	44,8 ± 0,3	37 ± 1
88,03	53 ± 3	40 ± 2
122,01	56 ± 4	-
165,9	52 ± 1	35 ± 1
391,7	28 ± 2	22,87 ± 0,03
661,65	18,9 ± 0,5	14,0 ± 0,3

Energía (keV)	Eficiencia (*10 ⁻³)	
	LaBr ₃ (Ce)	NaI(Tl)
834,84	15,9 ± 0,2	-
898,04	13 ± 2	-
1115,54	7,9 ± 0,1	-
1173,22	9,6 ± 0,5	-
1332,49	8,66 ± 0,09	6,1 ± 0,4
1836,05	5,03 ± 0,08	-

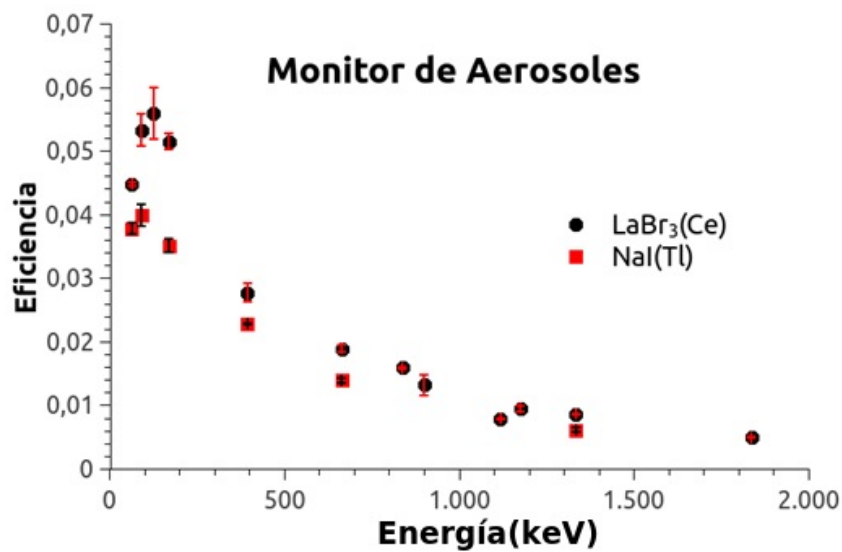


Figura 16. Resultados de la calibración en eficiencia experimental de dos detectores de centelleo: LaBr₃(Ce) de tamaño 2"x2" y NaI(Tl) de tamaño 2"x2".

En segundo lugar y de manera análoga al caso anterior, en la calibración del monitor de radioyodos para la medida de la fracción gaseosa, se prepararon 18 réplicas de patrón mediante incorporación de actividades bien conocidas en cartuchos para la captación de isótopos gaseosos (Figura 17). Estos son cilindros de plástico de 5,72 cm de diámetro y 2,5 cm de alto y están llenos en su totalidad de carbón activo activado con TEDA. El sistema de captación hace circular aire por su interior, de manera que, dependiendo de la

concentración de radioyodos en el aire y del tiempo de aspiración, la sección del cilindro con carbón activo contaminado puede ser muy diferente.

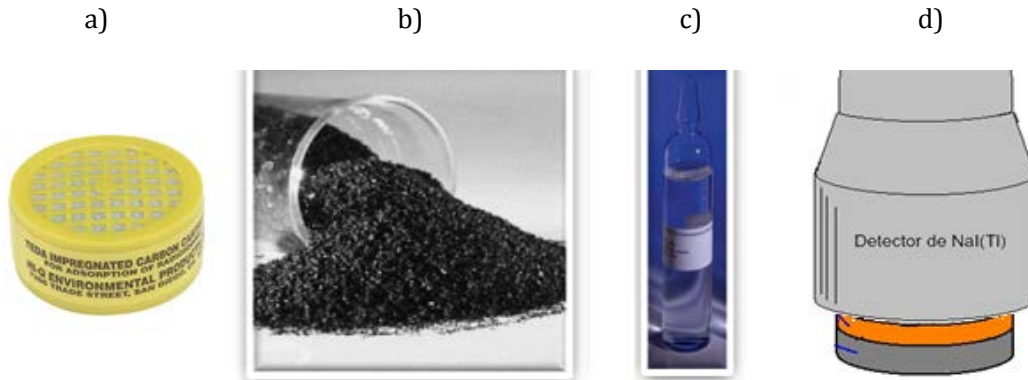


Figura 17. Elaboración de muestras de actividad conocida para la geometría del módulo de monitorización de la fracción gaseosa. La figura muestra, de izquierda a derecha, a) los cartuchos utilizados, b) el carbón activo que contienen, c) vial con contenido radiactivo y d) la disposición detector-cartucho para las medidas del material trazado que se encuentra marcado en naranja.

El accidente nuclear acontecido en Fukushima el 11 de marzo de 2011, provocó la liberación de una cantidad significativa de material radiactivo a la atmósfera que, debido a la circulación propia de ésta, se desplazó desde Japón por todo el hemisferio norte atravesando Norte América y el océano Atlántico y alcanzando Europa [Díaz León et al, 2011] [Lozano et al., 2011]. En concreto, en los días 28 y 29 de marzo de 2011, laboratorios de varias localidades (Sevilla entre otras) junto con el LARUEX, detectaron los primeros niveles de actividad de radionucleidos artificiales originados en el accidente de la central de Fukushima. Estos niveles fueron detectados en las muestras de aerosoles correspondientes a los diferentes planes de vigilancia radiológica que gestiona el LARUEX y que, principalmente, fueron captadas con una bomba de alto caudal (aproximadamente $700 \text{ m}^3/\text{h}$) sobre filtros tipo G3 Petrianov tipo FPP15-1.5 de área $44 \times 44 \text{ cm}$. Se detectaron valores concentraciones de actividad de $3,1 \pm 0,3 \text{ mBq}/\text{m}^3$ para el ^{131}I y de $0,69 \pm 0,06 \text{ mBq}/\text{m}^3$ para ^{137}Cs . Sin embargo, es importante destacar que además de las muestras de aerosoles captadas con bombas de alto caudal, también fue posible detectar la fracción

gaseosa de los radioyodos retenida en los cartuchos de carbón activo, recogidos en diferentes estaciones de la RARE, que estuvieron expuestos durante los días 29 de marzo hasta el 5 de abril de 2011. Las medidas de éstos últimos se realizaron con detectores HPGe colocados en el interior de blindajes de plomo de 10 cm de espesor. Los niveles de actividad medidos en ellos presentaron valores de concentraciones de actividad de ^{131}I de $3,9 \pm 0,7 \text{ mBq/m}^3$ [Rodríguez, 2017]. Lamentablemente, los sistemas electrónicos de estaciones automáticas Berthold no pudieron detectar concentración de radioyodos ni en la fracción de partículas (filtros de fibra de vidrio) ni en los cartuchos de carbón activo porque la actividad acumulada en éstos era mucho menor que su límite de detección. Este suceso puso de manifiesto, por un lado, la necesidad de mantener el muestreo de ambos tipos muestras (partículas y gases) en los sistemas de medida automáticos y en tiempo cuasi real para poder evaluar la actividad total de ^{131}I inhalada en un accidente de este tipo [Masson et al, 2011]. Y, por otro lado, se observó que el carbón activo del cartucho retiene los radioyodos en forma de gas gradualmente a medida que se colmata la capacidad de retención de éste en el carbón. En base a esta última observación, se consideró adecuado conocer las distintas eficiencias de detección del detector de NaI(Tl) tomando como fuentes cartuchos en los que se había variado la cantidad de carbón trazado con ^{131}I . Para ello, se procedió a fabricar cartuchos de carbón activo trazados con una actividad conocida de ^{131}I de forma homogénea y espesores crecientes, emulando de esta forma los posibles diferentes grados de saturación de los cartuchos de carbón en casos reales (proceso indicado en la *Figura 17*). Es decir, se prepararon cartuchos con capas de carbón activo trazadas de diferente masa (3, 6, 9, 12, 15, 18, 21 y 23 gramos, estando sus actividades específicas entre 7 y 25 Bq/g) y que se terminaban de rellenar con carbón activo sin trazar hasta su máxima capacidad. En concreto, se prepararon 2 ó 3 réplicas para cada concentración de actividad de ^{131}I , lo que supuso un total de 18 cartuchos para efectuar la calibración.

Los cartuchos de actividad conocida fabricados fueron colocados en el nuevo dispositivo de medida, enfrentando siempre el lado trazado al detector de NaI(Tl) utilizado, a fin de reproducir la geometría de adquisición de las muestras reales.

Los resultados de la eficiencia determinada para la emisión de ^{131}I de 364,5 keV, en función, de la cantidad de carbón activo trazado se muestran en la *Figura 18*. En dicha figura se puede observar cómo a medida que aumenta la cantidad de carbón trazado de ^{131}I en el cartucho de carbón la eficiencia de detección disminuye. Esta disminución que puede ser ajustada a una recta se debe al aumento del ángulo sólido formado entre el detector y la cantidad de masa de carbón dopada existente en el interior del cartucho. Por lo tanto, basándonos en estos resultados, se puede considerar que un valor de eficiencia de detección promedio ($0,0275 \pm 10\%$) para un detector de NaI(Tl) instalado en una estación automática es suficiente para cuantificar, con una incertidumbre inferior al 10%, la actividad de ^{131}I retenida en el cartucho, independientemente de su grado de saturación. Por último, es importante destacar que para obtener una mayor exactitud en la determinación de la actividad de radioyodos retenidos en los cartuchos, es aconsejable extraerles el carbón activo, introducirlo en una cápsula en donde mediante agitación se pueda homogeneizar y, finalmente, medirlo en un detector HPGe blindado.

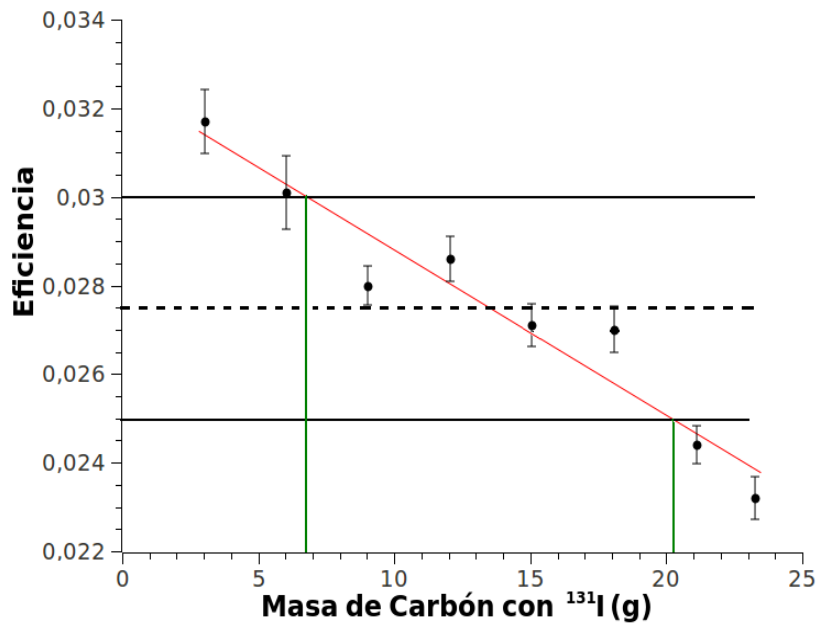


Figura 18. Calibración experimental de un detector centelleo de NaI(Tl) y tamaño 2"x2", en función de la zona contaminada de ^{131}I .

3.2.3.- *Carácter dual del sistema: modos de vigilancia y emergencia*

En el análisis de la fracción de partículas de la nueva estación automática, tal y como se ha mencionado en el apartado 3.2.1, el filtro de fibra de vidrio no se está moviendo de forma continua, si no que permanece estático frente al detector durante el proceso de retención de aerosoles y su medida. El sistema ha sido configurado para que funcione como una red de alerta temprana, proporcionando valores de actividad cada 10 minutos, pero además como una red de vigilancia ambiental, proporcionando valores de actividad cada 6 y 24 horas.

La lógica de funcionamiento que se ha implementado es la siguiente: durante el funcionamiento rutinario, el autómatas mueve el filtro hasta que la parte expuesta y ya medida queda fuera del blindaje y así una nueva fracción limpia se coloca en frente del detector con objeto de acumular muestra y adquirir un nuevo espectro gamma de 6 h. En ese momento comienza la adquisición.

Durante las 6 horas que el filtro permanece delante del detector colectando la fracción de partículas del aire, se mide un espectro gamma del mismo cada 10 minutos. Éste se obtiene mediante la sustracción del espectro de 6 horas que está siendo adquirido en el instante t y el que se almacenó (pero sin parar la adquisición) 10 minutos antes. Los espectros de 10 minutos son analizados utilizando como fondo a restar un espectro gamma colectado sobre un filtro limpio. De esta forma, se calculan los niveles de actividad de una serie de radionucleidos seleccionados que son registrados y enviados en el modo de operación de alerta temprana.

Al finalizar la adquisición del espectro gamma de 6 horas, éste es almacenado y analizado. En este caso, el volumen de la muestra captada y el tiempo de medida reducen significativamente los límites de detección frente a las medidas de 10 min que corresponden al modo de alerta temprana. Después de la medida de 6 horas, la zona expuesta del filtro de fibra de vidrio es desplazada de la zona de medida y se sitúa un nuevo fragmento de filtro limpio. El proceso descrito se reinicia y, finalmente, cada 24 horas se dispone de cuatro espectros de 6 horas que son sumados y analizados con objeto de disponer e informar de los niveles de actividad medidos, así como de los límites de

detección medidos, que son significativamente menores a los obtenidos en las medidas realizadas cada 6 horas. Esto constituye el denominado modo de vigilancia.

3.2.4.- Consideraciones del funcionamiento rutinario del sistema

3.2.4.1.- Efectos de la temperatura en los detectores

El clima de Extremadura es de tipo mediterráneo con inviernos suaves y veranos cálidos. Según la clasificación Köppen-Geiger [Kottek et al., 2006], el subtipo Csa (mediterráneo) es el predominante en la provincia de Cáceres y destaca por presentar veranos secos y calurosos, con temperaturas medias por encima de los 22 °C e inviernos húmedos y lluviosos, con temperaturas suaves. En verano las temperaturas pueden superar puntualmente los 40° centígrados. Mientras que en invierno es poco habitual temperaturas inferiores a 0° centígrados. Tanto en los meses de verano como en el invierno la variabilidad de temperatura diaria en Cáceres puede ser de hasta 20° C (Figura 19).

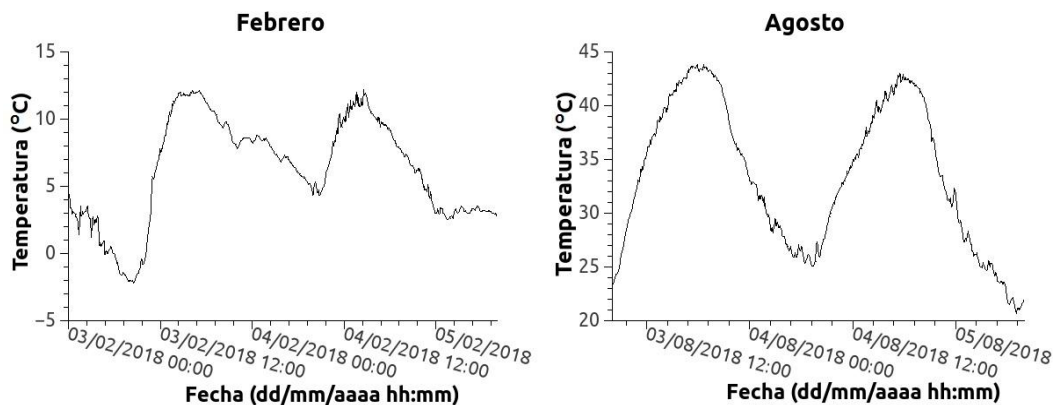


Figura 19. Valores de temperatura del aire exterior medidos en la estación de Saucedilla durante los meses de invierno y verano.

Originalmente, con el fin de evitar el sobrecalentamiento de los circuitos electrónicos de los distintos equipos de medida de monitorización radiológica durante los meses más cálidos del año, se incorporaron máquinas de climatización en las estaciones para, independientemente de la temperatura exterior, procurar que la temperatura en el interior de la estación nunca sobrepasara, durante más de 30 minutos, un valor máximo

establecido en 33° C. Actualmente, estos equipos están configurados para mantener un valor promedio de temperatura dentro del rango 20°-23° C, es decir, un valor prácticamente constante de temperatura en el interior de las estaciones.

Aun cuando los equipos espectrométricos de detección instalados en las estaciones actualizadas no están directamente expuestos a estos cambios de temperatura por encontrarse en el interior de edificios o casetas, sí es cierto que el aire que se está aspirando y que está en contacto con el detector oscila entre los rangos de temperatura antes citados. Por ello, conocer el comportamiento frente a la temperatura de los detectores empleados en las estaciones con espectrometría gamma, NaI(Tl) y LaBr₃(Ce), ha sido uno de los objetivos debido a la influencia de este parámetro sobre la obtención y calibración en energía de los espectros. Para ello, se diseñó una experiencia en la que se sometían los detectores a diferentes temperaturas controladas. Inicialmente se expusieron bajo una lámpara de luz infrarroja situada a diferentes distancias. De esta forma se incrementaba la temperatura del detector hasta unos 46° C. Después se introdujeron en un refrigerador para disminuir la temperatura hasta 0°C. Para cada una de las temperaturas a las que se sometieron los detectores, se adquirió un espectro gamma. Se utilizó en todas las medidas una fuente de ¹³⁷Cs cuya línea de emisión más intensa se encuentra a 661,65 keV de energía.

Los resultados obtenidos de esta experiencia, presentados en la *Figura 20*, muestran cómo hay un desplazamiento del canal asignado por el multicanal a la energía de 661,65 keV. A medida que aumenta la temperatura, el canal asignado también aumenta.

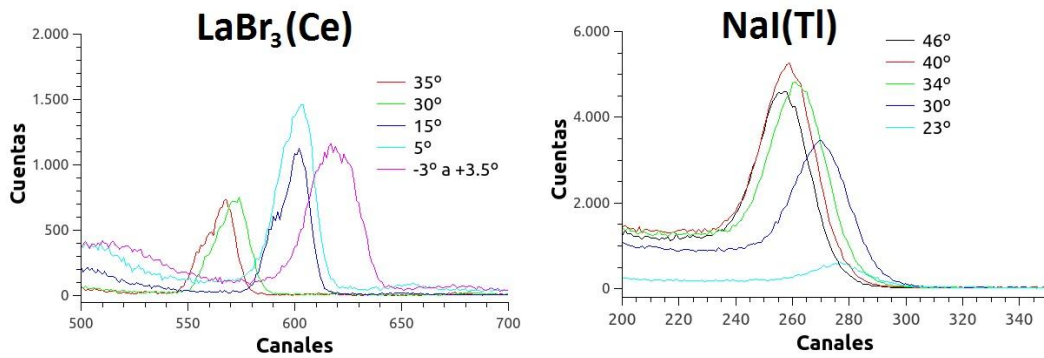


Figura 20. Traslación de fotopicos de un espectro gamma como consecuencia de la variación de temperatura.

Lógicamente este fenómeno supone un problema, puesto que no es posible mantener la calibración en energía y es necesario recalibrar constantemente cada espectro adquirido si se quiere evitar errores en los cálculos de las actividades de los radionucleidos. La solución aplicada ha consistido, por un lado, en la estabilización térmica de las estancias donde se encuentran los sistemas de medida mediante la instalación de sistemas de climatización durante todo el año. Por otro lado, se está procurando el uso de centelleadores de NaI(Tl) estabilizados en temperatura y, finalmente, cuando esto no es posible, se ha recurrido al desarrollo de un software para automatizar la calibración canal-energía de los espectros gamma.

En el último caso, en cada espectro colectado, aquellos fotopicos que, bien por la composición del cristal del detector (LaBr₃(Ce)) o bien por su origen natural (⁴⁰K, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ...) se encuentran siempre presentes en los espectros gamma adquiridos [R. Tykva et al, 1995] pasan a ser puntos experimentales empleados para la obtención del ajuste lineal que otorga a cada canal su valor en energía.

Para explicar el algoritmo diseñado, nos apoyaremos en la *Figura 21* donde se ilustran los recursos utilizados para la calibración de los espectros. El software parte de unas asignaciones iniciales entre canales y energías que se encuentran previamente tabuladas (CANAL INICIAL Y VALOR_ENERGÍA de la *Figura 21.c*) y que son obtenidas a partir de los fotopicos identificados en el primer espectro colectado (*Figura 21.b*). En espectros posteriores, estas asignaciones canal-energía se realizan previa búsqueda automática de

máximos (en cuentas) próximos a los canales donde los fotopicos fueron determinados en el espectro anterior (CANAL_ACTUAL de la *Figura 21.c*). El mayor o menor rango de búsqueda de estos (CANALES_BÚSQUEDA de la *Figura 21.c*), en canales, dependerá de la anchura a media altura de cada fotopico (FWHM), pero siempre con dos restricciones:

- El número de canales que puede desplazarse el máximo de un fotopico entre espectros consecutivos no puede superar un valor de amplitud superior al obtenido en el ajuste mostrado en la *Figura 21.d*, donde se relaciona la FWHM (en canales) con la energía del fotopico.
- El fotopico debe estar bien definido. Para ello, la diferencia entre número de cuentas que tiene el valor máximo del fotopico y el valor promedio de las cuentas que constituyen su base tiene que ser mayor a un valor previamente estudiado y establecido por línea de emisión e isótopo (DIFF_CUENTAS de la *Figura 21.c*).

Cuando una de estas reglas no se cumple, ese fotopico no es considerado para obtener la relación canal-energía, empleando únicamente aquellos que satisfacen ambas restricciones.

En particular, atendiendo a los detectores implementados en las estaciones de monitorización radiológica actualizadas, los espectros adquiridos con el detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ siempre disponen de un mínimo de 2 fotopicos (32 keV y 1470 keV) para obtener la calibración en energía del espectro gamma, sin embargo, en el caso de usar detectores de $\text{NaI}(\text{Tl})$, puede que los espectros no presenten fotopicos para poder llevar a cabo la calibración energética del mismo, con lo que, en estos casos, se emplearía la calibración energética aplicada en el espectro anterior. Por lo tanto, a tenor de lo expuesto, se puede considerar que ambos tipos de detectores son viables para ser utilizados en las estaciones automáticas conociendo su conducta ante las variaciones térmicas. Para esto último, actualmente, comienza a recurrirse al empleo de detectores estabilizados y algoritmos.

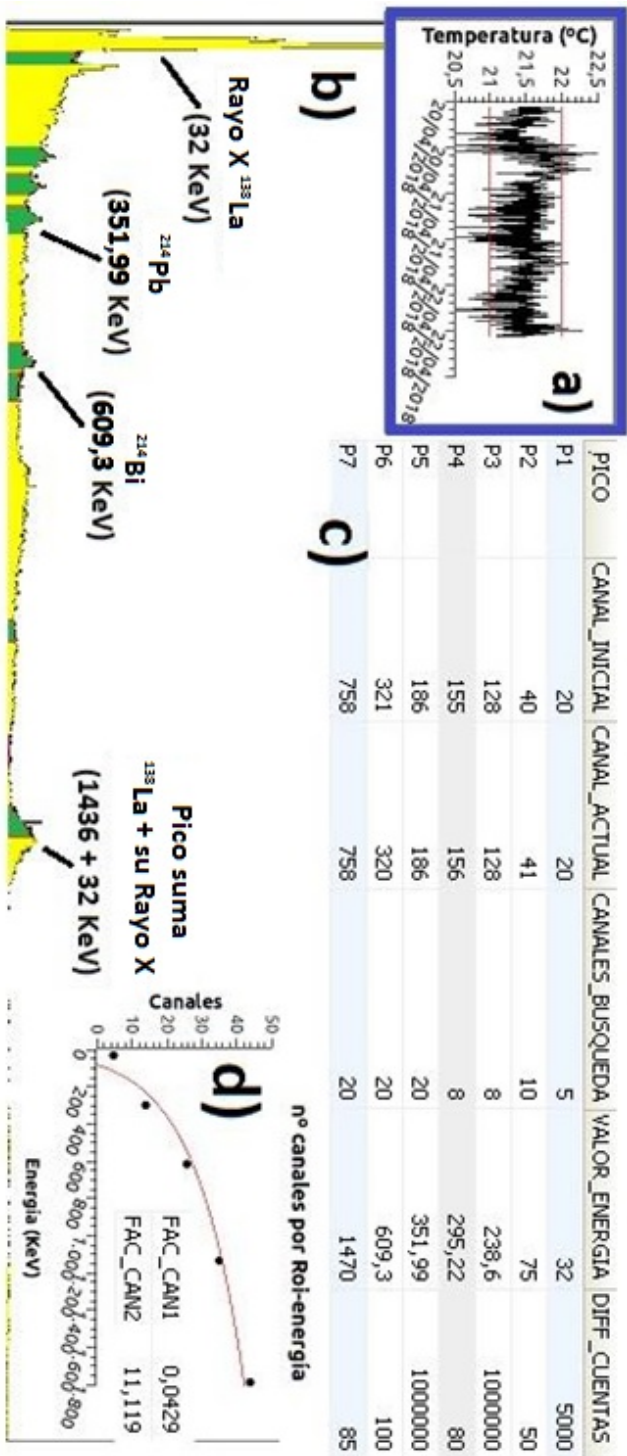


Figura 21. a) Temperatura ambiente estabilizada en la estación de Saucedilla b) Principales fotopicos presentes en los espectros adquiridos por un LaBr₃(Ce) en las estaciones de monitorización radiológica c) Tabla con canales inicial y actual donde se encuentran los fotopicos, rango de canales para la búsqueda por fotopico, energía de cada fotopico y diferencia mínima de cuentas entre el máximo y la base del fotopico. d) Ajuste para la anchura, en canales, que ocupa un fotopico según su energía de emisión

3.2.4.2.- Isótopos identificados y cuantificados en análisis de espectros gamma.

Uno de los principales objetivos de las redes de alerta radiológica es el de proporcionar la mayor información radiológica posible en el fatal caso de un accidente en una instalación con liberación de material radiactivo. Sin embargo, en tanto que esto no suceda, la información que puede proporcionar una red de alerta radiológica puede contribuir a los planes de vigilancia radiológica ambiental al igual que los ya establecidos en torno a las citadas instalaciones del ciclo de combustible nuclear, centros de investigación y hospitales, con la ventaja, además, de proporcionar información en tiempo real.

Tanto centrados en el objetivo principal como en este último sentido, los radionucleidos a controlar en las estaciones de monitorización radiológica son, principalmente, aquellos de origen antropogénico ($^{137-134}\text{Cs}$, ^{131}I , $^{58-60}\text{Co}$, ^{65}Zn , ...) junto con la tasa de equivalente de dosis ambiental [**Quintana et al., 2004**].

Para el caso concreto de nuestro estudio y por la proximidad a la CNA, dentro de los posibles radionucleidos antropogénicos que pueden ser muestreados, en caso de evacuación rutinaria o accidental, se consideran interesantes aquellos que son producto de la fisión del combustible nuclear y de la activación neutrónica de los diferentes materiales estructurales del reactor, los que son arrastrados por el refrigerante o por el propio aire próximo al circuito primario y cuyos periodos de semidesintegración son lo suficientemente grandes como para suponer un riesgo radiológico. En las tablas 1 y 2 se muestran los más representativos [**Corbacho, 2007**]. De todos ellos, la mayoría (marcados en negrita) pueden ser identificados y cuantificados a partir del análisis de espectros gamma obtenidos sobre muestras de aerosoles y gases previa liberación a la atmósfera o a partir de vertidos líquidos [**Steinhauser et al., 2014**]. El resto, pueden ser identificados a través de técnicas de separación radioquímica y empleando espectrómetros alfa, contadores proporcionales, equipos de centelleo líquido e incluso por espectrometría de masas con plasma acoplado inductivamente en laboratorios de medidas de radiactividad.

Radionucleidos productos del combustible	
Tipo	Isótopos
Radioyodos	^{131}I y ^{129}I
Radiocesios	^{137}Cs y ^{134}Cs
Gases nobles	^{85}Kr , ^{88}Kr , ^{131}Xe , ^{133}Xe y ^{135}Xe
Telurios	^{125}Te , ^{127}Te , ^{129}Te y ^{132}Te
Rutenios	^{103}Ru y ^{106}Ru

Tabla 1. Radionucleidos procedentes de la fisión del combustible nuclear.

Medio Activado	Radionucleidos generados
Refrigerante	^2H , ^3H , ^{16}N , ^{17}N y ^{19}O
Aditivos químicos del refrigerante	^7Li , ^{12}B y ^3H
Vainas de Zircaloy	^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{95}Nb y ^{97}Nb
Barras de control	$^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{116}In y ^{115}Cd
Aire disuelto en el refrigerante	^{14}C
Productos de corrosión	^{58}Co , ^{60}Co , ^{49}Fe , ^{56}Mn , ^{65}Ni y ^{27}Mg

Tabla 2. Radionucleidos generados por activación neutrónica sobre las estructuras existentes en el interior del reactor.

En ausencia de radionucleidos antropogénicos, la principal contribución a la \dot{H}_{10} tiene dos componentes: cósmica y terrestre. La primera componente depende, por un lado, de los rayos cósmicos que alcanzan la superficie terrestre y, por otro lado, de los radionucleidos cosmogénicos ^7Be , ^{22}Na , ^{14}C y ^3H generados en la atmósfera por interacción de éstos y que se depositan sobre la superficie terrestre. La segunda, se debe a aquellos radionucleidos que se encuentran distribuidos por toda la corteza terrestre tales como el ^{40}K , los pertenecientes a las series del ^{238}U , ^{232}Th y ^{235}U .

Ahora bien, sobre la componente terrestre de la \dot{H}_{10} tiene una contribución importante el gas radón (^{222}Rn), el cual, puede ser estimado a partir de la actividad calculada a través de la concentración de radón en equilibrio (E.C.C) radiactivo con sus descendientes (^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{210}Po), es decir, la misma concentración en energía potencial alfa que la mezcla en desequilibrio. Para este cálculo, los factores de equilibrio aplicados entre los descendientes del radón equivalente en equilibrio y la concentración de radón son 0,515, 0,380 y 0,105 para el ^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{210}Po , respectivamente [UNSCLEAR, 2000].

En las estaciones de monitorización radiológica de la RARE, el cálculo de actividades y actividades mínimas detectables (AMD) se realiza a partir del uso de un software comercial de análisis de espectros gamma. En el mercado existen varias opciones con elevado grado de satisfacción que cumplen más que suficientemente el propósito que requiere nuestro sistema. En particular, nos hemos decantado por dos aplicaciones comerciales: Genie2k y GammaVision, que han sido ampliamente testadas y están extendidas a nivel mundial, sobre todo, en laboratorios de metrología de radiaciones ionizantes donde son herramientas esenciales tanto en las rutinas diarias de análisis de espectros gamma como en la participación de ejercicios de intercomparación de medidas en espectrometría gamma como parte del control de calidad de los mismos.

Además, es importante mencionar que, en la RARE, las cuantificaciones de los radionucleidos monitorizados y sus correspondientes AMD, se obtienen utilizando el criterio de Currie [Currie, 1968] junto con la norma ISO 11929 [ISO 11929, 2010].

En la *Figura 22*, a modo de ejemplo, se muestran los resultados obtenidos en un periodo de 5 días en la estación de monitorización en aire de Saucedilla. Como es de esperar, los niveles de actividad de los radionucleidos artificiales analizados están por debajo del AMD. Por otro lado, los naturales, concretamente los descendientes del ^{222}Rn , sí presentan niveles de actividad neta.

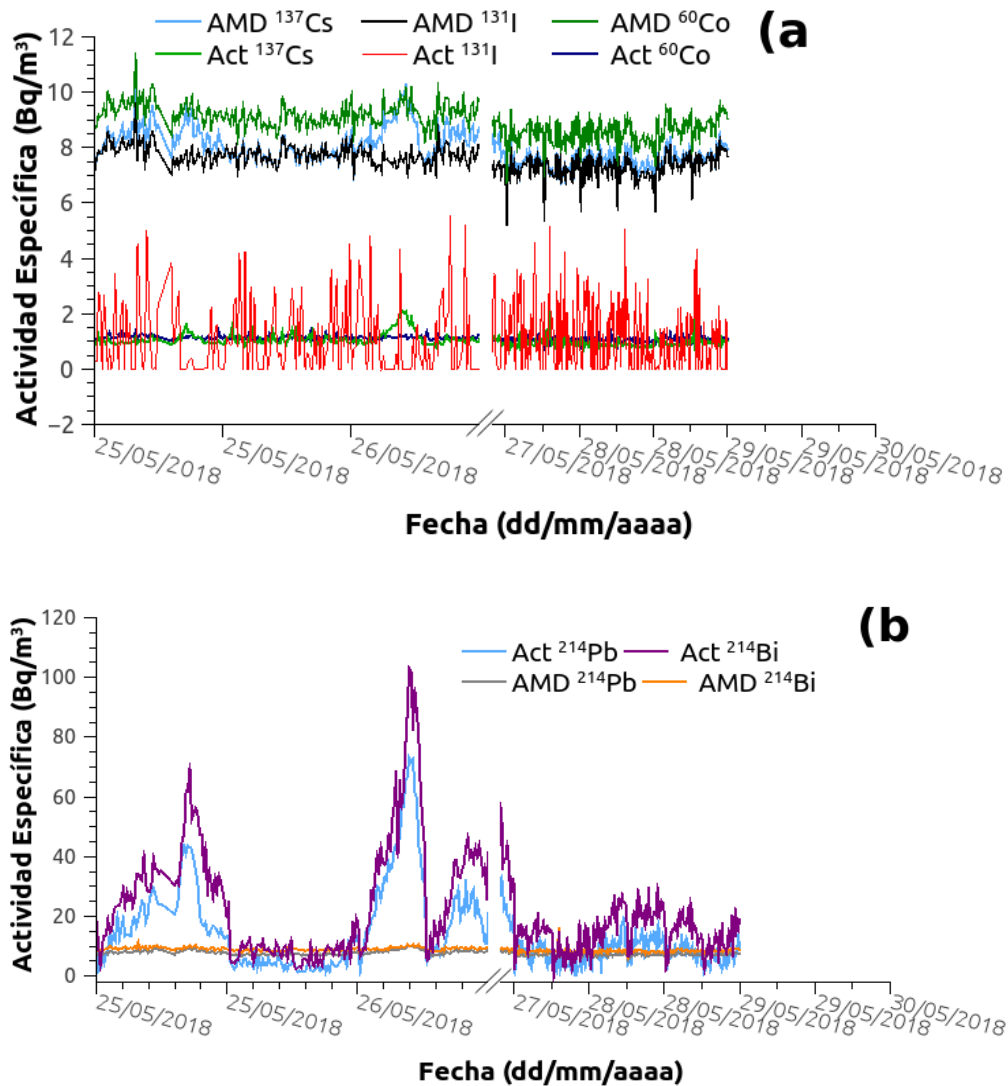


Figura 22. Valores de actividad y AMD para los radionucleidos **a)** ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{131}I y **b)** ^{214}Pb y ^{214}Bi en las estaciones de monitorización de aire en Saucedilla.

Los valores de AMD de los radionucleidos artificiales medidos con espectrometría gamma en las estaciones actualizadas muestran una variación inferior al 7%. Mientras que las variaciones de los índices α_{total} , β_{total} que proporciona la estación Berthold y que se muestran en el apartado 1.4 (Figura 8) son superiores al 50% sobre todo en presencia de significativas concentraciones de radón en el aire. Gracias a la incorporación de la

espectrometría gamma en las estaciones automáticas se garantiza una mayor precisión a la hora de determinar la posible presencia de radionucleidos artificiales en el aire.

Para el caso particular de la cuantificación del radón en nuestras estaciones de monitorización de aire, se omite la aportación del ^{210}Po , debido a que se trata de un isótopo emisor alfa puro imposible de determinar con el uso de espectrometría gamma. Pese a ello, tal como muestra la *Figura 23*, la estimación de radón obtenida presenta valores que intersectan con aquellos obtenidos a través del equipo AlphaGuard [Saad A F, 2008], diseñado para medir ^{222}Rn en aire.

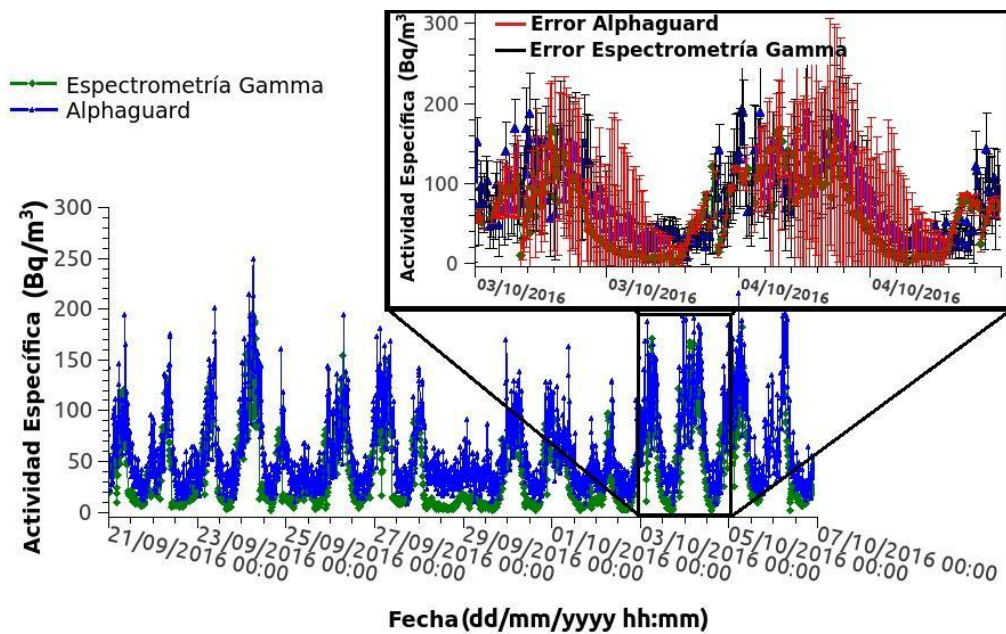


Figura 23. Valores de concentración de ^{222}Rn medidas con equipo comercial AlphaGuard y Concentración Equivalente en Equilibrio de radón en aire calculada en la estación de Saucedilla.

3.2.4.3.- Determinación del ^{131}I en aire

La menor resolución de los detectores de centelleo (NaI(Tl) y LaBr₃(Ce)) incorporados en las estaciones automáticas actualizadas de monitorización de aire frente a un detector de HpGe, conlleva un problema a la hora de identificar el fotopico gamma de uno de los principales radionucleidos artificiales que pueden ser liberados tanto en evacuaciones rutinarias como en accidentes de instalaciones nucleares, como es el ^{131}I . Este radionucleido tiene su línea de emisión gamma con mayor intensidad relativa a una energía de 364,5 keV. Lamentablemente, uno de los descendientes del radón, el ^{214}Pb , también posee una emisión gamma con una intensidad relativa elevada a una energía muy similar: 351,99 keV. Al ser muy próximas las energías con mayor intensidad de emisión de ambos isótopos, en los detectores de centelleo con poca resolución como los NaI(Tl) y LaBr₃(Ce), puede resultar complicado resolver adecuadamente el doblete formado por los dos fotopicos, sobre todo, cuando la presencia del artificial es similar o nula. Como se muestra en la *Figura 24*, en esta situación aparecen numerosos falsos positivos de actividad neta de ^{131}I detectados en el análisis de muestras de aire en donde no hay presencia de este radionucleido. Esto se debe, de forma general, a que el algoritmo de resolución del doblete de la aplicación de análisis, asigna un área al fotopico de ^{131}I que en realidad le corresponde al ^{214}Pb .

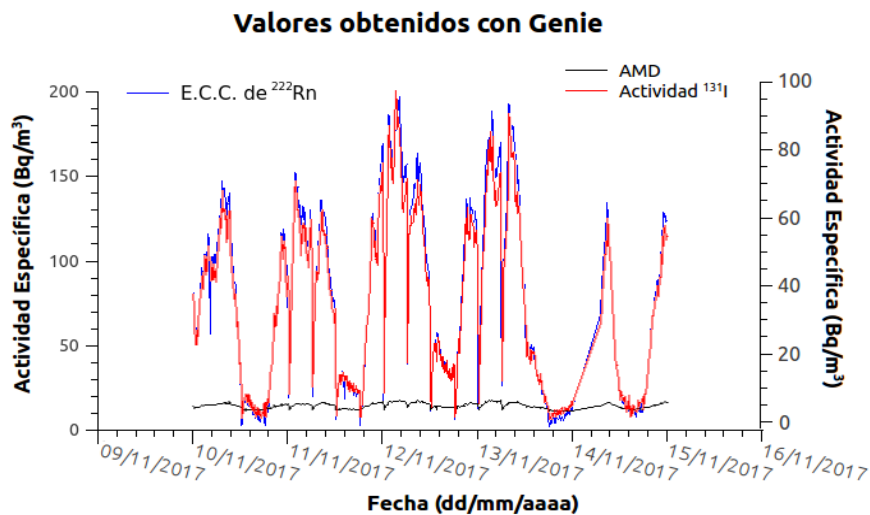


Figura 24. Valores de actividad y AMD de ^{131}I proporcionados por el análisis de espectros Genie2K en un periodo de tiempo con grandes concentraciones de E.C.C. de ^{222}Rn en la zona de Saucedilla.

Por otro lado, cuando sí hay presencia de ^{131}I en la muestra, como se muestra en la Figura 25, los dos fotopicos se solapan y también es difícil su resolución para calcular la actividad que le corresponde a cada radionucleido uno de una forma precisa.

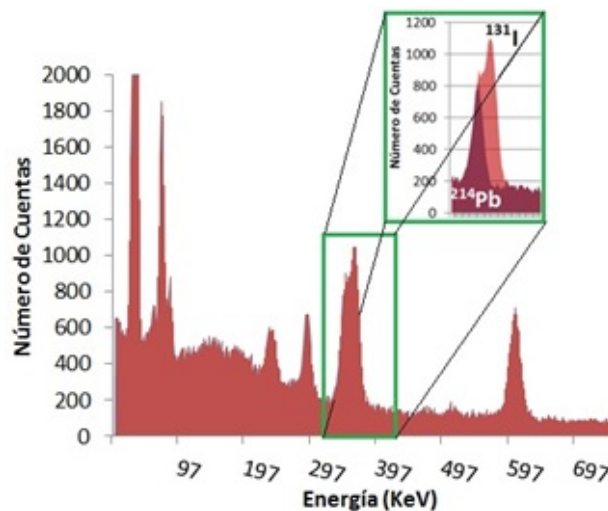


Figura 25. Espectro gamma adquirido con un detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ sobre una muestra de aerosoles con presencia de radionucleidos naturales y ^{131}I (fotopico a 364,5 keV).

La solución planteada a este problema se basa en la utilización del método de cálculo de áreas trasladadas. Este método permite conocer qué proporciones del área del fotopico problema o doblete corresponden al isótopo ^{214}Pb (351,99 keV) y al isótopo ^{131}I (364,5 keV). Para ello, se utiliza el área ^{214}Pb correspondiente a la línea de emisión de 295,22 keV e intensidad de emisión del 18,42 %. Obtenido el área neta de este fotopico, se calcula el área correspondiente al ^{214}Pb con línea de emisión a 351,99 keV presente en el fotopico compuesto ($^{214}\text{Pb}+^{131}\text{I}$):

$$\text{Área } ^{214}\text{Pb}_{(351,99 \text{ keV})} = \text{Área } ^{214}\text{Pb}_{(295,22 \text{ keV})} * \frac{I ^{214}\text{Pb}_{(351,99 \text{ keV})} * \epsilon ^{214}\text{Pb}_{(351,99 \text{ keV})}}{I ^{214}\text{Pb}_{(295,22 \text{ keV})} * \epsilon ^{214}\text{Pb}_{(295,22 \text{ keV})}}$$

Conocido el área correspondiente al ^{214}Pb a 351,99 keV, el área correspondiente al ^{131}I se determina haciendo la diferencia

$$\text{Área } ^{131}\text{I} = \text{Área } (^{131}\text{I} + ^{214}\text{Pb}_{(351,99 \text{ keV})}) - \text{Área } ^{214}\text{Pb}_{(351,99 \text{ keV})}$$

siendo Área ($^{131}\text{I}+^{214}\text{Pb}$ (351,99 keV)) el área del doblete a resolver y, finalmente, se usa la siguiente ecuación para el cálculo de la actividad del ^{131}I :

$$\text{Actividad} = \frac{\text{Área } ^{131}\text{I}}{I * \epsilon * V * T}$$

Los resultados que se obtienen con este método permiten eliminar la práctica totalidad de los falsos positivos de ^{131}I detectados. A modo de ejemplo y empleando, en esta ocasión, el software Genie2K sobre los análisis de actividad de ^{131}I del intervalo de tiempo 03/12/2017 a 29/12/2017, mostrados en la *Figura 24*, se ha aplicado el algoritmo previamente explicado. Los nuevos valores de actividad son los representados en la *Figura 26*, donde se aprecia cómo han sido eliminados todos los niveles de actividad neta de ^{131}I detectados y que corresponden a falsos positivos.

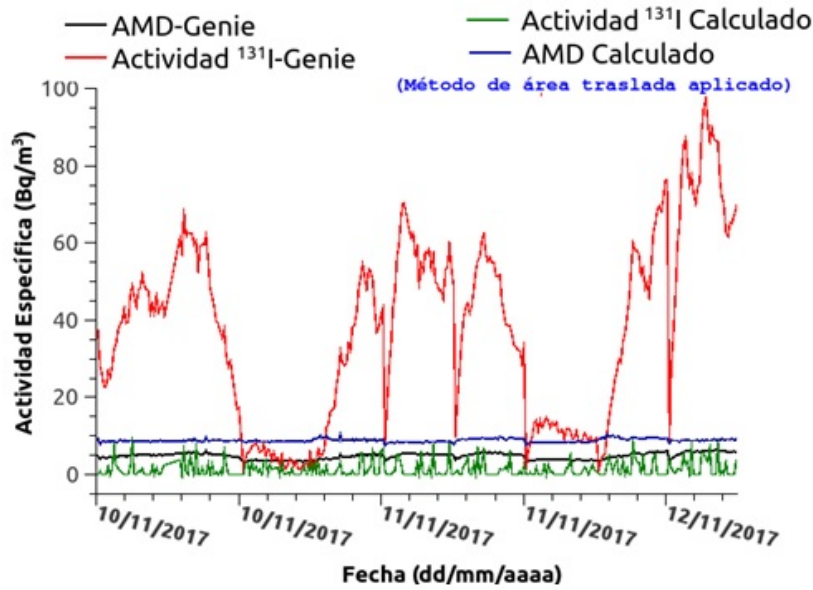


Figura 26. Actividades de ^{131}I calculadas con y sin el método del área trasladada.

Uno de los inconvenientes de la aplicación de este sistema radica en la determinación del AMD de ^{131}I . Para solventar esta situación, se ha utilizado el límite de decisión (LD) correspondiente a los espectros gamma medidos cuando los niveles de actividad de E.C.C de ^{222}Rn fueron máximos en el entorno de la estación de Saucedilla. En los 4 años de funcionamiento de la estación se han localizado diferentes niveles máximos de E.C.C. de ^{222}Rn con un valor próximo a 200 Bq/m^3 que han sido utilizados para obtener un valor promedio de ellos para, posteriormente, ser incorporado en la ecuación de cálculo del AMD. El resultado de todo ello, es la consecución de un valor máximo de AMD de ^{131}I para cada espectro gamma analizado que fluctuará únicamente como consecuencia de las variaciones tanto del volumen de aire aspirado como del tiempo de medida del mismo.

El empleo de esta metodología, independientemente del tipo de software de análisis de espectros que se aplique, permite determinar la presencia real de niveles de actividad de ^{131}I en los espectros gamma cuando hay niveles elevados de actividad de descendientes del radón. Este método ha supuesto la eliminación prácticamente total de los falsos positivos de actividad de ^{131}I durante las medidas rutinarias del sistema espectrométrico. De hecho, la eficacia del algoritmo se aprecia tanto para el análisis de la fracción de

partículas, ya reflejada en la *Figura 26*, como en el análisis de la fracción gaseosa, *Figura 27*, donde se utiliza un espectrómetro de NaI(Tl).

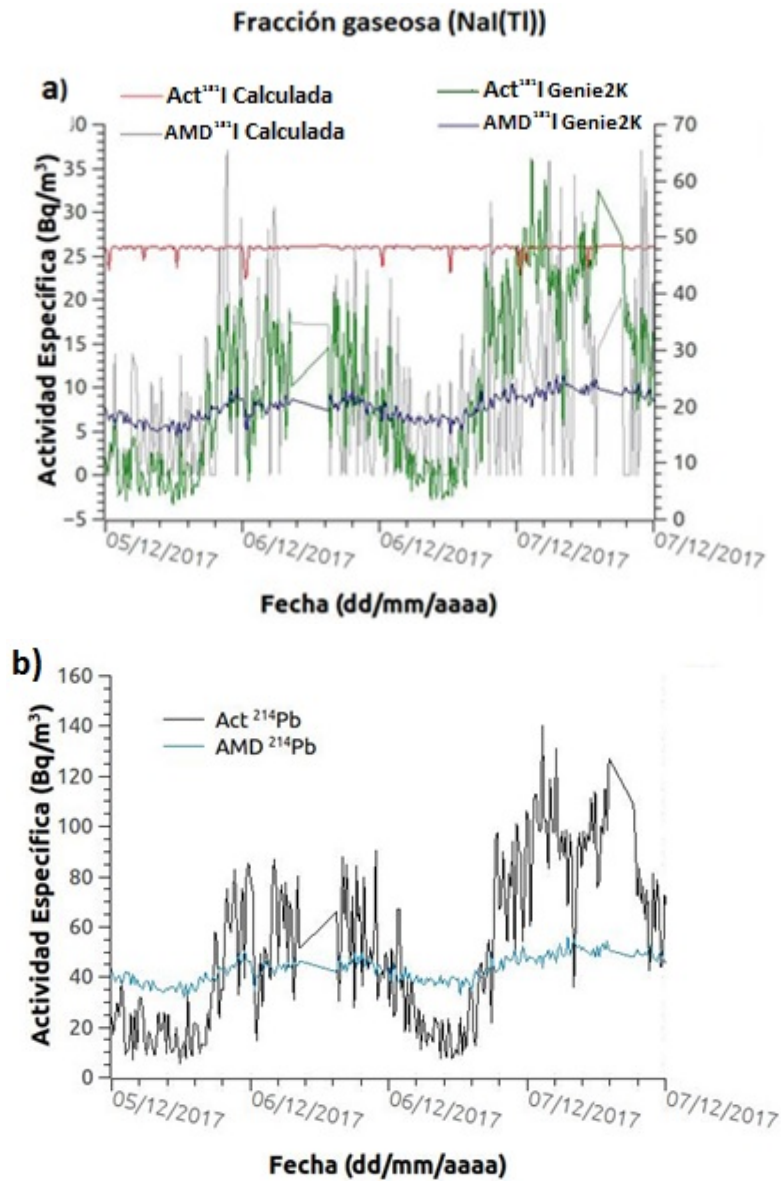


Figura 27. a) Comparación de los valores de actividad específica de ¹³¹I medidos sobre cartucho de carbón en la estación de Saucedilla utilizando ambos sistemas de análisis, software Genie2K y el método del área trasladada, durante b), un intervalo de tiempo con elevada presencia de ²¹⁴Pb y que es retenido en el cartucho.

La principal diferencia en los resultados obtenidos por ambos detectores es el mayor número de falsos positivos registrados en la parte gaseosa como consecuencia de la baja resolución energética del detector de NaI(Tl) que impide obtener los fotopicos de forma definida y, por tanto, conlleva una mayor dificultad para realizar el cálculo de sus áreas. Pese a todo, el número de falsos positivos generado, se ha podido reducir hasta un 17% respecto a los existentes empleando las aplicaciones Genie2K y GammaVision en su configuración genérica.

3.2.4.4.- Incremento de tasas de dosis asociados a sucesos de lluvia.

Como se ha indicado con anterioridad, en ocasiones y coincidiendo con precipitaciones, se observan incrementos anómalos en la tasa de equivalente de dosis ambiental. Estos incrementos pueden llegar superar en un 30% el valor de la media mensual, generando alertas calificadas como nivel 1 en la RARE. Por otra parte, los monitores de tasa de dosis no pueden identificar cuál o cuáles han sido los radionucleidos implicados en los incrementos de equivalente de dosis ambiental. De hecho, en ocasiones se requiere de interpretaciones y cálculos de constantes de desintegración radiactiva para discernir si el origen de esa anomalía dosimétrica es natural o artificial. Sin embargo, con la ayuda de la espectrometría gamma incorporada a las estaciones de monitorización de aire, se ha posibilitado la capacidad de estudiar estos fenómenos en detalle. Para ello, se ha elegido un periodo de 13 meses (Nov 2015 – Dic 2016) y se ha contabilizado en él, el número de sucesos en los que se ha observado un incremento de \dot{H}_{10} coincidente con eventos de lluvia. Además, se ha determinado el depósito de material en suspensión en el aire a partir de las masas de los depósitos de aerosoles capturados sobre filtros de nitrocelulosa expuestos semanalmente en los captadores de aerosoles de la estación de Saucedilla y que, estando en funcionamiento junto con la estación automática dotada de espectrometría gamma en tiempo real, pertenecen al programa de vigilancia radiológica entorno a la CNA financiado por la Junta de Extremadura. La *Figura 28* muestra dicha información. En ella, la parte superior presenta tanto los valores de \dot{H}_{10} puntuales (en naranja) como su valor promedio (línea verde) y, además, las precipitaciones acumuladas en mm (eje ordenada derecho). Sobre la gráfica inferior de dicha figura, se muestra la

concentración de ECC de Rn (línea roja) y las masas de los depósitos de aerosoles medidos en los filtros de nitrocelulosa (barras negras). Por su parte, el rectángulo verde corresponde a un área que se amplía en la figura siguiente.

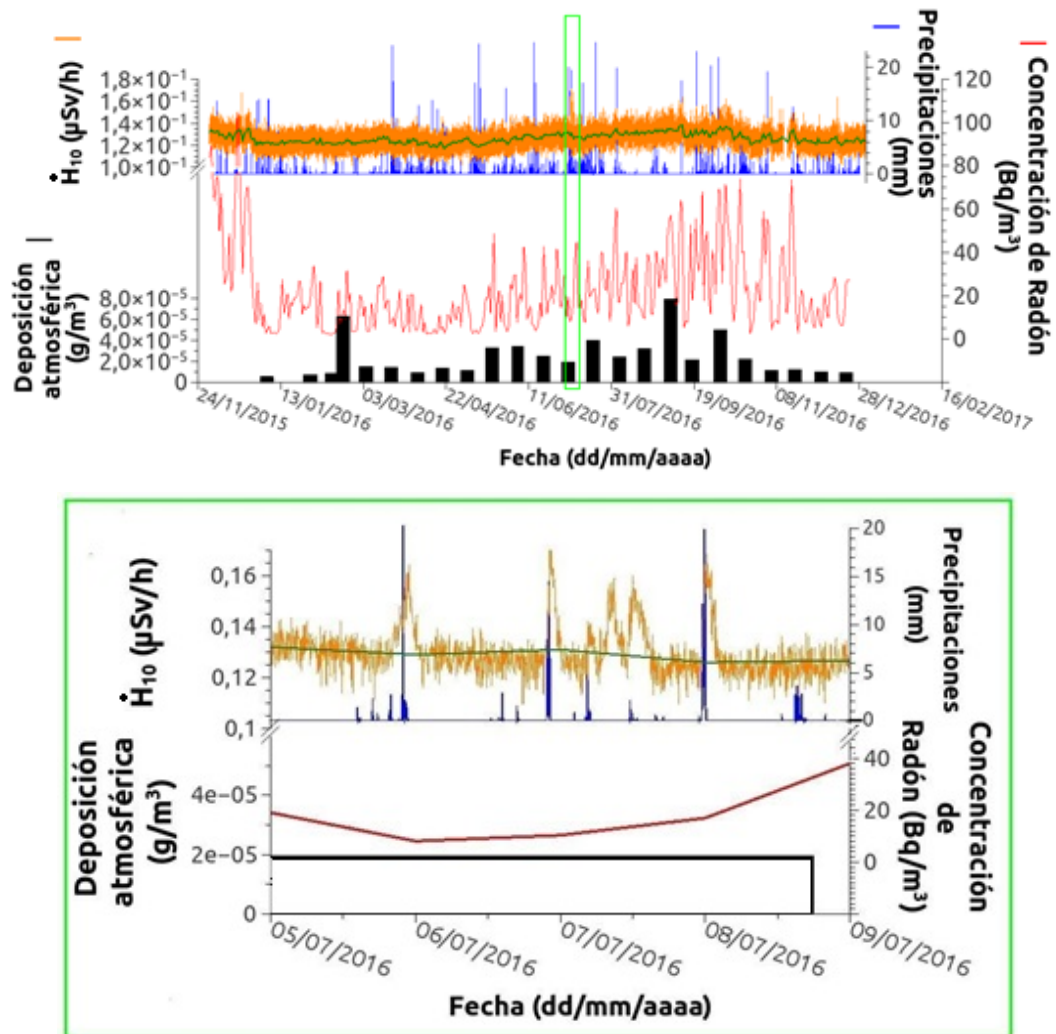


Figura 28. Registros de los valores de \dot{H}_{10} , niveles de radón, deposición atmosférica sobre filtro de nitrocelulosa y precipitaciones acontecidas en la estación de Saucedilla durante 12 meses.

Atendiendo al área ampliada de la *Figura 28* se puede observar que, los incrementos de \dot{H}_{10} están asociados a fenómenos de precipitación. Con las primeras precipitaciones, tras un periodo prolongado de ausencia de éstas, se produce un proceso, conocido como “rain out”, en el que las partículas en suspensión son arrastradas por el agua y se depositan en el suelo. Por otro lado, la tasa de exhalación de ^{222}Rn desde el suelo queda significativamente reducida al encontrarse los poros de éste ocupados por agua que dificulta la salida del gas radón a la atmósfera. De hecho, el depósito de aerosoles retenido sobre los filtros semanales recolectados antes, durante y después de las precipitaciones, muestra que hay una disminución de la masa de éstos cuando llueve. Por lo tanto, dado que el espectrómetro $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, que analizó la fracción de partículas del aire, revela una disminución significativa de la actividad de descendientes del ^{222}Rn , se deduce que el aire se limpia durante el proceso de lluvia. En consecuencia, los emisores gamma presentes en el aire se depositaron en el suelo y en las superficies alrededor de la estación de monitorización provocando que la \dot{H}_{10} , medida por el monitor Geiger-Müller, aumente debido a que la parte de fuente de emisión gamma ha pasado de estar distribuida en un volumen significativamente grande y lejano al detector a concentrarse en un plano cercano al mismo. Este proceso se ilustra en la *Figura 29*. En ella, la denominada Etapa 1 ejemplifica una exhalación típicamente elevada de ^{222}Rn durante un período seco. Por su parte, la Etapa 2, muestra los radionucleidos emisores gamma que se eliminan de la atmósfera depositándose en la superficie y que contribuyen al incremento significativo de la tasa de dosis equivalente ambiental observado. Por último, la Etapa 3, muestra como la concentración de los radionucleidos gamma descendientes del Rn aumenta hasta su estado inicial a medida que el suelo se va secando.

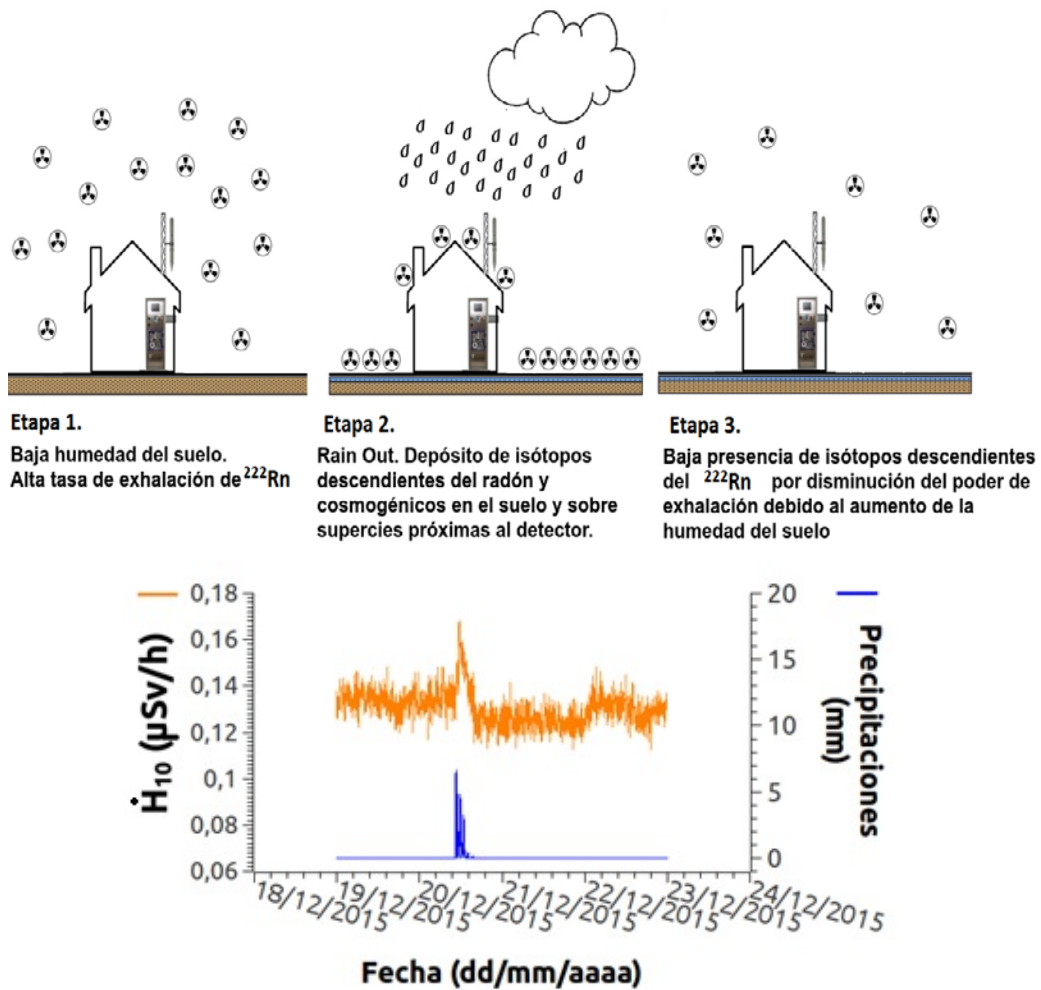


Figura 29. Imagen superior: Ilustración de la deposición de los descendientes del radón en el entorno del detector Geiger-Müller durante los fenómenos de precipitaciones. Imagen inferior: influencia de la deposición de los descendientes de radón en los valores de tasa de equivalente de dosis ambiental.

Para confirmar esta hipótesis sobre el origen de los incrementos de \dot{H}_{10} , se ha determinado el periodo de semidesintegración ($T_{1/2}$) de forma experimental a partir de los valores de \dot{H}_{10} medidos durante un evento de lluvia. Para ello, en cada incremento de la tasa de dosis detectado, se representan valores de tasa de dosis ambiental

inmediatamente después de su valor máximo y los datos se ajustan a la función exponencial dependiente del tiempo:

$$\dot{H} = \dot{H}_{10(\text{máx})} \cdot e^{-\frac{\text{Ln}(2)}{T_{1/2}} \Delta t}$$

A modo de ejemplo, en la *Figura 30*, muestra la disminución de la \dot{H}_{10} en la estación de Saucedilla tras un suceso de precipitación. El ajuste de los datos de \dot{H}_{10} proporciona, como resultado, un valor de $T_{1/2}$ experimental de 44 ± 4 minutos, que es del orden del tiempo de semivida suma de los isótopos de ^{214}Pb (27,06 minutos) y ^{214}Bi (20 minutos) [IAEA, 2020]. Se seleccionaron un total de 73 eventos de lluvia en los que había un incremento significativo de \dot{H}_{10} . En cada uno de ellos, de nuevo, se realizó un ajuste según la ecuación anteriormente mostrada obteniendo un valor medio del $T_{1/2}$ sobre todos los eventos analizados de 46 ± 11 minutos con un valor máximo de 74 minutos y un valor mínimo de 46, estando el rango de tiempos asociado a la duración de las precipitaciones [Dabrowski et al, 2017].

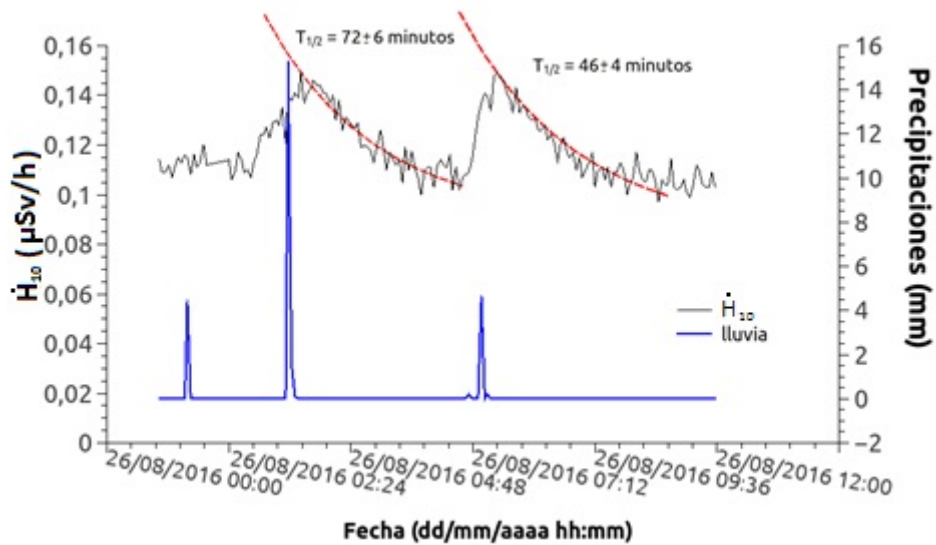


Figura 30. Ejemplo de obtención del $T_{1/2}$ del radionucleido que genera la alteración radiológica en la tasa de equivalente de dosis ambiental por la presencia de lluvias en la zona.

Finalmente, para verificar nuevamente nuestra hipótesis, durante 2017 se instaló el monitor comercial de radiación SPECTROTRACER® [**Spectrotracer, 2020**] sobre el edificio Alerta2. Este equipo comercial consta de un centelleador de NaI(Tl) y dos monitores Geiger-Müller. El primero, está destinado a identificar y cuantificar la concentración de radionucleidos gamma en el aire. Para ello, requiere que se le indique a su software de control si los radionucleidos a analizar están presentes en el aire, con lo cual los cálculos los realiza en base a una geometría de calibración en eficiencia 4π , o éstos se encuentran depositados en el suelo. Siendo en este caso la geometría de calibración de eficiencia un plano infinito. En ambas situaciones, el equipo no puede discernir cuál de las dos geometrías propuestas es la más próxima a la realidad que se está evaluando. Los monitores Geiger-Müller están destinados a la medida de \dot{H}_{10} .

El día 17/06/2017 se produjo un suceso de lluvia donde la \dot{H}_{10} aumentó 1,5 veces sobre el valor promedio mensual. La *Figura 31* muestra las \dot{H}_{10} medidas tanto con los contadores Geiger-Müller como la calculada a partir del número de cuentas totales de cada espectro de 10 minutos registrado con el detector de NaI(Tl) (tamaño de cristal de 3"x3") durante este día. También, se adjunta el espectro gamma obtenido durante el suceso de lluvia con el citado detector de centelleo NaI(Tl) con la presencia clara de los fotopicos correspondientes al ^{212}Pb , ^{214}Pb y ^{214}Bi en sus líneas de energía principales (238,6, 351,99 y 609,3 keV).

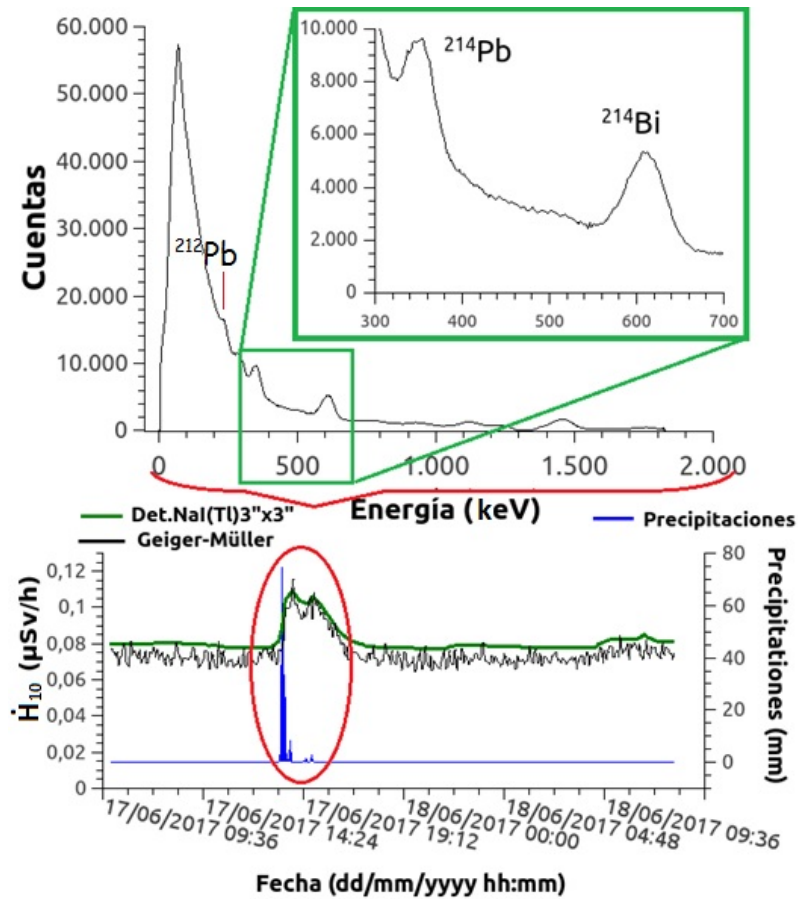


Figura 31. Incremento de tasa de dosis durante evento de lluvia y su correspondiente espectro gamma registrado por el equipo SPECTROTRACER emplazado en el Centro de Operaciones de la RARE (Alerta2) [Spectrotracer, 2020].

Los resultados obtenidos muestran que los incrementos de \dot{H}_{10} son debidos principalmente a la deposición de los isótopos de ^{214}Pb y ^{214}Bi dispersos en el aire sobre el detector y su entorno como consecuencia de las lluvias registradas.

3.2.5.- Resultados obtenidos con las estaciones actualizadas de monitorización en aire.

El nuevo diseño y los equipos de detección incorporados en las estaciones automáticas de monitorización de aire ha supuesto un cambio en el método de análisis radiológico del aire frente al que se utilizaba con las estaciones tradicionales Berthold. Los resultados más destacados se exponen en las siguientes líneas:

Las calibraciones en eficiencia realizadas para la nueva configuración del monitor de aerosoles muestran como la eficiencia del detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ es, en promedio, un 25% superior a la del $\text{NaI}(\text{Tl})$ para detectores con el mismo tamaño de cristal, lo que lleva a concluir, en principio, que el detector $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ es más adecuado para la determinación de las actividades de los radionucleidos presentes en el filtro de fibra de vidrio.

El $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ ofrece una mejor resolución energética respecto al detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ y, pese a tener una mayor radiación de fondo intrínseco, los cálculos de las AMD para ambos detectores, en las mismas condiciones de medida, reflejan valores hasta un 28% superiores obtenidos con el $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ frente a los obtenidos con el $\text{NaI}(\text{Tl})$ [**Van Loef, 2002**].

Con respecto a la detección de ^{131}I en los cartuchos de carbón activo, se observó que, por un lado, a medida que iba aumentando la cantidad de carbón trazado con ^{131}I , la eficiencia de detección disminuye hasta alcanzar un valor mínimo de $0,0232 \pm 0,0005$, véase *Figura 18*. Este comportamiento es consecuencia de la atenuación que el propio carbón ejerce sobre las emisiones gamma del ^{131}I y el cambio del ángulo sólido entre el detector y fuente, ya que, cuanto más delgada es la capa de carbón que ha retenido el ^{131}I , mayor es el citado ángulo sólido frente al detector. Sin embargo, esta diferencia de los valores de eficiencia de detección obtenidos no es lo suficientemente importante para que el cálculo de actividades, en modo emergencia, proporcione resultados que difieran en órdenes de magnitud al aplicar uno u otro valor de eficiencia, eligiendo el valor medio para el funcionamiento rutinario del sistema.

Los AMD obtenidos de los radionucleidos de origen artificial: ^{137}Cs , ^{60}Co y ^{131}I , sobre medidas de 10 minutos presentan valores del orden de 8, 8 y 9 Bq/m³

respectivamente y, por lo tanto, próximos a los valores recomendados de límites de detección para situaciones de emergencias [Engelbrecht, 2008]. Además, para los análisis de espectros gamma acumulados de 6 y 24 horas [Artículo 3], los valores de AMD obtenidos están entre uno y dos órdenes de magnitud por debajo de los niveles de notificación establecidos por el Organismo Regulador en España, el CSN, de 0,2 Bq/m³ para ¹³⁷Cs, 0,2 Bq/m³ para ⁶⁰Co y 0,4 Bq/m³ para ¹³¹I [CSN, 2006].

El efecto de la temperatura sobre el cristal que compone los detectores de centelleo es lo suficientemente importante como para aplicar medidas de estabilización térmica en las estaciones de monitorización, así como para conseguir una calibración en energía para cada espectro colectado y, de esta forma, evitar una incorrecta identificación y cálculo de los fotopicos presentes en los mismos.

El empleo del método del área trasladada como solución fácil de implementar para resolver el doblete de ²¹⁴Pb y ¹³¹I a 364,5 keV en los espectros gamma, señala claramente que el número de falsos positivos de actividad neta de ¹³¹I se reduce significativamente. A modo de ejemplo, a partir de 703 espectros gamma analizados se registraron originalmente 386 falsos positivos de actividad de ¹³¹I y, cuando se implementó el algoritmo, el registro de falsos positivos de actividad de ¹³¹I se redujo en más de un 95% (Figura 26).

En determinados eventos de lluvia, la deposición de radionucleidos cosmogénicos y descendientes del radón emisores gamma en el entorno próximo del detector Geiger-Müller generan incrementos en la tasa de equivalente de dosis ambiental que pueden alcanzar valores superiores a 1,30 del valor medio diario. El estudio realizado sobre dichos incrementos de H₁₀ revela como, principalmente, son los descendientes del gas radón los responsables de dichas subidas. Prueba de ello, es el valor promedio del periodo de semidesintegración experimental hallado (de 44 ± 4 minutos) y que se corresponde con la suma de los periodos de semidesintegración del ²¹⁴Pb y ²¹⁴Bi. Además, los análisis espectrométricos gamma realizados en las estaciones de monitorización de aerosoles situadas en Saucedilla y en la Atalaya de Santiago de Alcántara, muestran una disminución significativa de los descendientes del ²²²Rn sobre el filtro colectado en presencia de precipitaciones. Sin embargo, en estas mismas condiciones meteorológicas, equipos de

medida directa, como el Spectrotracer, presentan fotopicos correspondientes a los isótopos ^{212}Pb , ^{214}Pb y ^{214}Bi en cada uno de espectros obtenidos.

La incorporación de nuevos dispositivos en la estación tales como el intercambiador automático de cartuchos de carbón, las bombas de aspiración de caudal regulable, la estación meteorológica compacta, el generador y los acumuladores eléctricos, así como las cámaras de control remoto constituyen una parte fundamental para permitir un funcionamiento optimizado de las estaciones automáticas monitorización de aire.

3.3.- Estaciones de monitorización acuática espectrométricas de la RARE

3.3.1.- Modificaciones y dispositivos auxiliares

Para aumentar las capacidades de los diseños comerciales de las estaciones automáticas de monitorización de agua y, con el fin de reducir las limitaciones detalladas en el apartado 2.2, se ha incorporado, principalmente, un nuevo sistema de detección basado en un detector de centelleo con un cristal de $\text{NaI}(\text{Tl})$ o $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ de tamaño 2"x2" y con resoluciones energéticas de 7 y 2,7% respectivamente para el fotopico gamma de 661,65 keV de energía y correspondiente al isótopo ^{137}Cs . A este detector, se ha acoplado la cadena electrónica multicanal compacta modelo DTB de Osprey [Osprey, 2020] o modelo digiBase [DigiBase, 2020] como se muestra en la *Figura 32*. Ambos sistemas electrónicos, Osprey y digiBase, incorporan una fuente de suministro de alta tensión al detector, un amplificador y un analizador multicanal de 2024 canales. Esta electrónica puede ser controlada a través de una conexión USB y/o ethernet. Por otra parte, sus reducidas dimensiones permiten que, una vez acoplado al detector, pueda ser introducido en la vasija del sistema comercial sin necesidad de modificar la estructura de la misma.

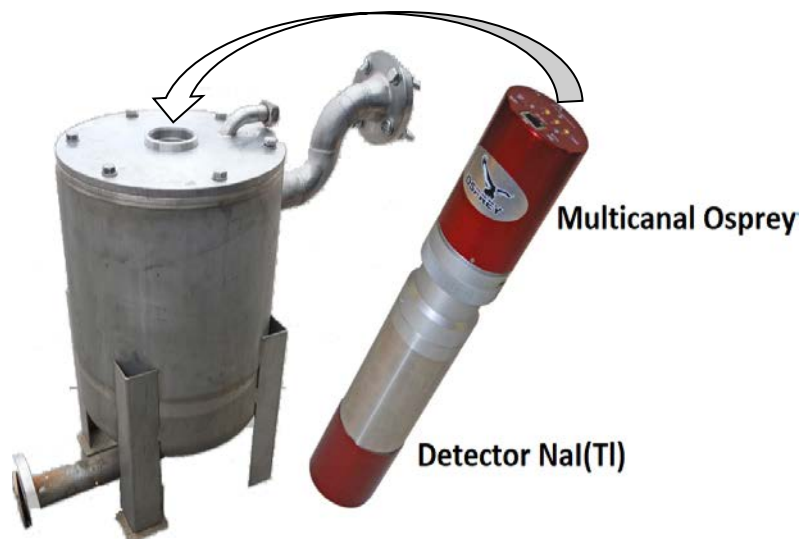


Figura 32. Vasiija de acero y nuevo sistema espectrométrico empleados en el análisis de muestras de agua.

El control de la nueva electrónica del sistema de detección, la adquisición de datos y el análisis de estos se realiza mediante un software desarrollado en el LARUEX que emplea las rutinas de análisis de espectros de los softwares comerciales Genie2K [GENIE2K, 2018] y GammaVision [GammaVision, 2018].

La actualización de la estación de monitorización de agua, mostrada en la *Figura 33*, ha supuesto, principalmente, una gran mejora tanto en el número de radionucleidos que pueden ser identificados así como en la capacidad para cuantificar sus niveles de actividad en el volumen de agua analizado.

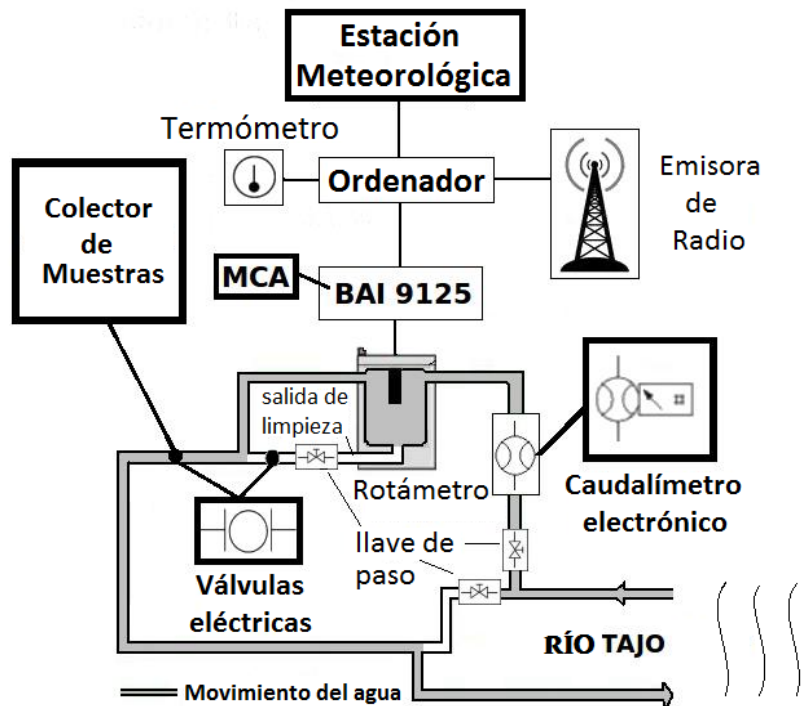


Figura 33. Esquema de funcionamiento de la estación de monitorización de aguas de la RARE modificada, incluyendo los nuevos dispositivos incorporados.

Además del nuevo sistema de detección, se ha incorporado una estación meteorológica modelo WXT520 de la compañía VAISALA [Vaisala, 2020], que permite medir diversos parámetros meteorológicos de la zona (temperatura, lluvia, dirección y velocidad del viento, humedad relativa, ...) que proporcionan una ayuda en la interpretación de ciertas alteraciones de las actividades de los radionucleidos de origen natural de las aguas monitorizadas en la estación. También, se ha instalado un caudalímetro digital con objeto de medir el caudal de agua que entra en la vasija de medida e incluso ayude a regularlo de forma remota. Los datos de caudal que proporciona este dispositivo son tratados por el software de gestión de la estación de forma que se determina con precisión el volumen de agua analizado durante el tiempo de adquisición del espectro gamma y, además, aporta información instantánea del estado del sistema de bombeo de agua [SIEMENS, 2013]

[SIEMENS, 2018]. Por último, se han instalado válvulas electromecánicas [GENEBRE, 2019], controladas por el software de la estación (de forma local y remota), cuya finalidad es controlar la distribución del agua a través de los diferentes conductos de la estación. Dos de las válvulas electromecánicas tienen una función especial. La primera, ubicada en el conducto de la salida de agua de la vasija, permite que esta pueda ser desviada y recogida en un tanque. De esta forma, en el supuesto que se detecte una anomalía en la concentración de radionucleidos artificiales en el agua, se puede tomar una alícuota de esa muestra para su posterior análisis en el laboratorio donde puede ser medida con sistemas mucho más sensibles e, incluso, ser sometida a diversos procesos de separación radioquímica que permitan afinar en la cuantificación de la actividad anómala detectada y su corroboración. La otra electroválvula está situada en el conducto del sumidero de la vasija con objeto de facilitar el proceso de limpieza de la misma de modo automático ya que, como ya se ha indicado, uno de los inconvenientes que presenta la vasija es la acumulación paulatina de lodos en su interior y deben ser eliminados periódicamente. Esto se puede realizar remotamente a demanda o de forma automática cuando se cumple un criterio establecido y basado en el incremento del número de cuentas totales registradas en los espectros gamma diarios analizados.

3.3.2.- Calibración del sistema de detección

La incorporación del nuevo sistema de detección espectrométrico gamma en las estaciones de monitorización de aguas, ha supuesto la necesidad de su correcta calibración en eficiencias. Para ello, se empleó un método de calibración mixto, es decir, basado en unificar los resultados procedentes de la simulación mediante técnicas Monte Carlo con aquellos experimentalmente obtenidos a partir de la medida de muestras de actividad conocida.

Para realizar la calibración en eficiencia mediante simulación Monte Carlo, se utilizó el programa comercial **labSOCS** [labSOCS, 2020]. Uno de los aspectos más importantes a considerar en la aplicación de este método, es la necesidad del conocimiento preciso de la composición y dimensiones de los materiales que constituyen la vasija. A partir de la

información recopilada de los manuales del fabricante y de la extraída a partir de varias radiografías realizadas de la tapa de la vasija, se ha podido determinar con un elevado grado de exactitud las dimensiones de los distintos materiales que la componen y que se muestran en la *Figura 34*.

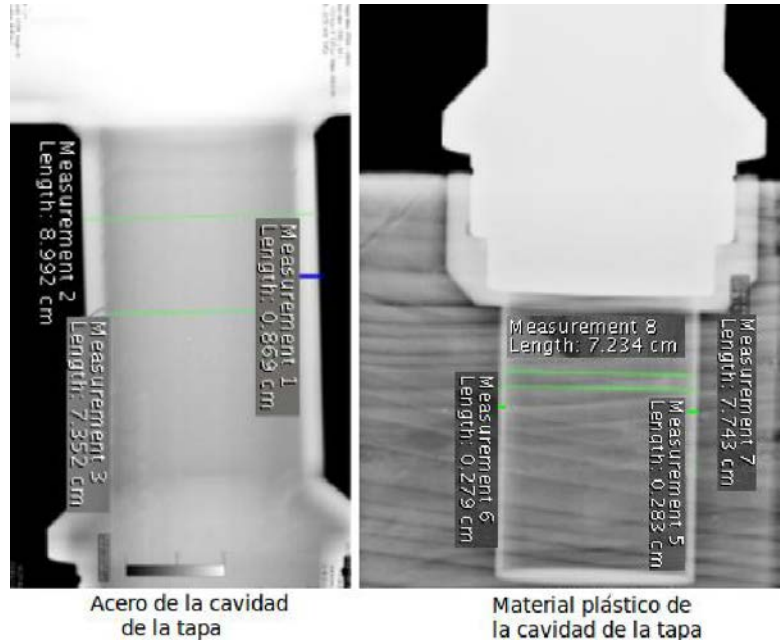


Figura 34. Radiografías realizadas para conseguir las dimensiones exactas de los componentes de la cavidad donde va alojado el detector en la vasija de monitorización de agua.

La información conseguida en relación a las dimensiones y materiales que constituyen la vasija permiten, a través del programa labSOCS, realizar el diseño simulado de la misma. Para realizar los cálculos de eficiencia dicha aplicación permite simular la fuente radiactiva con las dimensiones y composición que se desee y con los radionucleidos de interés. En este sentido, se ha elegido el agua como composición principal de la fuente radiactiva y se ha seleccionado como radionucleidos emisores gamma un coctel similar al QCY que viene especificado por defecto en LABSOCS. Los resultados se muestran en la *Figura 35*.

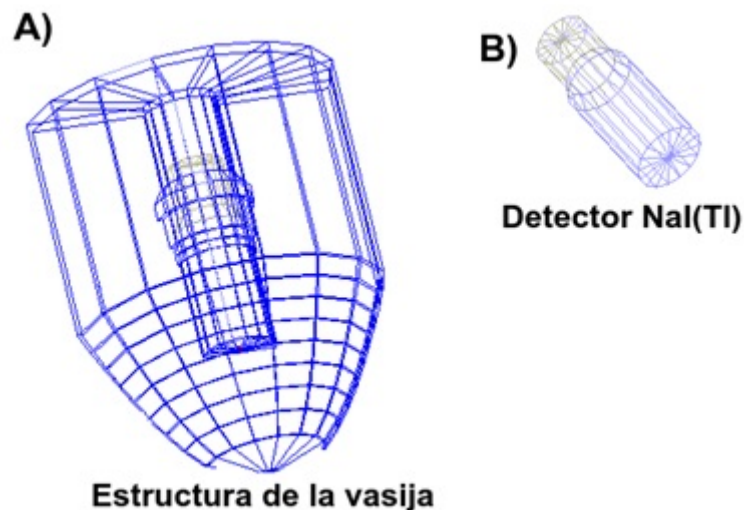


Figura 35. Diseño del sistema de detección realizado con el programa labSOC. A) Estructura de la vasija (vaso + tapa). B) Detector de NaI(Tl) de tamaño de cristal 2"x2"

Una vez obtenida la curva de calibración en eficiencia se procedió a su chequeo utilizando dos materiales de actividad conocida: ^{131}I y ^{40}K . Se prepararon dos diferentes disoluciones elaboradas sobre 25 litros de agua destilada. En la primera de ellas, se emplearon $615,0 \pm 0,1\text{g}$ de KCl que contienen 322.5 g de K y, teniendo en cuenta el factor de conversión 0,02769 Bq/mg [Norma UNE, 2003], la actividad de ^{40}K es de $8931,4 \pm 0,2$ Bq. Para la segunda, se utilizaron $42,8632 \pm 0,0001$ g de un patrón líquido de ^{131}I , con una actividad de 3900 ± 100 Bq.

El empleo de estos dos isótopos fue debido, principalmente, para evitar la contaminación de la vasija con radionucleidos perdurables en el tiempo. La disolución de cloruro potásico en agua no presentaba un riesgo de contaminación para la vasija como, previsiblemente, sí ocurría con la disolución de patrón de ^{131}I en agua aunque su corto periodo de semidesintegración (8,0252 días [IAEA, 2020]) permitió asumir dicho riesgo.

Como resultado de ambas experiencias, fue posible la comprobación de la curva de calibración de eficiencia obtenida mediante métodos de simulación. En la *Figura 36* se puede comprobar que las eficiencias obtenidas a partir de las disoluciones utilizadas ($0,0031 \pm 0,0002$ para ^{131}I y $0,00097 \pm 0,00006$ para ^{40}K) coinciden con las obtenidas de

forma simulada ($0,0027 \pm 6\%$ para ^{131}I y $0,00097 \pm 3\%$ para ^{40}K) con una desviación del 13%.

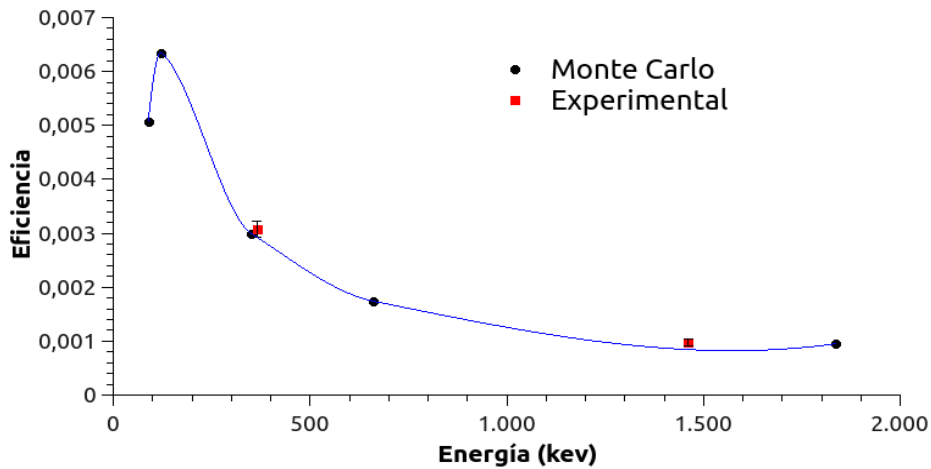


Figura 36. Curva de calibración en eficiencia del detector de NaI(Tl) incorporado en el sistema de monitorización de agua.

3.3.3.- *Carácter dual del sistema: vigilancia y emergencia*

Al igual que sucede en la monitorización radiológica del aire, el sistema de detección ha sido configurado para que funcione como red de alerta temprana (modo emergencia), proporcionando valores de actividad cada 10 minutos, pero también como red de vigilancia, proporcionando valores de actividad específica cada 6 y 24 horas (modo vigilancia). Durante el funcionamiento rutinario, el sistema de detección realiza el análisis de espectros gamma de 10 minutos de tiempo de adquisición medidos. El volumen de muestra que considera es de 25 L, que es la capacidad que tiene la vasija. Los resultados proporcionados en estas medidas corresponden a la monitorización del agua en el modo emergencia. Los análisis en el modo de vigilancia radiológica, que corresponden a espectros gamma medidos durante 6 h y 24 h de tiempo de adquisición se obtienen a partir de la suma algebraica de los espectros de 10 min y los de 6 h respectivamente.

3.3.4.- Estudio de sensibilidad del sistema

Uno de los principales retos en las medidas espectrométricas gamma rápidas es el de encontrar el tiempo óptimo de medida que satisfaga el nivel de sensibilidad requerido para el propósito del estudio. En el caso de las estaciones automáticas en tiempo real para la vigilancia radiológica en emergencias, como su propio nombre indica, el tiempo de medida debe ser lo más pequeño posible, buscando un equilibrio con la precisión, exactitud y la sensibilidad que requiere este tipo de medidas.

Para determinar el tiempo óptimo de medida es necesario cuantificar la sensibilidad del nuevo sistema de medida instalado en las estaciones de monitorización de aguas. Para ello, se ha diseñado una experiencia en la que se han utilizado los detectores de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ y $\text{NaI}(\text{Tl})$ de 2"x2" de tamaño de cristal y diferentes disoluciones con concentraciones de actividad dentro del rango 125 a 30000 Bq. En particular, las disoluciones elaboradas están compuestas, independientemente, por dos radionucleidos distintos: 1) ^{40}K contenido en sales de KCl, cuya concentración se calcula a partir del factor de conversión 0,02769 Bq/mg [Norma UNE, 2003], para a través de su fotopico de 1460,7 keV, y evitando la contaminación de la vasija, conocer la respuesta del sistema espectrométrico frente a emisiones de altas energías para el rango de trabajo en espectrometría gamma ambiental y, en particular, para el fotopico de ^{60}Co con energía 1332,5 keV que tiene una energía muy próxima al fotopico del ^{40}K y uno de los principales radionucleidos liberados al agua en accidentes nucleares. [Povinec et al., 2013] 2) ^{131}I en una disolución de actividad conocida con una emisión gamma (364,5 keV), que podemos considerar de baja-media energía, y que es uno de los radionucleidos fundamentales en la monitorización radiológica. Las actividades de baja-media energía medidas en las distintas disoluciones preparadas con ambos radionucleidos se muestran en la tabla 4 y corresponden al rango de actividad comprendido entre valores de actividad próximos a los niveles de notificación (similar al nivel de referencia equivalente a una dosis de 0,1 mSv/año [OMS, 2008]) hasta aquellos que igualan y superan el nivel de actuación indicados por el CSN [CSN, 1994].

a) Código disolución	Actividad total de ⁴⁰ K en 25 litros (Bq)	Actividad total de ¹³¹ I en 25 litros (Bq)
1	13000 ± 2000	29300 ± 900
2	1300 ± 200	340 ± 10
3	7000 ± 1000	680 ± 20

b)	Niveles de control Radiológico ⁶⁰ Co	Niveles de control Radiológico ¹³¹ I
Notificación (CSN)		
	2395 Bq	340Bq
Actuación (CSN)		
	4790 Bq	680 Bq

Tabla 4. a) Concentraciones de ⁴⁰K y ¹³¹I empleadas en la experiencia de estudio de sensibilidad de las estaciones de monitorización de aguas b) Niveles de notificación y actuación indicados por el CSN para ⁶⁰Co y ¹³¹I.

Cada disolución preparada ha sido introducida en la vasija y se le han realizado diferentes medidas con tiempos de adquisición distintos abarcando el rango de 30 a 600 s, siendo este último, el límite de tiempo de adquisición que entendemos como de emergencias.

En primer lugar, se realizaron las medidas con la disolución 1, la que mayor concentración presenta. Los resultados de las medidas obtenidas se muestran en la *Figura 37*.

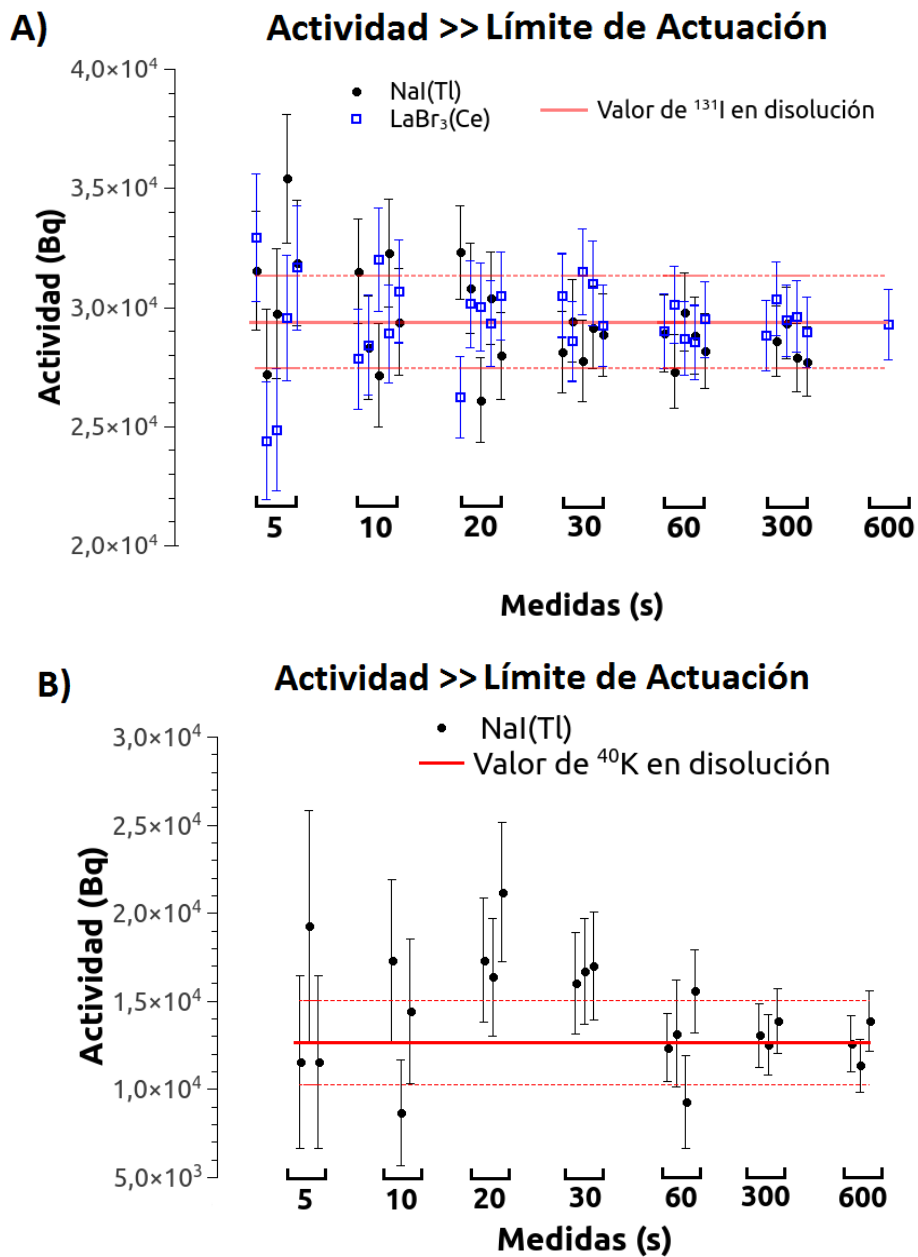


Figura 37. Valores de actividad medidos utilizando la disolución 1, cuya actividad es muy superior al nivel de notificación establecido por el CSN. A) Valores de actividad obtenidos de ¹³¹I con los detectores de NaI(Tl) y LaBr₃(Ce). B) Valores de actividad obtenidos de ⁴⁰K con el detector de NaI(Tl).

Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que, para cuantificar valores de concentración de actividad con órdenes de magnitud por encima del fondo ambiental, son suficientes cortos intervalos de tiempos de medida (5-10 s). Por otro lado, las precisiones de los resultados obtenidos, basándose en la dispersión de la actividad determinada en 3 ó 5 medidas, son inferiores a un 30% para tiempos de medida de 5 s y del orden de la incertidumbre de la actividad añadida a medida que se aumenta el tiempo de adquisición de los espectros. Lo cual, indica claramente que el sistema implementado es preciso, exacto y sensible cuando los niveles de actividad son significativamente superiores a los valores de fondo ambiental.

Como ya hemos indicado, las estaciones automáticas también pueden contribuir a los planes de vigilancia radiológica ambiental midiendo los efluentes, líquidos o atmosféricos, que pueden ser emitidos en la operación rutinaria de las instalaciones del ciclo de combustible nuclear. Consecuencia de ello, se consideró necesario chequear la sensibilidad del sistema espectrométrico, aplicando diferentes intervalos de tiempo de medida con concentraciones de actividad significativamente inferiores a las antes mostradas y siempre relacionadas con los niveles de notificación y actuación establecidos por el CSN.

En esta segunda experiencia, se prepararon disoluciones de material de actividad conocida para disponer, en el interior de la vasija, de actividades comprendidas entre el valor próximo al nivel de notificación y el nivel de actuación propuestas por el CSN así mostradas en la tabla 4 y codificadas como 2 y 3.

La primera disolución incorporada (Disolución 2) contenía una actividad del orden de 340 Bq de ^{131}I y 1300 Bq de ^{40}K . Por su parte, la segunda disolución (Disolución 3), presenta unas actividades totales de 680 Bq y 7000 Bq para el ^{131}I y ^{40}K respectivamente. En las *Figura 38_a* y *Figura 38_b* se muestran los resultados de actividad total calculada, para ambas disoluciones, tras su medida con diferentes tiempos de adquisición y ambos detectores.

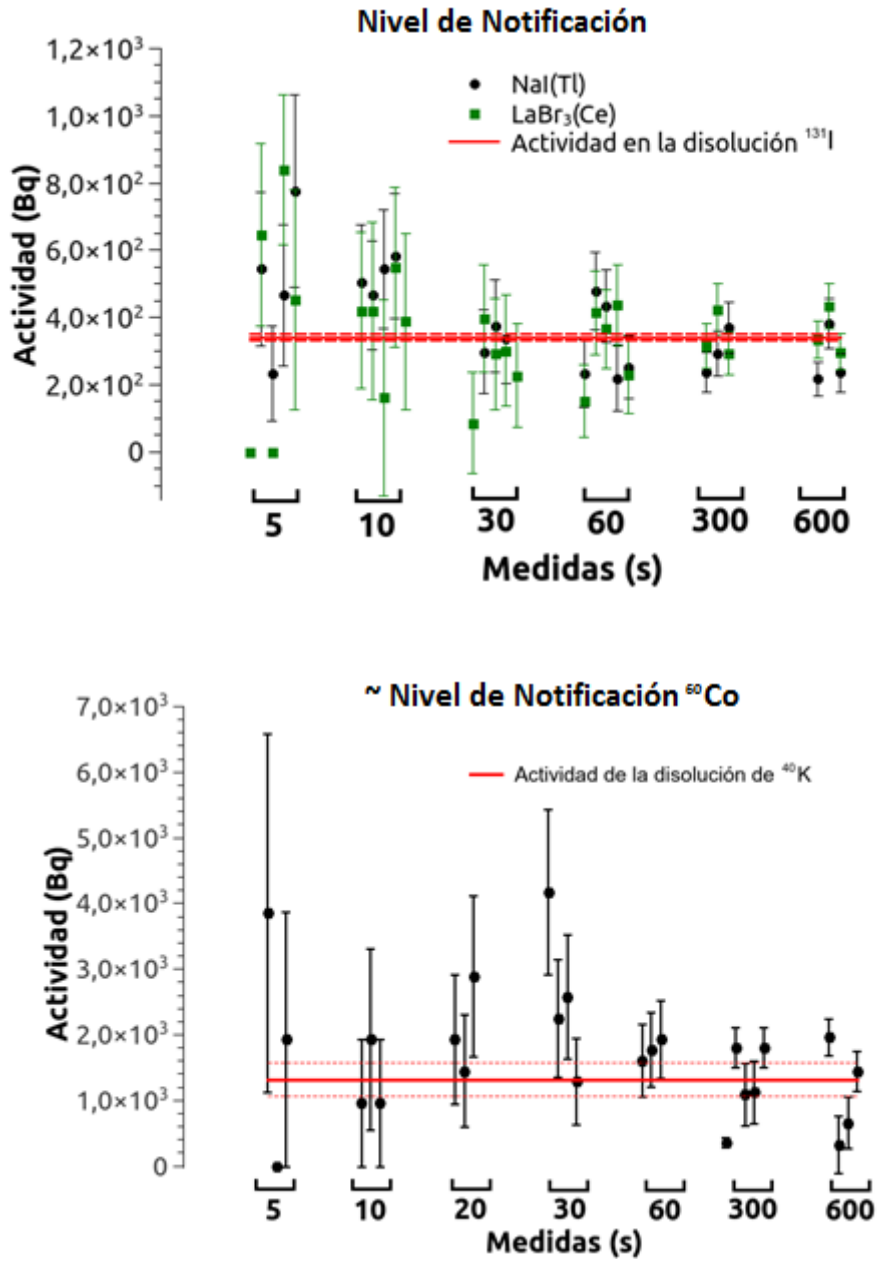


Figura 38_a. Respuesta del sistema de detección ante una actividad de ¹³¹I y ⁴⁰K igual y similar respectivamente de la actividad correspondiente al nivel de notificación dispuesta por el CSN.

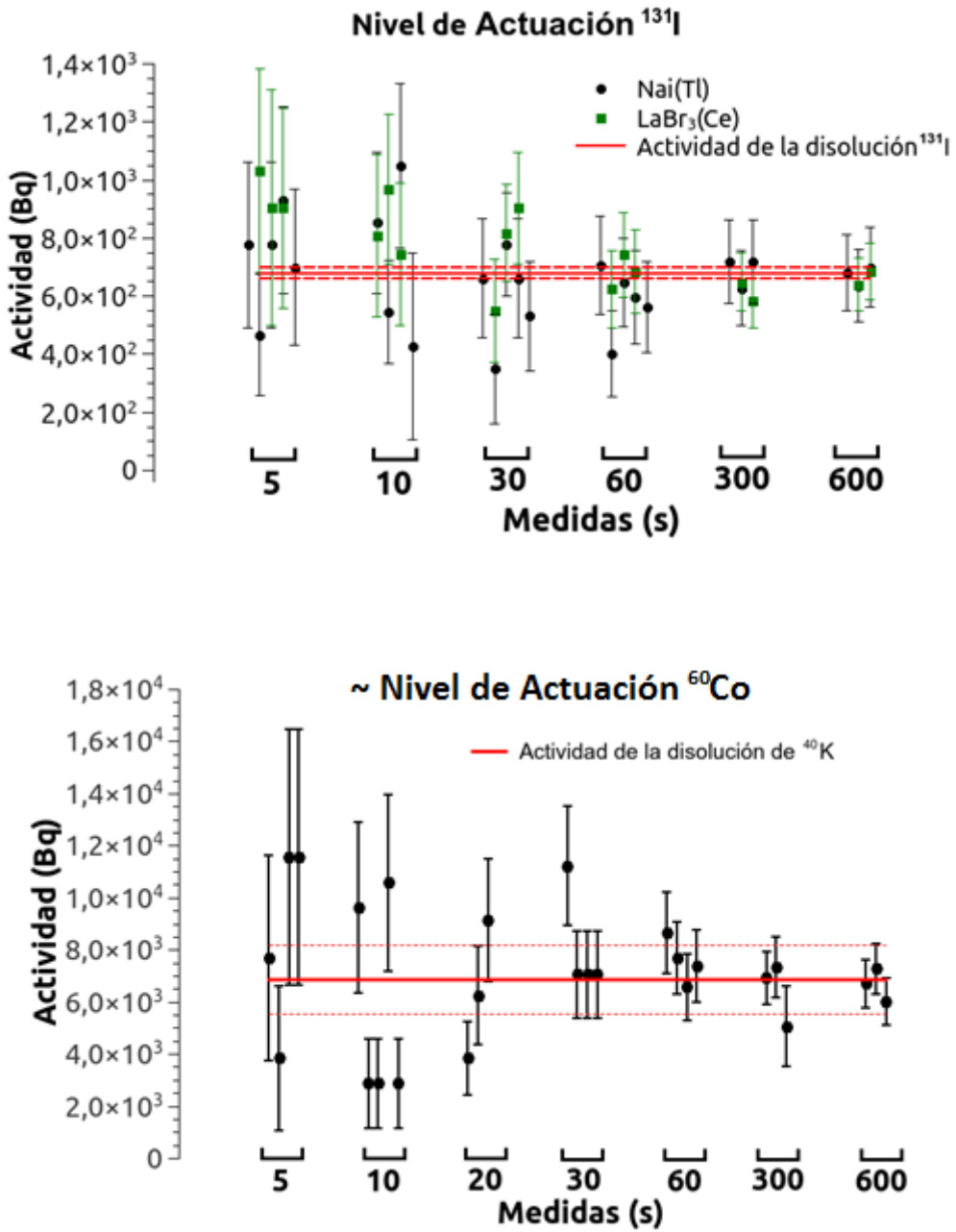


Figura 38_b. Respuesta del sistema de detección sobre actividades de ^{131}I y ^{40}K con valores próximos al nivel de actuación indicados por el CSN.

Ante los resultados mostrados en las gráficas anteriores, se puede deducir que un tiempo de adquisición de espectros de 600 segundos es un intervalo de tiempo suficiente para proporcionar un valor de actividad exacto y preciso, como así indican los errores absolutos y desviaciones estándar obtenidos, que son $\leq 10\%$, para los distintos niveles de actividad incorporados en la vasija. Pese a que, con la mitad del tiempo de integración (300 segundos) se obtienen resultados satisfactorios con respecto a la exactitud, la precisión, sin embargo, aumenta sensiblemente alcanzando un valor del 15%. La reducción del tiempo de medida por debajo de los 300 segundos, implica una pérdida significativa de la precisión y exactitud, aunque los niveles de radiactividad se mantienen en el mismo orden de magnitud.

Atendiendo a los resultados obtenidos y, sobre todo, a la versatilidad que tiene el sistema de detección para poder modificar fácilmente el tiempo de adquisición de espectros, se ha establecido que este fuera de 600 segundos. Es decir, en caso de emergencia o detección de niveles de actividad varios órdenes de magnitud por encima del fondo ambiental, se puede reducir el tiempo de adquisición. Mientras tanto, para medidas ambientales, consideramos que 600 segundos cumple con todos los requisitos necesarios para una red de alerta radiológica y que son: casi tiempo real y buena precisión y exactitud.

Una vez concluida la experiencia para conocer la sensibilidad de medida de nuestro sistema de análisis espectrométrico, se realizó la retirada de las diferentes disoluciones con actividades de ^{40}K y ^{131}I . En el caso de la disolución de ^{40}K , la vasija quedó totalmente limpia, sin restos de ^{40}K . Por el contrario, al retirar la segunda disolución de ^{131}I y someter la vasija a una exhaustiva limpieza con agua, se procedió a su llenado con 25 L de agua destilada. A continuación, se realizó una medida espectrométrica gamma de 24 h con el detector de NaI(Tl). Tras el análisis del espectro gamma se pudo constatar de la existencia de ^{131}I que quedó adherido a las paredes de la vasija o/y a las del alojador del detector incluso después de su limpieza. El valor de actividad total medido fue de ^{131}I de 30 ± 5 Bq. Este nivel de actividad en las medidas efectuadas en modo de emergencia, es decir un análisis gamma cada 10 min, estaría muy por debajo del valor de AMD del sistema. Sin embargo, esta situación de leve contaminación se consideró apropiada para comprobar el

funcionamiento del modo vigilancia (espectros de 6 y 24 horas). Para ello, el sistema de detección se puso a funcionar de manera rutinaria (caudal próximo a 30 L/min) y se adquirieron y analizaron los espectros de 6 y 24 horas durante los días posteriores. Las medidas se efectuaron durante 12 días desde la retirada de la disolución de ^{131}I y limpieza inicial de la misma. Los valores de ^{131}I medidos son los que se muestran en la *Figura 39*.

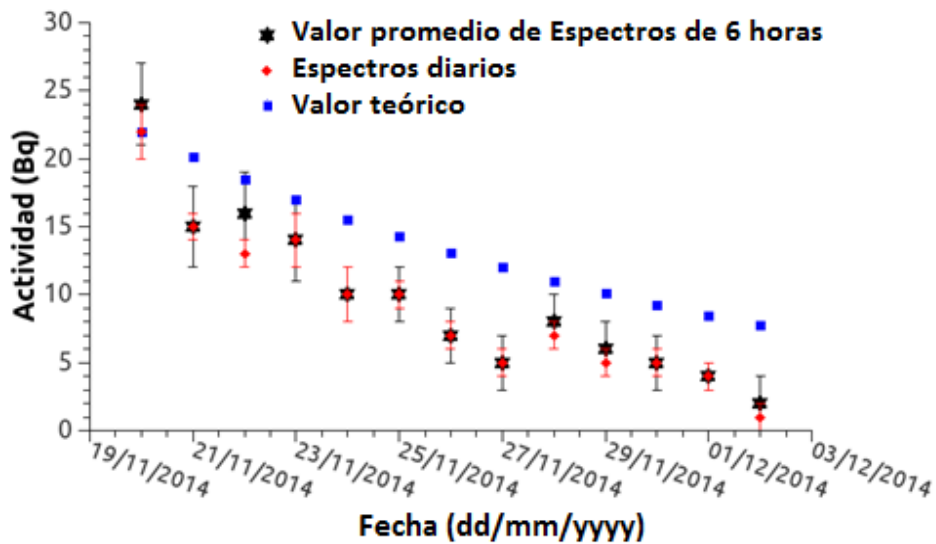


Figura 39. Evolución temporal de la actividad de ^{131}I en un sistema de monitorización contaminado que trabaja en modo de vigilancia (espectros acumulativos de 6 y 24 h) y utilizando un detector NaI (Tl) de 2 "x 2" y de la actividad teórica de dicho isótopo.

Como se puede observar, el valor promedio de actividad de ^{131}I medido y correspondiente a los espectros acumulados de 6 horas de tiempo de adquisición y los correspondientes a las muestras de 24 horas de tiempo de adquisición del mismo día proporcionaban actividades similares, pero ambas, inferiores a las actividades calculadas teóricamente por desintegración radiactiva del ^{131}I (8,021 días). Este hecho se debía, probablemente, a que el remanente de ^{131}I se estaba eliminando, no sólo debido a su desintegración física, sino también por su arrastre y eliminación del residuo de ^{131}I . Esta contaminación accidental del sistema de detección mostró que, trabajando en un modo

de vigilancia, la estación de monitorización de agua puede identificar y cuantificar bajos contenidos de radioactividad.

3.3.5- Resultados obtenidos.

Tras la actualización de la estación de monitorización de agua con la incorporación del nuevo sistema de detección, así como equipamientos auxiliares, los principales resultados obtenidos son los que se indican a continuación:

- a) La incorporación de la espectrometría gamma en las estaciones de monitorización de aguas permite establecer un control radiológico, en tiempo cuasi real, más preciso y completo, puesto que facilita la identificación de la presencia de un elevado número de radionucleidos en el medio a estudiar y cuantificar sus correspondientes actividades. De esta forma se ha eliminado la principal limitación que el sistema de detección BAI 9125 mostraba, que era la presencia constante de actividad específica positiva de ^{131}I y ^{137}Cs en la muestra de agua analizada, y que no se correspondía a la realidad.
- b) La utilización de los detectores de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ en el sistema de detección de actividades en muestras de agua, supone un aumento, no tanto en la eficiencia de detección como en resolución de fotopicos frente a los detectores de $\text{NaI}(\text{Tl})$, siempre y cuando sus cristales sean de igual tamaño. Para la RARE, la incorporación de uno u otro tipo de detector en sus estaciones depende básicamente de la probabilidad de presencia de mayor o menor número de radionucleidos artificiales en las muestras de agua analizadas. Así, se ha decidido incorporar un detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ que, como ya se ha indicado, tiene mayor resolución que un $\text{NaI}(\text{Tl})$, al sistema de detección de la estación situada junto al canal de descarga de la CNA y, por el contrario, se ha instalado un detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ en la estación sita aguas arriba de la CNA, en el pantano de Valdecañas, donde la presencia de radionucleidos de origen artificial es mucho más improbable.
- c) La calibración mediante simulación por el método Monte Carlo, a través del programa labSOCS, presenta un modo de calibración en eficiencia de la vasija menos costoso, tanto en recursos como en tiempo frente al experimental debido, por un lado, a la no necesidad

de adquirir un cóctel de radionucleidos certificado cuyo coste es elevado y, por otro lado, a los medios necesarios a emplear para evitar contaminar el interior de la vasija o, en caso de que ocurra, limpiar la misma hasta que no sean detectables los posibles radionucleidos que quedaran adheridos. No obstante, el método Monte Carlo requiere un ajuste completamente preciso del diseño de la vasija y, sobre todo, de la densidad de los materiales que la constituyen, para proporcionar valores de eficiencias muy próximos a los obtenidos de manera experimental.

d) El empleo de dispositivos complementarios al sistema como el caudalímetro, las electroválvulas y el depósito, constituyen un sistema de asistencia importante para el funcionamiento eficaz de la estación, permitiendo informar sobre el estado de componentes mecánicos, que resultan indispensables en el funcionamiento rutinario de la estación.

e) La instalación de un sistema de gestión remota de toma muestras, permite la captación de muestras de agua como su almacenamiento en un depósito específico para su posterior análisis en el laboratorio si fuera necesario.

f) La instalación de una estación meteorológica proporciona una valiosa información que puede facilitar la correcta interpretación de la procedencia de valores anómalos de la concentración de radionucleidos naturales y artificiales medidos en las aguas monitorizadas.

g) La evaluación de la sensibilidad del sistema de detección instalado en las estaciones de monitorización de aguas con disoluciones de ^{131}I (emisión energética baja-media) y ^{40}K (emisión energética alta), muestra que los detectores empleados en las experiencias proporcionan respuestas precisas y poco dispersas para concentraciones de actividad similares y superiores a aquellas que requieren su notificación al CSN empleando tiempos de adquisición de espectros iguales o superiores a 300 segundos. Sin embargo, 600 s son suficientes para garantizar el adecuado funcionamiento del modo de emergencia de acuerdo con los límites de notificación y actuación establecidos por CSN.

4.- Conclusiones

Los estudios presentados en esta tesis hacen referencia a las distintas aportaciones que han sido realizadas para la mejora del análisis radiológico y de control de las estaciones de monitorización radiológica en agua y aire presentes en la Red de Alerta Radiológica de Extremadura. A continuación, se exponen las principales conclusiones alcanzadas.

En primer lugar, la incorporación de la espectrometría gamma en estaciones de monitorización de aire y agua ha proporcionado una información radiológica más directa, precisa y completa, evitando la interpretación de parámetros radiológicos generales como los índices de actividad alfa y beta total, también el uso de métodos de pseudocoincidencia para el cálculo de actividades, así como los incrementos significativos no relacionados con radionucleidos de origen artificial. Las actualizadas estaciones radiológicas proporcionan información de concentraciones de actividad, incertidumbre y AMD de los radionucleidos de interés, ya sea para aire o agua, con unos límites de detección adecuados de acuerdo con la guía de seguridad 7.9 del CSN [CSN, 2006].

En segundo lugar, las modificaciones estructurales y de control realizadas sobre las estaciones de monitorización radiológica han permitido, en las de aire, establecer una nueva secuencia de muestreo que, por un lado, facilita conocer, de manera precisa y concreta, la muestra real que se está analizando y, a partir de ello, poder componer espectros suma cuyos análisis disminuyen la actividad mínima detectable para cada isótopo registrado. Además, se han establecido distintos tiempos de medidas empleando espectros de 10 minutos, para la monitorización de alerta temprana o monitorización de emergencia, así como de 6 y 24 horas (modo de vigilancia) que permiten detectar niveles de actividad del orden del fondo ambiental.

En tercer lugar, la incorporación de detectores de centelleo de LaBr₃(Ce) o de NaI(Tl) en las estaciones de monitorización radiológica precisa de una adecuada calibración en eficiencia, ya sea a través de métodos experimentales o de simulación (Monte Carlo). Las diferencias entre las eficiencias de ambos detectores para una misma muestra, a igual

tamaño de cristal, no son muy significativas. Por lo que, la mejor resolución energética del detector de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ hace que sea la mejor opción de las dos consideradas para estaciones en emplazamientos con una mayor posibilidad de presencia de radionucleidos de origen artificial.

En cuarto lugar, los detectores de centelleo presentan alteraciones en la relación canal-energía que se refleja en desplazamientos de los fotopicos en los espectros gamma adquiridos cuando hay cambios significativos de temperatura. Esto puede llevar a una inadecuada identificación de los radionucleidos presentes en la muestra y, consecuentemente, a un cálculo incorrecto de sus actividades. En ocasiones, los sistemas vienen estabilizados en temperatura por los fabricantes, pero, en caso contrario, se ha implementado un software basado en la búsqueda de canales correspondientes a máximos de fotopicos frecuentemente presentes en los espectros para ser incluidos en la calibración y asignarles sus correspondientes energías, de manera que la calibración canal-energía es recalculable de forma automatizada.

En quinto lugar, la proximidad energética entre los fotopicos de ^{214}Pb en su línea de emisión con energía a 351,99 keV y de ^{131}I a 364,5 keV, es un problema de los detectores $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ y $\text{NaI}(\text{Tl})$ porque su resolución impide que el programa de análisis, Genie2K o GammaVision, pueda realizar un cálculo correcto de actividad para cada uno de los radionucleidos, generando una gran cantidad de falsos positivos de ^{131}I , sobre todo, cuando la estación de monitorización se encuentra en una zona caracterizada por contener elevada concentración de radón. La aplicación del método del área trasladada, aplicable de forma sencilla sobre cualquier software, permite reducir notablemente la presencia de falsos positivos en el análisis de espectros de ambos detectores durante su funcionamiento rutinario y en tiempo real.

En sexto lugar, en las estaciones de monitorización de aire los niveles de E.C.C menos ^{218}Po se obtienen a partir de la medida de sus descendientes directos ^{214}Pb y ^{214}Bi retenidos en las partículas de aerosoles. Esto ha permitido realizar un estudio donde se ha podido comprobar que cuando se producen precipitaciones intensas y posteriores a periodos de sequía, se tiene una elevada concentración de descendientes del radón depositada en el

entorno de los equipos de medida de tasa de equivalente de dosis ambiental sin que ello suponga un incremento en la dosis por inhalación debido a la presencia de ^{214}Pb y ^{214}Bi . Además, en el caso de una contaminación radiológica que pudiera tener lugar durante un evento de lluvia, queda garantizada, a través de la espectrometría gamma, la evaluación de la contribución natural y antropogénica.

En séptimo lugar, en las estaciones de monitorización de agua, la calibración en eficiencia del detector mediante simulación por el método de Monte Carlo, presenta un método de calibración del detector de la vasija que permiten obtener un mayor número de valores de eficiencias frente a la calibración experimental donde, existe la posibilidad de una posible contaminación de la vasija con radionucleidos de largo periodo de semidesintegración. Sin embargo, disoluciones no agresivas con el metal y con radionucleidos de bajo periodo de semidesintegración (días) permiten evaluar la precisión las curvas de calibración en eficiencia obtenidas mediante simulaciones.

En octavo lugar, se ha podido establecer como óptimo, en las estaciones de monitorización de agua, un tiempo de adquisición de 600 segundos en los espectros del modo emergencia puesto que permiten determinar y cuantificar actividades que se encuentran próximas a los niveles de notificación establecidos por el CSN, con suficiente precisión. Para actividades con órdenes de magnitud inferiores a estos niveles, los espectros de 6 y 24 horas (modo vigilancia) han mostrado ser muy útiles para su determinación de manera precisa.

En noveno lugar, el diseño de la estación y la implementación de nuevas tecnologías para el control remoto de la misma constituyen otro punto fuerte de las estaciones modificadas. Esto permite disminuir los mantenimientos rutinarios de las estaciones y, en consecuencia, los costes económicos del funcionamiento de la RARE.

Por último, el diseño de las estaciones y la implementación de nuevas tecnologías sobre ellas ha supuesto el envío de un volumen de datos muy elevado respecto a las estaciones iniciales. Para poder realizar el tratamiento y análisis de los mismos ha sido necesario la elaboración de software específicos para facilitar la tarea de análisis, tanto radiológico

como operacionales, de las distintas estaciones de monitorización ambiental que constituyen la RARE tal como se muestra en el **artículo 6**.

5.- Bibliografía

[Baeza et al, 1993] Baeza, A., Del Puerto, J. A., Del Rio, M., Miró, C., Ortiz, F., & Paniagua, J. M. (1993). Development and operativity of a real-time radiological monitoring network centered on the nuclear power plant of Almaraz, Spain. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 40(6), 2014-2020.

[Baeza et al, 1994] Baeza, A., Del Rio, M., Miro, C., & Paniagua, J. (1994). Natural radionuclide distribution in soils of Cáceres (Spain): dosimetry implications. *Journal of environmental radioactivity*, 23(1), 19-37.

[Baeza et al, 1997] Baeza, A., Del Rio, L. M., & Vasco, J. (1997). Remote on-line calibration of a particulate-iodine monitor of a real-time radiological network. *Radiochimica Acta*, 79(1), 17-24.

[Baeza et al, 2013] Baeza, A., Corbacho, J. A., & Miranda, J. (2013). Design and implementation of a mobile radiological emergency unit integrated in a radiation monitoring network. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 60(2), 1400-1407.

[BAI 9125, 1992] Manual de la estación de monitorización de aguas modelo BAI 9125 de la compañía Berthold (1992).

[BAI 9850-6, 1997] Combined particulates-Iodine monitor. Standard manual. EG₂G Berthold.

[Barriuso C, 2010] Barriuso Batet, C. (2004). Proyecto de mejoras del monitor de aerosoles radioactivos LB BAI 9850-6.

[BOE, 1986] del Estado, J. (1986). INSTRUMENTO de Ratificación del Tratado hecho en Lisboa y Madrid el día 12 de junio de 1985, relativo a la adhesión del Reino de España y de la República Portuguesa a la Comunidad Económica Europea ya la Comunidad Europea de la Energía Atómica. INSTRUMENTO de Adhesión al Tratado Constitutivo de la Comunidad Europea del Carbón y del Acero, firmado en París el 18 de abril de 1951.

[BOE, 2016] de Sanidad, G. (1980). Real Decreto 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano.

[Casanovas, 2014] Casanovas Alegre, R. (2014). *Development and calibration of automatic real-time environmental radioactivity monitors using gamma-ray spectrometry* (Doctoral dissertation, Universitat Rovira i Virgili).

[CNAT, 2013] Central Nuclear de Almaraz Trillo. (2017). Participación de la central nuclear de Almaraz en el simulacro internacional CURIEX 2013. Madrid, España: <http://www.cnat.es/cnatweb/pdfs/CURIEX%202013.pdf>.

[Corbacho, 2007] Merino, J. Á. C. (2007). *Evaluación radiactiva-dosimétrica de suelos mediante técnicas convencionales e in situ* (Doctoral dissertation, Universidad de Extremadura).

[CSN, 1994] Consejo de Seguridad Nuclear. (1994) Control radiológico del agua de bebida. Guía de Seguridad nº 7.7 (Re.1). Madrid, España: Consejo de Seguridad Nuclear.

[CSN, 2006] Consejo de Seguridad Nuclear. (2006). Manual del cálculo de dosis en el exterior de las instalaciones nucleares. Guía de seguridad 7.9. Madrid, España: Consejo de Seguridad Nuclear.

[CSN, 2013] Consejo de Seguridad Nuclear (2020). El Consejo de Seguridad Nuclear participa en el ejercicio internacional CURIEX 2013. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, España: https://www.csn.es/noticias-csn/2013/-/asset_publisher/tbX5DqDjPdHo/content/el-consejo-de-seguridad-nuclear-participa-en-el-ejercicio-internacional-curiex-20-1.

[CSN_PVRAREM, 2020] Consejo de Seguridad Nuclear (2020). Valores radiológicos Ambientales PVRA REM. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, España: <https://www.csn.es/kprGisWeb/consultaMapaPuntos2.htm>.

[CSN_REA,2020] Consejo de Seguridad Nuclear (2020). Red de Estaciones Automáticas REA. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, España: <https://www.csn.es/valores-ambientales-rea>.

[CSN_EURATOM,2020] Consejo de Seguridad Nuclear (2020). Unión Europea. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, España: <https://www.csn.es/organismos-nucleares-internacionales/union-europea>.

[Currie, 1968] Currie, L. A. (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry. *Analytical chemistry*, 40(3), 586-593.

[Dabrowski et al, 2017]. Dąbrowski, R., Dombrowski, H., Kessler, P., Röttger, A., & Neumaier, S. (2017). Detection of rain events in radiological early warning networks with spectro-dosimetric systems. *Journal of Instrumentation*, 12(10), P10005.

[Diaz León et al, 2011] Leon, J. D., Jaffe, D. A., Kaspar, J., Knecht, A., Miller, M. L., Robertson, R. G. H., & Schubert, A. G. (2011). Arrival time and magnitude of airborne fission products from the Fukushima, Japan, reactor incident as measured in Seattle, WA, USA. *Journal of environmental radioactivity*, 102(11), 1032-1038.

[DigiBase, 2020] ORTEC. (2020). PMT Base with Integrated Bias Supply, Preamplifier and Digital Multichannel Analyzer for NaI spectrometry and Countig. Berwyn, EE.UU.:

<https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/manuals/digibase-mnl.pdf>.

[Engelbrecht, 2008] Engelbrecht, R., & Schwaiger, M. (2008). State of the art of standard methods used for environmental radioactivity monitoring. *Applied radiation and isotopes*, 66(11), 1604-1610.

[EURATOM,1996] EUROPEA, U. Directiva 96/29/Euratom del Consejo de 13 de mayo de 1996 por la que se establecen las normas básicas relativas a la protección sanitaria de los trabajadores y de la población contra los riesgos que resultan de las radiaciones ionizantes, Diario Oficial de las Comunidades Europeas No. *Diario Oficial de las Comunidades Europeas No L*, 159(1).

[EURDEP, 2020] European Commisision. (2020). EURDEP Gamma Dose Rates Simple Map. European Commisision. Bruselas, Bélgica: <https://www.csn.es/valores-ambientales-rea> <https://remap.jrc.ec.europa.eu/Consent/Simple.aspx>.

[Ferrer, 2015] Soria, A. F. (2015). *Física nuclear y de partículas* (Vol. 62). Universitat de València.

[GAMMATRACERXL2, 2020] bertin INSTRUMENTS. (2020). GAMMATRACERXL2. Autonomous Gamma Dose Rate Probe. bertin INSTRUMENTS. Rockville, EE.UU: [https://www.bertin-instruments.com/wp-content/uploads/2016/04/Brochure GT-XL2 WEB-2.pdf](https://www.bertin-instruments.com/wp-content/uploads/2016/04/Brochure_GT-XL2_WEB-2.pdf).

[GENEBRE, 2019] GENE BRE. (2019). Actuador Eléctrico Rotativo GE Multivoltage. GENE BRE. L'Hospitalet de Llobregat, España: <https://www.genebre.es/download/file/ZG9jdW1lbnRvcy9maWNoYXNmNTgwM210LnBkZg==>.

[GENIE2K, 2018] Mirion Technologies. (2020). Genie™ 2000. Gamma Analysis Software. Mirion Technologies. California, EE.UU: https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/spec-sheets/c47691_genie-2000_gamma_analysis_software_spec_sheet_1.pdf?1557861084

[IAEA, 2020] IAEA. (2020). Live Chart of Nuclides. IAEA. Viena. Austria: <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>.

[ISO 11929, 2010] International Standards Organization. (2010). Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation Fundamentals and application.

[Kottek et al., 2006] Kottek, M., Grieser, J., Beck, C., Rudolf, B., & Rubel, F. (2006). World map of the Köppen-Geiger climate classification updated. *Meteorologische Zeitschrift*, 15(3), 259-263.

[labSOCS, 2020] Mirion Technologies. (2020). LABSOCS™. Calibration Software. Mirion Technologies. California, EE.UU: https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/application-notes/c39530_isocs_labsocs_app_note_3.pdf?1557944467.

[LB6361, 2010] Grupen, C. (2010). *Introduction to radiation protection: practical knowledge for handling radioactive sources*. Springer science & Business media.

[Lozano et al., 2011] Lozano, R. L., Hernández-Ceballos, M. A., Adame, J. A., Casas-Ruiz, M., Sorribas, M., San Miguel, E. G., & Bolívar, J. P. (2011). Radioactive impact of Fukushima accident on the Iberian Peninsula: evolution and plume previous pathway. *Environment international*, 37(7), 1259-1264.

[Poncela et al, 2004] Poncela, L. Q., Fernández, P. L., Arozamena, J. G., Sainz, C., Fernández, J. A., Mahou, E. S., ... & Cascón, M. C. (2004). Natural gamma radiation map (MARNA) and indoor radon levels in Spain. *Environment International*, 29(8), 1091-1096.

[Masson et al, 2011] Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., ... & Didier, D. (2011). Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environmental Science & Technology*, 45(18), 7670-7677.

[Ministerio de Energía de España, 2020] MINISTERIO PARA LA TRANSICIÓN ECOLÓGICA Y EL RETO DEMOGRÁFICO. (2020). Registros de instalaciones radiactivas. Gobierno de España. Madrid, España: <https://energia.gob.es/nuclear/Instalaciones/Paginas/registros.aspx>.

[Norma UNE, 2003] Normalización Española. (2003). Norma UNE 73340-2: 2003. Procedimiento para la determinación de la radiactividad ambiental. Métodos analíticos. Parte 2: Índice de actividad beta resto en aguas mediante contador proporcional.

[OMS,2008] Organización Mundial de la Salud. (2020). Guías para la calidad del agua potable[recurso electrónico]: incluye el apéndice. Vol.1: Recomendaciones. Tercera edición. Organización Mundial de la Salud. Ginebra, Suiza: https://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/gdwq3_es_full_lowres.pdf

[Osprey, 2020] Mirion Technologies. (2020).Osprey®. Universal Digital MCA Tube Base for Scintillation Spectrometry. Mirion Technologies. California, EE.UU: https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/spec-sheets/c48365_osprey_spec_sheet_update_2.pdf?1557861283

[PENCA, 2009] Ministerio del Interior. (2009). Boe Núm. 271, Martes 10 de Noviembre de 2009. Sec I, páginas 94098 a 94156. Gobierno de España. Madrid, España: <https://www.boe.es/boe/dias/2009/11/10/pdfs/BOE-A-2009-17887.pdf>

[Povinec et al.,2013] Povinec, P., Hirose, K., & Aoyama, M. (2013). *Fukushima accident: radioactivity impact on the environment*. Newnes.

[Prieto, 2017] Prieto Butillé, E. *Adecuación y desarrollo de métodos de análisis de datos obtenidos mediante espectrometría gamma para la medida de la radiactividad ambiental en tiempo real* (Doctoral dissertation, Universitat Rovira i Virgili).

[Protección Civil, 2013] Protección Civil. (2017). Comienza el Simulacro Europeo de emergencia nuclear “Curiex 2013” en la central de Almaraz. Gobierno de España. Madrid, España:http://www.proteccioncivil.es/sala-de-prensa/noticias/-/asset_publisher/UP61ywtci2Co/content/comienza-el-simulacro-europeo-de-emergencia-nuclear-curiex-2013-en-la-central-de-almaraz?inheritRedirect=false.

[Quintana et al., 2004] Quintana, B., & Iglesias, J. M. P. (2004). Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma. *Colección Informes Técnicos*, 11.

[R. Tykva et al, 1995] Tykva, R., & Sabol, J. (1995). *Low-level environmental radioactivity: sources and evaluation*. CRC Press.

[RADECO, 2019] Radeco. (2020). CP-100 and BG-300 Radioiodine Samplers. Radeco. Painfield, EE.UU.: <https://radecoinc.com/product-details/cp-100-and-bg-300-radioiodine-samplers/>.

[Protección Civil_RAR, 2020] Protección Civil. (2020) Red de Alerta a la Radiactividad. Gobierno de España. Madrid, España: <http://www.proteccioncivil.es/que-hacemos/rar/presentacion>.

[Real Decreto 1546/2004, 2004] Decree, R. (2004). Real Decreto 1546/2004, de 25 de junio por el que se aprueba el Plan Básico de Emergencia Nuclear.

[Real Decreto 783/2001, 2001] Decree, R. (2001). Real Decreto 783/2001, de 6 de julio por el que se aprueba el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes.

[Rodríguez, 2017] Rodríguez Perulero, A. (2017). Estudio de la dinámica de la radiactividad atmosférica en Cáceres.

[Saad A F, 2008] Saad, A. F. (2008). Radium activity and radon exhalation rates from phosphate ores using CR-39 on-line with an electronic radon gas analyzer “Alpha GUARD”. *Radiation measurements*, 43, S463-S466.

[SIEMENS, 2013] SIEMENS AG. (2013). SITRANS F. Caudalímetros electromagnéticos SITRANS F M MAG 5000/6000. SIEMENS. Berlín, Alemania: https://cache.industry.siemens.com/dl/files/888/85671888/att_40422/v1/MAG_5000-6000_ES_es-ES.pdf.

[SIEMENS, 2018] SIEMENS AG. (2018). SITRANS F M Flow sensor MAG 5100 W. SIEMENS. Berlín, Alemania: <https://new.siemens.com/us/en/products/automation/process-instrumentation/flow-measurement/electromagnetic/sitrans-f-m-mag-5100-w-for-water-applications.html>

[Spectrotracer, 2020] bertin INSTRUMENTS. (2020). SPECTROTRACER. Spectroscopic measuring probe. bertin INSTRUMENTS. Rockville, EE.UU: file:///C:/Users/J_Manuel/Downloads/Brochure_SpectroTRACER_web-1.pdf.

[Steinhauser et al., 2014] Steinhauser, G., Brandl, A., & Johnson, T. E. (2014). Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts. *Science of the Total Environment*, 470, 800-817.

[UNSCEAR, 2000] United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. (1994). *Sources and effects of ionizing radiation: united nations scientific committee on the effects of atomic radiation: UNSCEAR 1994 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes* (Vol. 49). United Nations Publications.

[Vaisala, 2020] VAISALA. (2012). Vaisala Weather Transmitter WXT520. VAISALA. Helsinki,Finlandia: <https://www.vaisala.com/sites/default/files/documents/M210906EN-C.pdf>

[Van Loef, 2002] Van Loef, E. V. D., Dorenbos, P., Van Eijk, C. W. E., Krämer, K. W., & Güdel, H. U. (2002). Scintillation properties of LaBr₃: Ce³⁺ crystals: fast, efficient and high-energy-resolution scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 486(1-2), 254-258.

6.- Publicaciones de la Tesis Doctoral

Artículo 1: Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. A., Valencia, D., Vasco, J., & Gil, J. M. (2016). Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013. *Journal of Radiological Protection*, 36(3), 616.
<http://doi:10.1088/0952-4746/36/3/616>.

Artículo 2: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Ontalba-Salamanca, M. Á., & Vasco, J. (2014). Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 87, 57-60.
<http://doi:10.1016/j.apradiso.2013.11.095>.

Artículo 3: Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. A., Vasco, J., & Valencia, D. (2017). Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 37(3), 642.
<http://doi:10.1088/1361-6498/aa758c>.

Artículo 4: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Salamanca, M. Á. O., & Vasco, J. (2014). Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 34(2), 313.
<http://doi:10.1088/0952-4746/34/2/313>

Artículo 5: Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. A., Ontalba, M. A., & Vasco, J. (2020). Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels. *Radiation Measurements*, 106324. *Artículo en prensa*.
<https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106324>

Artículo 6: A. Baeza, J.M. Caballero, M.Á. Ontalba, J.Á. Corbacho, D. Valencia and J.Vasco, Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) at 2020: 30 years of development and current performance of on-real time monitoring. *Artículo enviado para su publicación.*

Artículo 1

Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013.

Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013

A Baeza¹, J A Corbacho¹, J M Caballero¹, M A Ontalba¹,
D Valencia¹, J Vasco¹ and J M Gil²

¹ Faculty of Veterinary Sciences, Environmental Radioactivity Laboratory, University of Extremadura, 10003 Cáceres, Spain

² Consejería de Medio Ambiente y Rural, Políticas Agrarias y Territorio, Junta de Extremadura, Mérida, Spain

E-mail: corbamer@unex.es

Received 28 December 2015, revised 13 June 2016

Accepted for publication 8 July 2016

Published 3 August 2016



CrossMark

Abstract

In late 2013 (5th–7th of November), the Cáceres Urgent Response International Exercise (CURIEX 2013) took place to test the Nuclear Emergency Plan of Cáceres (PENCA) with the collaboration of both national and international support teams. The theme of the exercise was the simulation of a nuclear accident at the Almaraz Nuclear Power Plant located in Extremadura (Spain) with release of radioactive plume. From the point of view of radioactive contamination, the CURIEX exercise objective was to assess the capability of the different radiological teams to quantify the radioactive impact that would occur in this environment, a goal in which the Radiological Emergency Network of Extremadura (RARE) is directly implicated.

The present paper analyses in detail the environmental radiological and dosimetric results obtained by the Radiological Emergency Network of Extremadura during the CURIEX exercise. The rapid radioactivity measurement techniques on air and soil samples performed by the RARE's mobile lab involves great uncertainties. However, the results show a relative good effectiveness both in dose rate car-borne measurements and gamma soil spectrometry with uncertainties over 40%. It also shows a good correlation between the dose rate values measured by car-borne apparatus and those calculated from gamma spectrometry measurements. The capability of the RARE's facilities are evaluated in both the measurements, showing

whether or not there is a radiological problem, and the transmission of that data to the decision centres in the shortest time. Although the results were highly satisfactory, some shortcomings were detected and therefore some improvements are proposed in the paper, in order to achieve a greater capacity in response to an event with the characteristics simulated in the CURIEX exercise.

Keywords: real time measurements, radiation environmental characterization, decision making, nuclear accident exercise response

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Since the mid-twentieth century, nuclear weapons tests, nuclear power plant or nuclear reactor accidents, and other radiological events, have released radioactive material into the environment [1, 2]. For this reason, early warning radiological networks and mobile detection systems have been developed in order to monitor the environment surrounding nuclear facilities during their normal operation, but also during and after a potential nuclear accident. In 2013, at the request of the European Union, the Cáceres Urgent Response International Exercise (CURIEX 2013) was held in Extremadura (SW, Spain). The goal was to perform a general intervention exercise in response to a hypothetical nuclear accident at the Almaraz Nuclear Power Plant (ANPP) [39 807 N; -5697 W], whose description is included in a technical report [3]. In particular, the exercise was mainly promoted in order to: (i) test the resources and capabilities of the Nuclear Emergency Plan of the province of Cáceres [4], (ii) check the coordination among local, regional, national, European, and international notification procedures and the intervention of the staff involved in response to nuclear accidents, and (iii) to determine the degree of fulfilment of the objectives.

According to the Nuclear Emergency Plan of Cáceres (PENCA), the Nuclear Safety Council (CSN) participated as the head of Radiological Group in the national emergency organization response for the exercise. The Radiological Group has to carry out all the tasks for the measurement and radiological control in the area that has been influenced by the accident

Emergency situations demand actions to be decided by the management and coordination organisms in a timely and effective manner to mitigate the consequences. Therefore, proper evaluations have to be performed by the regulatory authority, the CSN. To be able to do that, the CSN establishes what are the facts and draws conclusions using the information provided by the Radiological Group. The radiological data are not only registered and reported by the automatic warning networks that are routinely working in the environment surrounding the nuclear installation, but also by equipment that can be moved to the affected area. In particular, nowadays mobile laboratories play a key role. Indeed, if some of the radiological network stations are out of service or there is a non-monitored area, the mobile laboratories are able to travel around the affected area taking essential measurements where and when they are needed.

The Laboratory of Environmental Radioactivity of the University of Extremadura (LARUEX) is responsible for the management and maintenance of the RARE, a network of stations capable of acquiring reliable, near real time, information about the environment's radiological status in the vicinity of the ANPP. The RARE includes 12 permanent stations in

Extremadura: 10 monitoring atmospheric stations (seven stations around the ANPP and three stations in further away places), and two monitoring water stations, along with one mobile laboratory (LML).

According to the PENCA and CURIEX requirements, all of the data registered by RARE's facilities had to be transmitted to the RARE's headquarter and retransmitted simultaneously and in real time to CSN Emergency Room (SALEM), Operational Coordination Center (CECOP), regional government headquarters, and 112 emergency control posts.

This paper presents the results obtained by the RARE and the lessons learnt from its radiological measurements performed during the CURIEX exercise.

2. Material and methods

2.1. RARE's monitoring stations

The network's design is based on the principles of reliability (in order to allow the gathering of data even under adverse operating conditions) and versatility (to facilitate the substitution of components and the implementation of future stations). There are seven air monitoring stations situated around the ANPP (figure 1). Each atmospheric monitoring station includes two coupled Geiger–Muller probes, one for low-dose rates and the other for high-dose rates, thus covering a broad gamma radiation dosimetric range from 10 nSv h⁻¹ to 10 Sv h⁻¹ and energies from 0.045 to 2.0 MeV (manufacturers specifications, [5]). Also, in two of those stations, there is airborne-particulate monitoring equipment, that provides radioactivity contents through overall activity determinations (α , β , radon and ¹³¹I) and the use of gamma spectrometry (wide range of radionuclides) [6]. Additionally, in another two stations, situated by the river Tagus, there is water gamma-monitoring equipment [7]. All the network stations also register and report values of non-radiological parameters (meteorological and operational data).

For data acquisition and communication management, each station has a computer, a radio-frequency broadcasting station, and internet connection. To ensure maximum reliability of the network even under extreme conditions such as the interruption of the main electrical power supply, each station operates its own 1000 VA uninterrupted power supply (UPS) which delivers a 24 h autonomy. There are also high-voltage suppressing filters installed at the inputs of the UPS to avoid voltage peaks that could damage the equipment. Due to the distance—more than 70 km—between stations in the surroundings of the ANPP and the RARE headquarters located in Cáceres, the network incorporates a radio frequency repeater situated at 840 m above sea level.

2.2. The LARUEX mobile laboratory (LML)

In a previous study [8], the LML capabilities were extensively detailed. In a mobile laboratory, it is essential to achieve the greatest possible electrical autonomy and to ensure that the power supply to all the devices and detectors is uninterruptible. For that purpose, the LML's power supply is provided by a 4 kVA gasoline generator with an autonomy of about 8–10 h. But also, as a secondary supply, there is a 12 V, 72 Ah battery, with a minimum autonomy of about 3–4 h. This battery can be charged from the vehicle's engine whenever the vehicle's battery is fully charged.

For the radioactive and dosimetric characterization, the LML has been equipped with the following detection systems: (i) Two dose rate monitors, model FHZ600A from the FAG Company. The first one is located over the vehicle's right front wheel and is used to provide

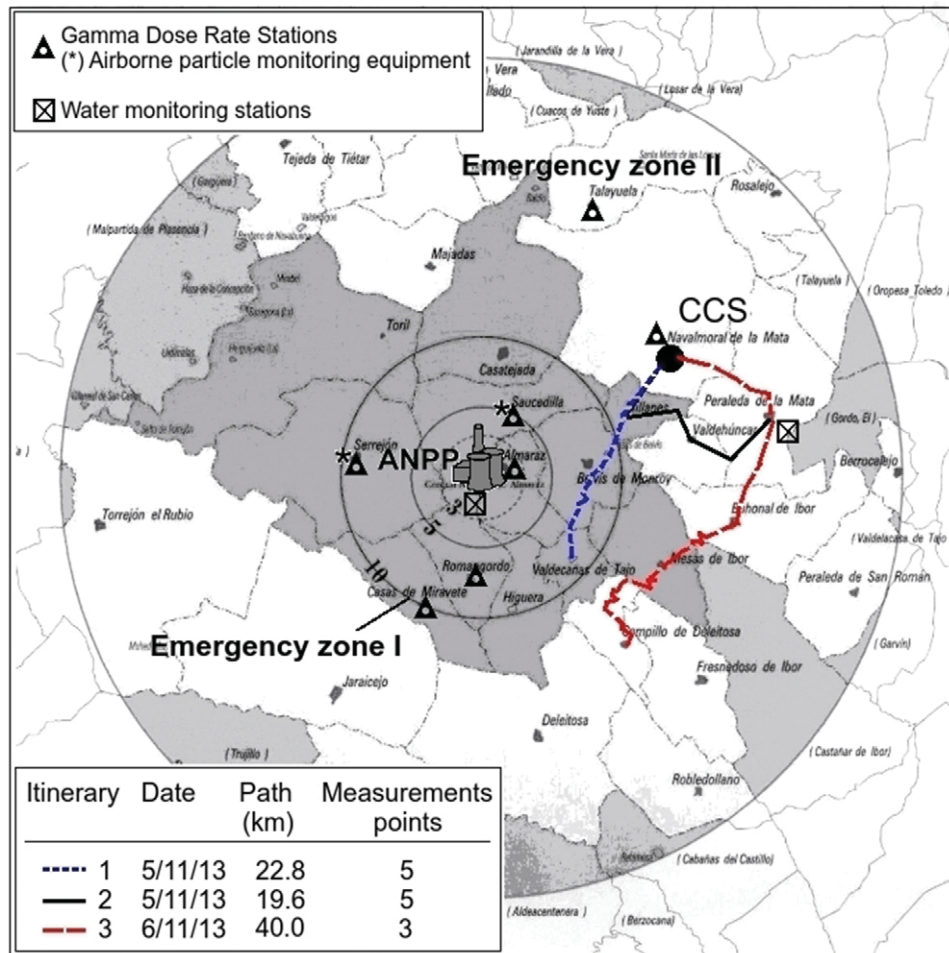


Figure 1. Map of RARE’s ground stations working around the ANPP and the three itineraries followed by the LML during the CURIEX exercise.

georeferenced dose rates in motion. The second monitor can be placed on its tripod to measure dose rates from areas inaccessible to the van. Each monitor is a 54.2 cm³ pressurized proportional counter and was designed to measure dose rate in the range of 0.005 μSv h⁻¹–1 mSv h⁻¹ [9]. The monitors have been calibrated through the free field technique, using ⁶⁰Co and ¹³⁷Cs sources of certified activities [10]. A series of dose rate measurements was made at several locations in Spain (altitudes in the range of 300–2500 m above sea level) in order to calibrate the cosmic component for the monitor [11]. (ii) A high-resolution gamma spectrometry system based on a portable coaxial p-type HpGe detector with a relative efficiency of 43.1%. This detector can be used for the *in situ* gamma spectrometry of soils; for that, the detector is placed facing downwards on its tripod 1m above the ground. Nevertheless the HPGe detector can also be used for gamma spectrometry of aerosol filters and soil samples, both encapsulated in petri dishes within the low-background iron shielding that is placed inside the LML. The detector efficiency has been determined for both geometries using a certified mixed gamma standard, in the energy range 60–1900 keV. (iii) A 2"×2" NaI(Tl) detector with a resolution of 6.6% for the 661.7 keV of ¹³⁷Cs photopeak. This detector is installed over the vehicle’s right front

wheel and is used for the detection of local anomalies, working for very short measurement time intervals (5–30 s). It allows georeferenced gamma spectra measurement when the vehicle is in motion.

The radiological information is supplemented with data provided by the LML's meteorological station, which is installed on a telescopic mast that can be raised above the vehicle's roof. Furthermore, the LML has an aerosol particulate collecting system and a gaseous iodine monitor. Two GPS devices, one of them with a sub-metric level of precision, are installed in the vehicle to provide the LML's geographical position, altitude above sea level, and speed.

All the information provided by the LML is handled by the specific computer code MobileLAB developed by our laboratory [8]. This code also manages the communication systems, based on GSM or satellite connections, automatically.

The LML is always operated by two analysts, one of them exclusively in charge of driving the vehicle and the other one monitoring the communication and measurement systems, which work automatically.

2.3. The CURIEX exercise

2.3.1. Function of RARE's ground stations. During the exercise, the ground station's essential function was to register radiological and non-radiological parameters and, in real-time, to transmit to the RARE's headquarters and, simultaneously, to retransmit to the local and national competent bodies, CSN headquarters among others. The aim was to check the data transmission effectiveness when all the stations are routinely working.

2.3.2. Functions of RARE's LML. The main task of the mobile laboratories which took part in the exercise was the radiological surveillance of different areas in the Emergency Zones I (within a 10 km radius around ANPP) and II (10–30 km radius) that are established in the PENCA. The routes were assigned to each mobile laboratory by the Radiological Group, through its liaison officer in the Contamination Control Station (CCS). This station was located in Emergency Zone II, specifically, in Navalmoral de la Mata (figure 1).

The LML followed four routes during the CURIEX exercise. The characteristics of three of them are plotted and detailed in figure 1. These were carried out in the first 48 h after the nuclear accident. The aim of Route 4 was to monitor environmental radioactivity 60 d after the accident and outside the emergency zones. It was carried out at a distance of 160 km from ANPP. On each route specified, the management of the Radiological group proposed ambient dose rate measures in motion along the whole route, but also some locations to measure ^{131}I concentration in air along with the surface gamma concentration on soil. At each point an airborne particle filter sample and a soil sample were taken.

Ambient dose rate measurements were made using the vehicle's monitor, obviously, in non-fixed positions. The measurement time selected for dose rate acquisition was set to 30 s, a compromise between acceptable spatial resolution and measurement uncertainty. Thus, the relative uncertainty in dose rate measurements was less than 6% [8]. Since the vehicle was in motion during the measurements, the speed of the vehicle was limited to the range 20–50 km h⁻¹,

For the determination of ^{131}I concentration in air, aerosol particles were sampled on 47 mm diameter nitrocellulose filters for 10 min using the high-volume air sampler incorporated in the LML, yielding a volume in the range range of 717–789 l. In the case of soils, for the measurement of surface contamination, a sampling template was employed (5 cm depth and

an area of 0.062 m^2). Each sample was sifted using a sieve of a mesh size of 0.5 mm , roughly homogenized and encapsulated in a capsule of a volume of 191 cm^3 . Both kinds of sample, aerosol and soil, were analysed for 10 min using the portable HPGe detector placed inside the low background iron shield existing in the LML. The activity, uncertainty, and minimum detectable activity (MDA) were calculated following the ISO standard 11929 [12].

Obviously, the final task was to test the effectiveness of LML's facilities when transmitting real-time data to RARE's headquarter and then forwarded to the aforementioned coordination centres for evaluation.

3. Results and discussion

3.1. Effectiveness

3.1.1. RARE's ground station network. In the RARE headquarters in Cáceres all the data was received through radiofrequency or internet at intervals of 180 s. From each ground station, an average of 981 data transmissions was made during the approximately 2 d that the exercise lasted. A total amount of 11 772 data transmissions were made, including data from three RARE ground stations located outside the ANPP surroundings. A total number of 276 communication errors were detected, which add up to 2.3% of the total data expected to arrive at RARE headquarters. Thus, the global effectiveness of the RARE stations was 97.7%. The communication errors were due the presence of random noise inside the communication channel. Therefore, the RF communications between the ground stations and the RARE headquarters are protected against common types of errors on communication channels by cyclic redundancy check—an error-detecting code commonly used in digital networks.

3.1.2. Mobile lab. Table 1 presents the statistical summary of the data and the analysis made in each of the routes assigned during the CURIEX exercise, along with the time dedicated to communications, and the number of files and documents generated and sent as a consequence of the objectives established for each route. From the results, we would emphasize the fact that the LML registered a total of 2875 dose-rate georeferenced data by external irradiation, 2817 of which were sent to the RARE node in Cáceres, from where they were forwarded along with data received from RARE's ground stations to each of the aforementioned decision-making centres for their evaluation. A total of 58 dose-rate georeferenced data were acquired by the LML but they were not sent to HQ due to communication failures, as reported in table 1.

Taking into account the results, one can state that the LML had an effectiveness of 100% in measurements and analysis, for ambient dose rate and air and soil samples. However, the overall effectiveness of LML transmissions (files, reports, dose rate measurements...) during the CURIEX exercise was greater than 98%.

3.2. Capabilities

3.2.1. RARE's ground stations. Table 2 shows the statistical information about the ambient dose rate registered in the ANPP surrounding stations during the de CURIEX exercise. The results show a high temporal stability in ambient dose rate measured by the ground stations. In fact, the standard deviations and the range values are lower than the instrumental uncertainty that is of the order 15% [5]. In addition, the ambient dose rate averages are comparable in all the ground stations situated around the ANPP. In order to illustrate that fact, figure 2 shows ambient dose rates registered during the exercise in three stations (Almaraz, Casas de Miravete and Romangordo), although the LML's data are also included as discussed in the next section.

Table 1. Statistical information about the LML operation during the CURIEX exercise.

	Route 1	Route 2	Route 3	Route 4	(1)	Total
Number of <i>in situ</i> gamma spectrometry performed	10	10	10	1	0	31
Number of airborne particle gamma spectrometry performed	5	5	3	0	—	13
Number of soil contamination gamma spectrometry performed	5	5	3	0	—	13
Number of surface water gamma spectrometry performed	0	0	0	1	—	1
Number of airborne particle samples collected	5	5	3	0	—	13
Number of soil samples collected	5	5	3	0	—	13
Total data standard frames recorded in the mobile laboratory	651	830	569	—	823	2875
Total data standard frames received in the headquarter	651	794	549	—	823	2817
Erroneous or not received data frames	0	36	20	—	2	58
Duration of the GSM communication (min)	213	268	1.3	—	188	851
Number of interruptions in communications managed automatically by MobileLab of the total of interruptions						42
Total duration of the interruption of communications with the headquarter (min)						34
Percentage of data frames sent over the total of frames recorded in the mobile laboratory	100	95.7	96.5	—	99.8	97.98
Number of document, files and reports generated in LML and sent to the headquarter	30	30	18	3	—	81
Kilometers of roads analyzed	19.6	22.8	37.8	—	—	80.2

Note: (1) Data recorded outside of the routes assigned by the CSN.

3.2.2. RARE's mobile lab.

Dose rate values. Previously to the CURIEX exercise, the LML dose rate measurements in motion were tested in order to assess the reliability of the measures. For that, a 50 km route with significant variation of ambient dose rate was selected. Then, two sets of measurements were made along that route. Firstly, 30 s was chosen as acquisition time and georeferenced data were recorded in motion, while the vehicle was travelling at 20–50 km h⁻¹, and, secondly, point-by-point ambient dose rate values were registered at vehicle stopping distances of 300–500 m. In this case, a 180 s acquisition time was selected to ensure low uncertainties. As shown in figure 3, there is a high correlation between dose rate registered in motion and point by point. Therefore, it is possible to conclude that the car-borne dose rate measurements in motion at 20–50 km h⁻¹ and 30 s of measurement time are suitable to evaluate the ambient dose rate in case of an emergency situation.

The statistical information of the georeferenced ambient dose rate data registered by the LML in motion for each itinerary is also included in table 2. Moreover, figure 2 shows the results. As can be seen, these values in air are comparable to the ambient dose rate registered by each RARE ground station, but it must be taken into account that the georeferenced ambient dose rate values were measured by the LML in different locations during its journeys.

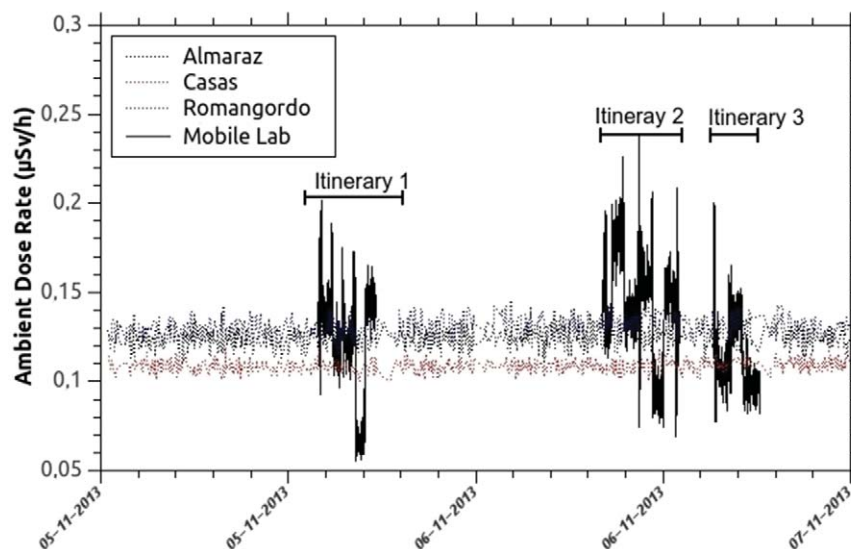


Figure 2. Ambient dose rates registered by three ground stations (Almaraz, Casas and Romangordo) and by the LML during the CURIEX exercise.

The dose rate variation observed along each itinerary is due to the different contributions of the source. For example, sometimes, when the dose rate measurement was performed near a terrain slope the dose rate value increased and, in other situations, the dose rate values decreased when they were performed on an asphalt surface, since it produced significant attenuation of the photon flux coming from the soil.

Radionuclide concentration in air and soil samples. In the case of the air samples, the higher value of the MDA obtained for the different man-made radionuclides, for the measurement times and the collected volumes, were ^{131}I : 2.7 Bq m^{-3} ; ^{60}Co : 3.9 Bq m^{-3} , ^{134}Cs : 3.4 Bq m^{-3} and ^{137}Cs : 3.3 Bq m^{-3} . The MDA value is $3 \cdot 10^5$ times lower than the concentration value of ^{131}I in air that will produce an effective inhalation dose (on an adult with a breathing rate of $16 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$ [13] of 100 mSv in 24h [14]), which would require iodine prophylaxis for the population and emergency actuators.

Regarding soil, the naturally occurring radionuclides activities of ^{40}K , ^{226}Ra (from ^{214}Pb and ^{214}Bi) and ^{232}Th (from ^{228}Ac) and the man-made radionuclides MDA of ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{60}Co were determined. The correspondence between the ambient dose rate obtained from the naturally occurring radionuclides measured in soils and the ambient dose rate measured with the FAG dose rate monitor located over the vehicle's right front wheel was investigated. To calculate the absorbed dose in air rate derived from naturally occurring radionuclides in soil, the dose conversion factors provided by [15] was used. The cosmic contribution to the effective dose rate was obtained from the expression provided by [16]. The conversion factor of 0.7 Sv Gy^{-1} [17] was applied to obtain effective dose rate from absorbed dose rate. Finally, the conversion factor 0.87 Sv Sv^{-1} [18] was used to obtain ambient dose rate from effective dose rate. Table 3 shows the ^{40}K , ^{226}Ra and ^{232}Th activities and the corresponding MDA, but also the calculated ambient dose rate and the experimental ambient dose rate (using FAG monitor).

Firstly, it must be pointed out that the uncertainties associated with naturally occurring radionuclide concentrations are high. In fact, for some soil samples, the uncertainties of ^{228}Ac activities are in the order of 40% and for other soil samples the ^{228}Ac activity is lower than

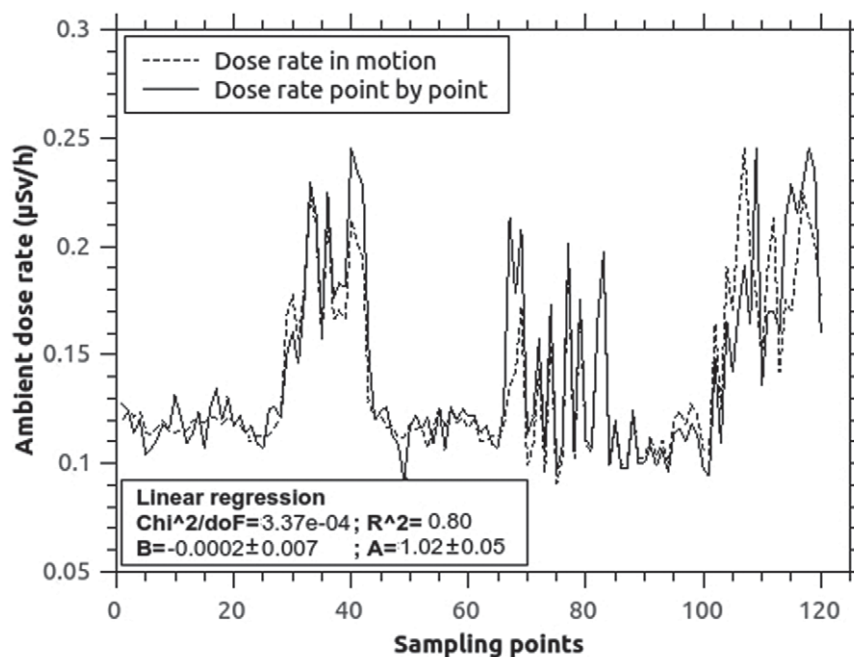


Figure 3. Comparison of the ambient dose rate measured by the LML's monitor in motion and point by point. The linear regression of the two sets of data is included in the figure.

Table 2. Statistical information about the ambient dose rate registered in the ANPP surrounding stations and the LML during de CURIEX exercise.

	Average ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)	SD ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)	Range ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)	Median ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)
Almaraz	0.130	0.006	0.116–0.146	0.130
Casas de Miravete	0.109	0.003	0.100–0.119	0.108
Navalmoral de la Mata	0.114	0.004	0.105–0.126	0.114
Romangordo	0.125	0.005	0.109–0.141	0.125
Saucedilla	0.121	0.004	0.109–0.135	0.121
Serrejón	0.100	0.005	0.087–0.114	0.100
Talayuela	0.120	0.005	0.105–0.136	0.120
LML Itinerary 1	0.124	0.030	0.055–0.201	0.130
LML Itinerary 2	0.143	0.029	0.069–0.239	0.144
LML Itinerary 3	0.112	0.020	0.077–0.200	0.106

the MDA value. These high uncertainties are mainly due to the low measurement time (~ 600 s) for the soil samples, as is required in an emergency situation. Secondly, due to these high uncertainties, the uncertainty values associated to absorbed dose in air and ambient dose rate obtained from the naturally occurring radionuclides concentrations are also high. The ratio between the ambient dose rate obtained from the concentration of naturally occurring radionuclides and the ambient dose rate directly measured by a dose rate monitor shows an acceptable correspondence (around 1). It indicates that the soil samples analysed in the required time were suitable to represent the sampling site from the radiological point of view.

Table 3. Naturally occurring radionuclides activities and MDA of ⁴⁰K, ²²⁶Ra (from ²¹⁴Pb and ²¹⁴Bi) and ²³²Th for soil samples collected and analysed during the three itineraries followed by the LML.

Sampling site	⁴⁰ K (Bq kg ⁻¹)		²²⁶ Ra (Bq kg ⁻¹)		²³² Th (Bq kg ⁻¹)		Terrestrial ADA ± ε (nGy h ⁻¹)	Calculated total H ₁₀ ± ε (nSv h ⁻¹)	Experimental H ₁₀ ± 2SD (nSv h ⁻¹)	Ratio ± ε
	Act. ± Uncert.	MDA	Act. ± Uncert.	MDA	Act. ± Uncert.	MDA				
Itinerary1.1	1100 ± 300	511	150 ± 40	83	<207	207	170 ± 40	180 ± 40	140 ± 8	1.3 ± 0.2
Itinerary1.2	1100 ± 300	426	50 ± 20	50	<151	151	160 ± 90	180 ± 100	120 ± 6	1.5 ± 0.6
Itinerary1.3	1020 ± 210	362	50 ± 18	49	<125	125	140 ± 80	160 ± 90	119 ± 6	1.3 ± 0.6
Itinerary1.4	600 ± 200	273	30 ± 15	37	63 ± 24	79	80 ± 30	110 ± 50	70 ± 4	1.5 ± 0.4
Itinerary1.5	710 ± 180	387	<67,5	67,5	<14	14	70 ± 40	100 ± 50	150 ± 4	0.7 ± 0.5
Itinerary2.1	1300 ± 300	352	40 ± 20	55	90 ± 30	1.3	130 ± 50	150 ± 60	180 ± 10	0.8 ± 0.4
Itinerary2.2	800 ± 200	425	130 ± 40	54	<168	168	110 ± 30	130 ± 40	135 ± 8	1.0 ± 0.3
Itinerary2.3	1400 ± 300	389	40 ± 20	42	<170	170	180 ± 100	190 ± 110	157 ± 8	1.2 ± 0.6
Itinerary2.4	610 ± 170	316	<65	65	<141	141	140 ± 80	160 ± 100	1.3 ± 6	1.5 ± 0.6
Itinerary2.5	990 ± 220	345	40 ± 20	53	<156	156	150 ± 90	170 ± 100	148 ± 8	1.1 ± 0.6
Itinerary3.1	580 ± 160	307	30 ± 14	36	70 ± 20	65	80 ± 30	110 ± 40	109 ± 6	1.0 ± 0.4
Itinerary3.2	840 ± 210	378	50 ± 20	54	<156	156	150 ± 90	170 ± 110	137 ± 8	1.2 ± 0.6
Itinerary3.3	800 ± 300	435	30 ± 12	47	64 ± 24	140	90 ± 50	120 ± 70	101 ± 3	1.2 ± 0.6

Note: The ambient dose rate calculated from the radionuclides activities and the experimental ambient dose rate (using FAG monitor) and the corresponding ratio are also shown.

In the case of man-made radionuclides, the range of MDA values obtained in all the soil samples measured for the main radioactive isotopes released in the simulated nuclear accident were: ^{131}I [260–490] Bq m^{-2} ; ^{134}Cs [260–490] Bq m^{-2} ; ^{137}Cs [310–500] Bq m^{-2} and ^{60}Co [320–560] Bq m^{-2} . These values involve a contribution to the total absorbed dose rate due to the radioactive surface concentration in soils of about 5.7 nGy h^{-1} for ^{60}Co and less than 1.3 nGy h^{-1} for the rest of the radionuclides, equivalent to 5%–10% of the absorbed dose in air due to naturally occurring radionuclides present in soils. The conversion factors for surface concentration activity to absorbed dose rate used in these calculations were taken from [17].

4. Observations and improvement possibilities

As has been shown in the previous sections, both the RARE ground stations and the LML had highly satisfactory behaviour in their participation in the CURIEX exercise, due mainly to the large quantity of radiological measurements performed and transmitted. However, the following problems were detected and they must be critically examined in order to improve the RARE and the LML working for a proper operation during a real nuclear accident.

- *Electrical power autonomy of the RARE ground stations.* As indicated above, all of the stations incorporate a UPS system that provides 24 h of power autonomy. In the scenario proposed by the CURIEX exercise, six out of nine RARE air and water monitoring stations in the surroundings of the ANPP had turned off after 24 h of total electric power loss in the area. As a result, it would have been impossible for them to acquire and transmit any data. According to the PENCA, 48–72 h is time enough to provide the first operational response and, in the case of radiological contamination, to promote the evacuation of the affected area by the competent authorities. The solution to this problem consisted first in an evaluation of the power consumed by each station, and second, for those with higher consumption, acquiring a portable generator for fast installation in the stations where it is necessary. In the stations with lower power consumption, the capacity of the UPS batteries must be upgraded to achieve at least 48 h of autonomy.
- *Radiological data transmission to the decision-making organization.* The data management and the data transmission to the headquarters play a key role in an emergency situation. Thus, although it is not directly inferred from the present exercise, enhancements of the communications data system infrastructure have been implemented. All of the data received at the RARE headquarters in Cáceres, both from the fixed stations and the LML, were forwarded to the different coordination bodies via connections using common network protocols, mainly using remote machine connections (Virtual Network Communications) and third party software with cycle of data interchange every 10 min. Even though this method is effective for the purposes of an emergency, a direct connection to the databases was developed along with access to the use of a webpage, where all the information received by RARE is stored. This system comprises two servers located at RARE headquarters. In this way, any device using typical network connections can access the data delivered by RARE in real time.
- *Simultaneous acquisition and analysis of the gaseous and particulate fractions of ^{131}I samples.* During the CURIEX exercise only the ^{131}I particulate aerosol fraction was determined. However, as indicated in a previous work by ourselves [19] and by [20], it is important to determine both the gaseous and particulate fraction of iodine radionuclides in air after a nuclear accident. In the LML, it is possible to simultaneously collect samples of both gaseous and particulate fractions by using EDTA carbon activated cartridges and nitrocellulose of $8 \mu\text{m}$ pore size respectively. Simultaneous sampling involves a reduction

of the aspiration flow, in such a way that to obtain a total volume of about 720 l it is necessary to double the sampling time (20 min). Additionally, the two samples cannot be simultaneously measured with the portable HPGe detector, which again implies doubling the measurement time. As a solution, on the LML a cylindrical lead shield (dimensions: ϕ exterior = 12.6 cm; ϕ interior = 6.4 cm; mass = 22 kg) was installed to be used in the measurement of carbon cartridges using the NaI scintillation spectrometer. The obtained values of gaseous ^{131}I MDA for the 364 keV energy line are less than 5 Bq m^{-3} for a 720 l volume sample and 600 s measurement time.

- *Accuracy, precision and MDA improvement for soil radionuclide concentration measurement.* As shown in a previous section, the uncertainties of the radionuclides activities are in the range of 30–40%. On the other hand, man-made radionuclides MDA concentrations are high. In fact, ^{137}Cs MDA values obtained are of the order of the concentrations in soils due to global fallout in the exercise area. Nevertheless, the results can be improved increasing the measurement time or by using *in situ* gamma spectrometry on the base of the portable HPGe [21] mounted on its tripod. Unfortunately, if this technique is carried out, the time it will take for the LML analysts to prepare the detector, to measure the sample and to process the result is much higher (≥ 30 min) than the response time established by the chief of the radiological group during the CURIEX exercise (10 min).

5. Conclusions

Participating in the CURIEX nuclear emergency exercise allowed us to test the systems effectiveness and capabilities of both our RARE ground stations in the vicinity of the ANPP and our mobile lab (LML). During the CURIEX exercise, the RARE's Mobile Laboratory (LML) transmitted close to 3000 gamma dose rate values, all of them georeferenced in real time, to the RARE headquarters using GSM or satellite connections. Out of all of the data registered and sent by the LML, 98% arrived at the RARE headquarters and was simultaneously forwarded to seven local and national emergency response team headquarters. In addition, 31 *in situ* gamma spectrometry measurements were taken by LML's HPGe detector during the exercise and their results were then immediately sent to RARE headquarters. The high correlation between the short measurement *in situ* soil gamma analysis and the effective dose rate measurements shows a good measurement capability of the LML. The values of minimum detection activity both in air samples and soil samples are appropriate to the request of the head of the radiological group during the exercise.

Furthermore, the effectiveness of RARE's atmospheric and water ground stations was tested: about 97.7% of the radiological and non-radiological parameters registered by the stations was transmitted to the RARE headquarters and simultaneously retransmitted to the responsible authorities.

Acknowledgments

This work was made possible thanks, firstly, to funding from Spains Nuclear Safety Council and the Government of Extremadura, through the Collaboration Agreement for the Operation, Management, and Access to Data of the Automatic Environmental Radiation Monitoring Stations, and, secondly, to funding received by the LARUEX (FQM001) research group from the Government of Extremadura in its IV Regional R&D + i Plan, DOE No 250 of 30.12.2010.

References

- [1] UNSCEAR 1993 Sources and effects of ionizing radiation United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation *Technical Report* (New York: United Nations)
- [2] UNSCEAR 2013 Effects of ionizing radiation *UNSCEAR 2013 Report to the General Assembly, with Scientific Annex A: Levels and Effects of Radiation Exposure Due to the Nuclear Accident After the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami* vol II (New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation)
- [3] del Campo D, Lorente N and Serrano J 2013 Estimación de las medidas de las redes de alerta a la radiactividad en el entorno de C.N. Almaraz (RAR y RARE) y de las unidades móviles desplazadas a la zona durante la realización del ejercicio CURIEX 2013 (In spanish) *Technical Report CSN/TGE/AEIR/13/2321* www.curiex.es/en/home (For english readers) (Geneva: International Organization for Standardization)
- [4] PENCA 2009 Resolución de 20 de octubre de 2009, de la Subsecretaría, por la que se publica el Acuerdo de Consejo de Ministros de 16 de octubre de 2009, por el que se aprueba el Plan Director correspondiente al Plan de Emergencia Nuclear Exterior a la Central Nuclear de Almaraz, Cáceres (PENCA) (In spanish)
- [5] Saphymo 2009 Genitron Gammatracer www.saphymo.com
- [6] Baeza A, Caballero J, Corbacho J, Ontalba-Salamanca M and Vasco J 2014 *Appl. Radiat. Isot.* **87** 57–60 (*Proc. of the 19th Int. Conf. on Radionuclide Metrology and its Applications (Antwerp, Belgium, 17–21 June 2013)*)
- [7] Baeza A, Caballero J, Corbacho J, Ontalba-Salamanca M and Vasco J 2014 *J. Radiol. Prot.* **34** 313–24
- [8] Baeza A, Corbacho J and Miranda J 2013 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60** 1400–7
- [9] FAG 1987 FHZ600A Environmental Radiation Monitoring System. User manual
- [10] Bøtter-Jensen L 2000 *Radiat. Prot. Dosim.* **92** 109–14
- [11] Corbacho J 2007 Evaluación radiactiva-dosimétrica de suelos mediante técnicas convencionales e *in situ* (In spanish) *PhD Thesis* Universidad de Extremadura
- [12] ISO Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation—fundamentals and application *Technical Report ISO/DIS 11929*
- [13] EPA 2011 Exposure factors handbook assessment *Technical Report* US Environmental Protection Agency
- [14] BOE 2001 Real Decreto 783/2001, de 6 de julio, por el que se aprueba el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes (In spanish)
- [15] Quindos L, Fernandez P, Rodenas C, Gomez-Arozamena J and Arteché J 2004 *J. Environ. Radioact.* **71** 139–45
- [16] Murith C 1987 *Radioprotection* **22** 231–9
- [17] ICRU 1994 *In situ* gamma-ray spectrometry in the environment *Technical Report* (Bethesda, MD: International Commission on Radiation Units & Measurements)
- [18] ICRP 1987 Data for use in protection against external radiation *Technical Report* (Ottawa: International Commission on Radiological Protection)
- [19] Baeza A et al 2012 *J. Environ. Radioact.* **114** 138–45 (environmental impacts of the Fukushima accident (PART II))
- [20] Mietelski J, Kierepko R, Brudecki K, Janowski P, Kleszcz K and Tomankiewicz E 2014 *Atmos. Environ.* **91** 137–45
- [21] Baeza A and Corbacho J 2005 *Radiat. Prot. Dosim.* **113** 90–8

Artículo 2

Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry



Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry



A. Baeza, J.M. Caballero, J.Á. Corbacho, M.Á. Ontalba-Salamanca*, J. Vasco

LARUEX, Department of Applied Physics, University of Extremadura, Avda. Universidad s/n, 10071 Cáceres, Spain

HIGHLIGHTS

- Deficiencies of a commercial air monitoring system are detailed.
- Gamma spectrometry introduction is the basis of the new prototype.
- Efficiency calibration procedure is described for aerosol and gaseous fractions.
- MDA is evaluated for different isotopes and acquisition times.

ARTICLE INFO

Available online 1 December 2013

Keywords:

Radiation surveillance network
Gamma-ray spectrometry
Aerosols
I-131

ABSTRACT

The objective of this work is to present the improvements that have been made in quasi-real-time air radioactivity concentration monitors which were initially based on overall activity determinations, by incorporating gamma spectrometry into the current prototype. To this end it was necessary to develop a careful efficiency calibration procedure for both the particulate and the gaseous fractions of the air being sampled. The work also reports the values of the minimum detectable activity calculated for different isotopes and acquisition times.

© 2013 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The Extremadura Autonomous Community (SW Spain) has an automatic alert system in quasi-real-time denominated RARE. It began operating in 1992 in the vicinity of the Almaraz Nuclear Power Plant (Baeza et al., 1993). Today, it comprises 10 atmospheric and 2 water permanent radiation monitors plus 1 mobile laboratory (Baeza et al., 2013a). Currently, the 10 RARE atmospheric stations are equipped with Geiger–Müller counters which register the environmental gamma dose rates levels. Four of them have a commercial system that provides the radon decay chain activity, the total alpha and total beta activities of artificial emitters and the activity of the gaseous fraction of I-131. Despite their proven capabilities, these systems can today be considered technologically obsolete due to (i) it is impossible to individually identify and quantify the radionuclides in the aerosols; (ii) gaseous I-131 activity is calculated indirectly; (iii) radiological anomalies cannot be isolated for subsequent analysis in a low-activity laboratory; and (iv) the carbon cartridge used for I-131 collection must be changed manually.

In this work therefore, we shall first describe in greater detail the aforementioned analytical and maintenance shortcomings of the commercial systems currently in operation. We shall then give a brief description of the pilot monitoring station that has been

designed, consisting essentially of the replacement of the current detection systems with one based on gamma spectrometry, but also including a number of mechanical modifications and new data acquisition and control software. The changes made to the two analytical modules require the spectrometers to be appropriately efficiency calibrated for the very singular geometry involved in the air measurements. Indeed, the principal objective of the present work is to describe the experimental procedures followed for this calibration and to determine the minimum detectable activity (MDA) values for different anthropogenic radioisotopes that are characteristic of the risk of radioactive contamination. These values allow one to assess the system's capacity to perform analytical radioactive determinations in quasi-real-time.

2. Materials and methods

2.1. The RARE's current atmospheric monitoring stations

Currently, the RARE's aerosol monitoring stations use the BAI-9850-6 (Berthold Technologies, 1997) system. This has two modules to capture and measure atmospheric samples:

2.1.1. Aerosol monitor

A suction pump (flow rate of about $22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$) allows the aerosols to be accumulated on a glass-fibre filter which moves continuously under a double scintillation detector, ZnS(Ag)+plastic, with its electronics. The system provides the total alpha

* Corresponding author. Tel./fax: +34 927257153.

E-mail address: ontalba@unex.es (M.Á. Ontalba-Salamanca).

and beta activities of man-made origin, and the radon activity concentration in the particles retained on the filter. These estimates are made on the basis of a temporal pseudo-coincidence circuit: when an alpha particle and a beta particle are detected simultaneously ($\Delta t < 163 \mu\text{s}$), it discards these counts under the assumption that they come from the decays of the natural Pb-214 and Bi-214 isotopes.

The results do not allow the natural and/or artificial radioisotopes captured on the filter to be individually identified and quantified. Also, examination of the provided values leads one to question the reliability of the pseudo-coincidence circuit's operation. Fig. 1 shows the evolution of the total alpha and beta activities of artificial origin, as well as that of radon, for two of the RARE's stations (Saucedilla and Serrejón) during a single day of measurement.

In the case of the Saucedilla station (Fig. 1a), one can see that, as the radon activity concentration increases notably (in the early hours of the day), there is also an increase in the total alpha and beta activity values. This indicates that the pseudo-coincidence method has not eliminated all of the natural component. One has to note that this result is not proportional to the variations in the radon concentration. In the case of the Serrejón station (Fig. 1b), the temporal evolution of the alpha and beta indices is different. Now it increases with the apparent decrease in the radon concentration, indicating that, for this case, the subtraction of

the natural contribution is too high. To resolve these discrepancies, daily adjustments should be made to the operation of the pseudo-coincidence circuit, as was proposed in an earlier work (Baeza et al., 1997).

2.1.2. Gaseous radioiodine monitor

The air from the continuous filter is passed by an additional pump at a flow rate of from 4 to 6 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$ through a 5% TEDA (thriethylene di-amine) impregnated carbon cartridge which has a high affinity for the retention of the various species of iodine. Facing the cartridge, there is a NaI(Tl) detector coupled to two single-channel analyser circuits centred on the energy of the 364 keV photopeak to estimate indirectly its net peak area and thence its activity. Moreover, other gaseous radionuclides that might also be retained by the carbon cartridge cannot be identified.

2.2. Prototype of RARE's new atmospheric monitoring station

2.2.1. Brief description of the improvements

The essential modification is the substitution of the currently used detection systems by a gamma spectrometry system, for both the particulate and the gaseous fractions, using $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ or NaI(Tl) detectors. Both detectors are $2'' \times 2''$ in size, and are coupled to compact digital multichannel electronics, with the Genie2000 software package (Canberra Industries, 2009) being employed for the activity determinations.

Cartridge replacement has been automated by means of a new device which allows the programmable and remote removal of the measured cartridge, and its replacement with a new cartridge in front of the NaI(Tl) detector (Baeza et al., 2013b). The result is a drastic reduction in the frequency of maintenance tasks. Also, new software has been written for the acquisition control, and interpretation of the activities. This sets up the desired data acquisition logic, and allows the quasi-real-time calculation and reporting of the measured activities. It also determines the activities for cumulative spectra over configurable longer time intervals so that the station can also work as surveillance system determining even slight radiological alterations. For that purpose, it is essential to employ a proper background spectrum for activity calculations. The procedure can be summarized as follows: (i) insertion of a clean target (filter or cartridge); (ii) acquisition of short measurement spectra over that target and determination of the corresponding activities in quasi-real-time, subtracting the background spectrum acquired over the clean target (previous step) for the first spectrum, and storing this spectrum to be used as background for the following spectrum to be acquired, and so on; (iii) evaluation of the activities for the cumulative spectrum using the background acquired on the clean target; (iv) position of a new target and start again.

2.2.2. Efficiency calibration of the new detection systems

2.2.2.1. *Aerosol monitor.* Efficiency calibrations were carried out in order to tune the performance of the gamma spectrometer for the aerosols captured on the continuous filter, and to compare and evaluate the advantages and disadvantages of the use of different scintillation detectors. Two detectors were tested – one of $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ and one of NaI(Tl), both with a $2'' \times 2''$ crystal, but, because of the nature of these two materials, with different energy resolutions (specifically, 2.6% and 7%, respectively, for the Cs-137 photopeak). For the efficiency calibration, we used an experimental method based on fabricating a series of samples of known activity, with geometry as similar as possible to that of the aerosol deposition on the filter. This geometry is, of course, very different from those considered standard in a low-activity laboratory: a

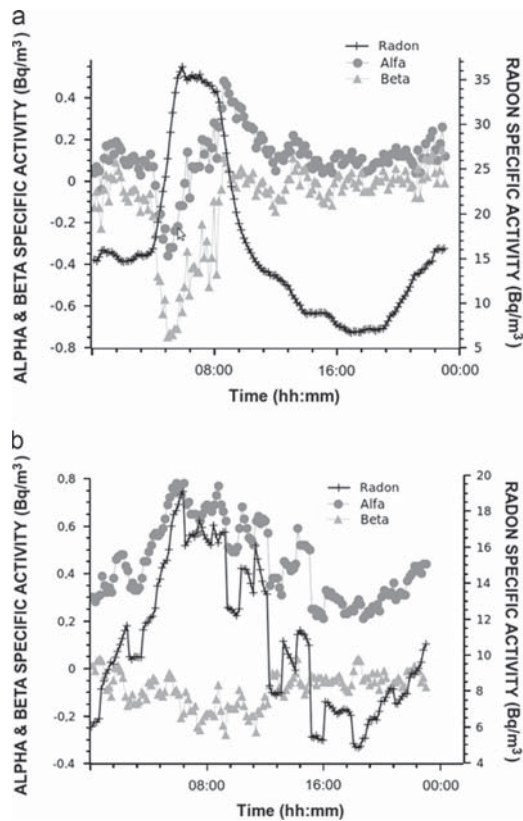


Fig. 1. Total alpha, total beta, and radon specific activities obtained for the currently operating RARE stations located in (a) Saucedilla, and (b) Serrejón (both in Extremadura, Spain).

curved metal structure supports and moves the glass-fibre filter in front of the detector. The suction pump's flow rate of about $22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ allows the aerosol capture area to be in the form of a geometry of lanes (11 lanes of $53 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ with a 1.5 mm separation). For the calibration therefore, well-known activities were incorporated onto a piece of fibre-glass filter to reproduce the capture area described above for the measurement. In particular, three replicates were prepared with total activities of 708 Bq, 706 Bq and 701 Bq (0.4% uncertainty) of the radioactive cocktail 011211NPL-A (certified by the National Physics Laboratory, United Kingdom), which has gamma emissions in the range 60–1900 keV. As was to be expected, the results of the efficiency calibration showed the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector to have a greater relative efficiency than the $\text{NaI}(\text{Tl})$ detector.

2.2.2.2. Gas monitor. Similarly to the above case, 18 replicates were prepared by incorporating well-known activities of standard cocktails to the active carbon cartridges. These are plastic cylinders of 5.72 cm diameter and 2.5 cm height, filled entirely with activated carbon. The capture system circulates air through the cartridge's interior, so that the section of the cylinder actually containing contaminated activated carbon may differ greatly depending on the concentration of airborne radioiodines and the extraction time. For this reason, we prepared standards of activated carbon traced homogeneously with I-131 to different thicknesses, with 2 or 3 replicates per thickness, to emulate the possible different degrees of contamination of the cartridges in real cases. In particular, cartridges were prepared with traced active carbon layers of different masses (3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, and 23 g) and with the specific activities incorporated being from 7 Bq/g to 25 Bq/g depending on the measurement date. The cartridges were then topped up with uncontaminated active carbon. The cartridges were measured with the contaminated side facing the $\text{NaI}(\text{Tl})$ detector at a constant 1-cm distance to allow air flow. The efficiency results for the 364 keV emission of I-131 are shown in Fig. 2.

3. Results and discussion

The calibrations performed for the new aerosol monitor showed the average efficiency of the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector to be 25% greater than that of the $\text{NaI}(\text{Tl})$ detector. Since they have the same crystal size, one might conclude in principle that the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector is more suitable than the $\text{NaI}(\text{Tl})$ detector for the determination of the activities of radionuclides present in the fibre-glass filter, as well as having a better energy resolution. However, as one observes in Table 1, the MDAs calculated (Currie, 1968) for the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ detector as a function of time for a flow rate of $22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ were some 28% higher, especially for lower energy emissions ($< 200 \text{ keV}$). The main explanation for this difference is an increased background count due to the intrinsic background of the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ crystal: the presence of La-138, a naturally occurring radioisotope of lanthanum, produces a beta continuum at low energies and a Compton continuum at medium energies of the spectrum (Saint-Gobain, 2009). On the other hand, from Table 1, it can be pointed out that the MDAs decrease significantly not only due to the measurement time increment itself but also to the air volume increment that has to be considered in the calculations (please, note that the acquisition time equals to collection time and that the background count rate is constant in time, and therefore the MDAs are proportional to time interval to $-3/2$).

Nevertheless, the better energy resolution of the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ device allows the MDAs of other radionuclides in the standard to be identified and calculated – Co-57 (122.06 keV), Mn-54 (834.84 keV),

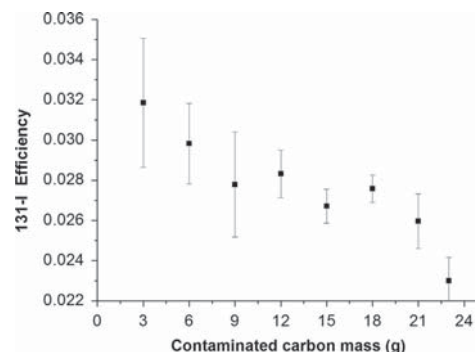


Fig. 2. Efficiency of the $\text{NaI}(\text{Tl})$ ($2' \times 2'$) detector used to monitor I-131 in quasi-real-time, as a function of the mass of carbon traced with I-131.

Table 1

Values of the minimum detectable activity (MDA) of artificial radioisotopes obtained with the $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ and $\text{NaI}(\text{Tl})$ scintillation detectors, both of crystal size $2' \times 2'$, in the aerosol monitor, for different data acquisition times.

Acquisition time	Isotope	Energy (keV)	$\text{NaI}(\text{Tl})$ MDA (Bq/m^3)	$\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ MDA (Bq/m^3)
180 s	^{241}Am	59.54	32 ± 7	67 ± 12
	^{109}Cd	88.03	350 ± 90	501 ± 110
	^{139}Ce	165.9	19.4 ± 1.7	24 ± 3
	^{113}Sn	391.7	37 ± 8	39 ± 9
	^{137}Cs	661.65	42 ± 10	46 ± 10
	^{60}Co	1332	43 ± 10	47 ± 12
600 s	^{241}Am	59.54	5.2 ± 1.1	10.7 ± 1.9
	^{109}Cd	88.03	56 ± 14	83 ± 19
	^{139}Ce	165.9	3.12 ± 0.25	3.9 ± 0.5
	^{113}Sn	391.7	5.8 ± 21.3	6.3 ± 1.4
	^{137}Cs	661.65	6.5 ± 1.5	7.4 ± 1.6
	^{60}Co	1332	7.0 ± 1.4	7.0 ± 1.7
6 h	^{241}Am	59.54	0.023 ± 0.004	0.049 ± 0.009
	^{109}Cd	88.03	0.25 ± 0.06	0.38 ± 0.09
	^{139}Ce	165.9	0.0139 ± 0.0010	0.0176 ± 0.0021
	^{113}Sn	391.7	0.026 ± 0.006	0.029 ± 0.006
	^{137}Cs	661.65	0.029 ± 0.006	0.033 ± 0.007
	^{60}Co	1332	0.029 ± 0.005	0.0302 ± 0.0012
24 h	^{241}Am	59.54	0.0029 ± 0.0005	0.0061 ± 0.0011
	^{109}Cd	88.03	0.032 ± 0.008	0.047 ± 0.011
	^{139}Ce	165.9	0.00174 ± 0.00012	0.0022 ± 0.0003
	^{113}Sn	391.7	0.0032 ± 0.0007	0.0036 ± 0.0008
	^{137}Cs	661.65	0.0036 ± 0.0008	0.0042 ± 0.0009
	^{60}Co	1332	0.0033 ± 0.0006	0.0038 ± 0.0009

Y-88 (898.04 and 1836.05 keV), and Zn-65 (1115.54 keV). This is impossible with the $\text{NaI}(\text{Tl})$ detector except through a process of peak deconvolution.

With respect to the detection of I-131 in the activated carbon cartridges, it was observed that the detection efficiency decreased with increasing amounts of carbon traced with I-131, to reach a minimum value of 0.0232 ± 0.0005 (Fig. 2). This behaviour is due to the attenuation of the I-131 gamma emissions by the carbon itself and the solid angle gradient (the thinner the contaminated layer, the greater the solid angle). In Fig. 3, the calculated MDA of I-131 for a flow rate of $6 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$, and different active carbon contents with known activities of I-131 is shown.

The calculated MDAs for three of the isotopes that are indicators of the risk of artificial contamination during a nuclear power plant accident – Cs-137, Co-60, and I-131 – were 7, 7, and 8 Bq/m^3 , respectively, for a 10-min measurement time. These are sufficient for the purposes of a quasi-real-time warning network. For cumulative spectrum measurements of 6–24 h, they permit MDAs of one to two

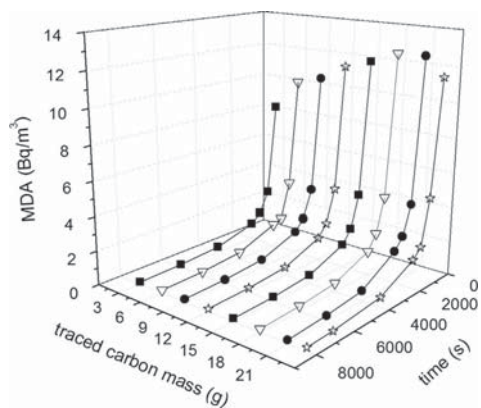


Fig. 3. Values of the MDA for I-131 in the gas monitor as a function of the mass of traced activated carbon in the cartridge and of the acquisition time, using a the NaI (TI) (2" × 2") detector and compact digital multichannel electronics.

orders of magnitude lower, respectively. The measurements can thus be made below the reporting levels established by the CSN, the regulatory body in Spain, which are 0.2 Bq/m³ for Cs-137, 0.2 Bq/m³ for Co-60, and 0.4 Bq/m³ for I-131 (CSN, 2006) on the basis of the requirements established by the regulation on health protection against ionizing radiation in force in Spain.

4. Conclusions

The currently used model of automatic aerosol and gas radiation monitoring stations is based on overall measurements and the use of single-channel analysers. The modifications to this model that have been described in this communication have meant a considerable increase in its analytical capabilities. In particular, the incorporation of gamma spectrometry allows one to pass from an indirect estimation of the total alpha and total beta activity concentrations due to artificial radionuclides in aerosols, and the imprecise measurement of the gaseous I-131 activity concentration, to the possibility of identifying a large number of radionuclides, and determining unequivocally and

with sufficient precision each of their activity concentrations. The MDAs that are achieved are adequate for the purposes of prompt and accurate measurement that should govern the operation of a radiation warning network.

Acknowledgements

This work was made possible by funding from the Regional Government of Extremadura and Spain's Nuclear Safety Council (CSN) through the Cooperation Agreement signed for the operation, management, and access to the data of automatic environmental radiation monitoring stations, and by funding from the CSN through the research project "Design, Implementation, Management, and Optimization of a Pilot Station for the Automatic and Quasi-Real-Time Detection of Specific Activities of Radio-Particles and Radio-Iodines in Air" (2012–2014). Also we are grateful to the Regional Government of Extremadura for financial support to the LARUEX Research Group (FQM001) through its IV Regional R&D + I Plan, DOE No 250 of 30.12.2010.

References

- Baeza, A., del Puerto, J.A., del Río, L.M., Miró, C., Ortiz, F., Paniagua, J.M., 1993. Development and operativity of a real-time radiological monitoring network centred on the nuclear power plant of Almaraz (Spain). *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 40 (6), 2014–2020.
- Baeza, A., del Río, L.M., Vasco, J., 1997. Remote online calibration of a particulate-iodine monitor of a real-time radiological network. *Radiochim. Acta* 79, 17–23.
- Baeza, A., Corbacho, J.A., Miranda, J., 2013a. Design and implementation of a mobile radiological emergency unit integrated in a radiation monitoring network. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (2), 1400–1407.
- Baeza, A., Caballero, M., Corbacho, J.A., Ontalba Salamanca, M.Á., Rodríguez, A., Valencia, D., Vasco, J., 2013b. Necesidad de monitorizar las componentes particulada y gaseosa del I-131 en aire en redes automáticas de vigilancia radiológica. Impacto en España del accidente de Fukushima Daichi. III Congreso Conjunto: Sociedad Española de Física Médica y Sociedad Española de Protección Radiológica (submitted communication, in Spanish).
- Berthold Technologies, 1997. Combined particulates-iodine monitor BAI 9850-6, Standard Manual.
- Canberra Industries, 2009. Genie2000 Operations Manual.
- Currie, L., 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.* 40 (3), 586–593.
- CSN, 2006. Guía de seguridad 7.9. Manual del cálculo de dosis en el exterior de las instalaciones nucleares Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid (in Spanish).
- Saint-Gobain, 2009. Technical Note, BrillanCe Scintillators Performance Summary. (<http://www.detectors.saint-gobain.com>).

Artículo 3

Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks

Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks

A Baeza, J A Corbacho, J M Caballero, M A Ontalba,
J Vasco and D Valencia

Environmental Radioactivity Laboratory, Faculty of Veterinary Sciences, University of Extremadura, E-10003, Cáceres, Spain

E-mail: corbamer@unex.es

Received 11 January 2017, revised 25 May 2017

Accepted for publication 30 May 2017

Published 20 July 2017



CrossMark

Abstract

Automatic real-time warning networks are essential for the almost immediate detection of anomalous levels of radioactivity in the environment. In the case of Extremadura region (SW Spain), a radiological network (RARE) has been operational in the vicinity of the Almaraz nuclear power plant and in other areas farther away since 1992. There are ten air monitoring stations equipped with Geiger–Müller counters in order to evaluate the external ambient gamma dose rate. Four of these stations have a commercial system that provides estimates of the total artificial alpha and beta activity concentrations in aerosols, and of the ^{131}I activity (gaseous fraction). Despite experience having demonstrated the benefits and robustness of these commercial systems, important improvements have been made to one of these air monitoring systems. In this paper, the analytical and maintenance shortcomings of the original commercial air monitoring system are described first; the new custom-designed advanced air monitoring system is then presented. This system is based mainly on the incorporation of gamma spectrometry using two scintillation detectors, one of NaI:Tl and the other of LaBr₃:Ce, and compact multichannel analysers. Next, a comparison made of the results provided by the two systems operating simultaneously at the same location for three months shows the advantages of the new advanced air monitoring system. As a result, the gamma spectrometry analysis allows passing from global alpha and beta activity determinations due to artificial radionuclides in aerosols, and the inaccurate measurement of the gaseous ^{131}I activity concentration, to the possibility of identifying a large number of radionuclides and quantifying each of their activity concentrations. Moreover, the new station's dual capacity is designed to work in early warning monitoring mode and surveillance

monitoring mode. This is based on custom developed software that includes an intelligent system to issue the necessary warnings when radiological anomalies or technical problems are identified. Implicitly, for the construction of the advanced station, substantial mechanical and electronic developments have been required. They have essentially consisted of integrating a new replacement device, whose operation has reduced the maintenance tasks.

Keywords: early warning networks, gamma spectrometry, airborne particle monitoring

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

The entry of Spain into the European Union (EU) in 1986 meant the acceptance of the Euratom Treaty [1]. This requires member states to create the facilities needed to permanently monitor the level of radioactivity in the atmosphere, water, and soil, and to ensure that their competent authorities regularly communicate the results of this monitoring to the Commission in order to keep it informed of the level of radioactivity to which the population of the member states is exposed. There can be no doubt that this gave a boost to Spain's radiological surveillance programs, which were being sponsored by the country's Nuclear Safety Council [2], and led to the implementation of the REM (Sampling Stations Network) monitoring network which is responsible for the accurate radiological characterization of the country's atmosphere, land, rivers, and coasts by periodically analysing a comprehensive set of environmental samples. This initiative includes a set of automatic warning networks, whose purpose is to monitor in close to real-time the temporal evolution of the radioactive content in the environment (air and water) so as to notify the competent authorities in as short a time as possible if the radiological values are abnormal. At the national level, these warning networks include the Automatic Station Network (REA) [3] managed directly by the CSN, and the Radiation Alert Network (RAR) managed by Spanish Civil Protection. At the regional level, there are monitoring networks implemented by the Autonomous Communities of Extremadura, Catalonia, Basque Country, and Valencia. By agreement between the administrations involved, the data these generate are integrated into the REA [3]. These networks have intentionally similar air-monitoring, and in some cases water-monitoring, stations. All the information they gather is provided to the European Radiological Exchange Platform [4] which continually automatically integrates the dose rate values provided by 33 countries (35 organizations). Most of the 43 automatic airborne monitoring stations in Spain are the LB-BAI 9850-6 model of the Berthold Company [5]. These systems provide: (i) estimates of radon progeny in terms of the equilibrium equivalent concentration (EEC), and of the total alpha and total beta activities of emitters that do not belong to the radon decay chain; and (ii) a measurement of the activity of the gaseous fraction of ^{131}I collected in an activated carbon cartridge. Although the years of experience with these commercial systems have demonstrated their capabilities, their analytical and maintenance shortcomings have been described in a previous work [6]. Firstly, its aerosol monitor evaluates the total alpha and beta activities of man-made origin and the EEC activity that are retained in a continuous moving filter band. These results are in themselves a limitation, since it is impossible to individually identify and quantify each of the natural and/or man-made radioisotopes captured on the continuous filter that is used for aerosol capture. Secondly, the activity of the gaseous fraction of ^{131}I is

determined using an indirect method, apart from being impossible to identify other gaseous radionuclides that might also be retained by the carbon cartridge that is used. Thirdly, if a radiological anomaly occurs it cannot be isolated for subsequent more precise analysis in a low-activity laboratory. The capability of identifying minor radiological anomalies should not only not be ignored, but also faced and solved in new monitoring developments. From the radioprotection point of view in early warning networks, slight increases of man-made radionuclide concentrations can be far lower than concentrations that may have any effect on human health. However, the detection of low level concentrations could become a pre-alarm signal of the first stage of a nuclear incident, as is shown in the following sections where the advanced monitoring station performance is described in detail. Finally, the maintenance required by the ^{131}I measurements is costly in terms of labour and time because of the frequent visits that must be made to the monitoring station in order to manually change the activated carbon cartridge. The aforementioned paper gave only a very brief description of a pilot monitoring station based on gamma spectrometry, since its main focus was on the efficiency calibration of the spectrometers for the very singular geometry involved in the aerosol measurements, and on the determination of the minimum detectable activity (MDA) values for different anthropogenic radioisotopes.

In the present work, the development of an advanced air monitoring system based on the LB-BAI 9850 model is described in detail. In this system, radiological measurements of both gases and airborne particles are made by gamma spectrometry. First, the system's ability to identify and quantify by gamma spectrometry several man-made and naturally occurring radionuclides is shown. Second, the powerful and versatile software that has been implemented to control the station and its remote management using different communication systems is also described. Finally, an indication is given of the station's versatility: its modular development allows partial implementation in accordance with the particular analytical requirements and/or economic possibilities, and replacement of components and devices available on the market is straightforward. The new station has been installed close to an LB-BAI 9850 air monitoring station at a location near the Almaraz Nuclear Power Plant: Saucedilla (39.85696°N 5.67867°W). Both stations were operated simultaneously for three months; their results are exhaustively discussed and compared.

2. Material and methods

2.1. Description of the Berthold LB 9850 air monitoring stations

The LB-BAI 9850 system has two modules to capture and measure atmospheric samples:

2.1.1. Aerosol monitor. This monitoring device has a suction pump with a high flow rate of about $22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$, allowing the aerosols to accumulate on a fibreglass filter which moves continuously at a speed of 10 mm h^{-1} . Over the capture area, there is a $\text{ZnS(Ag)} + \text{plastic}$ double scintillation detector. This is coupled to the electronics required to provide estimates of the total alpha and total beta activities of man-made origin, and of the radon activity concentration (in terms of the EEC) in the particles retained on the filter [5, 7, 8]. These estimates are made on the basis of a temporal pseudo-coincidence method. Specifically, when the system's electronics detects an alpha particle and a beta particle simultaneously ($\Delta t < 163 \mu\text{s}$), it discards these counts under the assumption that they come from the beta decay of ^{214}Bi and the alpha decay of ^{214}Pb , both of which belong to the radon decay chain, and are therefore of natural origin [9]. The main advantage of this air monitoring system is its robustness and the extensive experience with its use. The structure of the capture area is actually

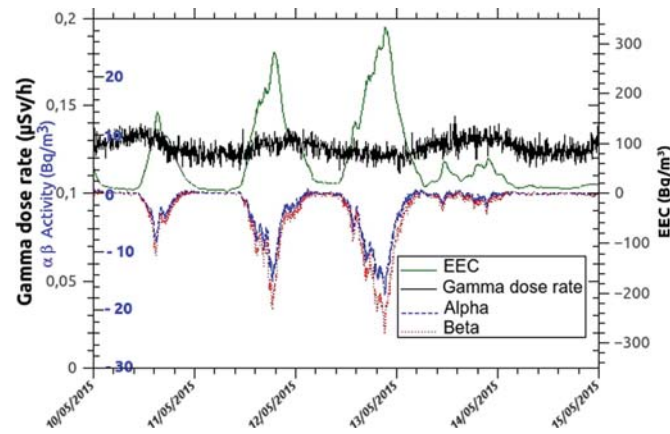


Figure 1. Environmental gamma dose rate (outside left scale), gross alpha and beta concentrations (inside left scale in Bq m^{-3}), and Equilibrium Equivalent Concentration (outside right scale) measured with the LB-BAI 9850 air monitoring station.

well-designed and the filter coupled to an air pump is capable of accumulating particulates from a large volume of air onto a small area, guaranteeing a proper warning answer if an important radiological accident happens. In fact, a large number of radiation detection networks use this kind of device [10, 11]. Nevertheless, the results provided by this monitor have the main limitation that it is impossible to individually identify and quantify each of the natural and/or artificial radioisotopes captured on the filter. Moreover, as discussed in section 2.2.1, the continuous movement of the filter and the non-adjustable flow rate of the air pump can be considered as limitations when the double and simultaneous early warning and environmental surveillance capabilities are planned using the same airborne monitoring system. Also, examination of the values it provides leads one to question the reliability of the pseudo-coincidence circuit's operation. For example, figure 1 shows a plot of the gross alpha, gross beta, and EEC activities provided from 10/05/2015 to 15/05/2015 by the current air monitoring station of Saucedilla situated near the Almaraz Nuclear Power Plant (ANPP) and belonging to the Radiological Emergency Network of Extremadura (RARE). The environmental gamma dose rates measured by this monitoring station are also plotted in the figure (values characteristically high, as explained in [12]). It can be seen that when the EEC increases the gamma dose rate also increases, and the man-made total alpha and beta activities become negative. This behaviour is observed in areas with significant concentrations of radon in the air, as is the case in Saucedilla [13] where there is a typically high daily and seasonal variability. This is due to the different concentrations of natural alpha and beta emitters existing each day in the air surrounding the monitoring station when the measurements are made, and those existing when the calibration was performed. For that reason, the pseudo-coincidence method is not subtracting the natural background correctly. In sum, in the hypothetical case of a nuclear accident with a significant radioactive discharge to the environment, the alpha and beta levels will increase markedly and will be properly identified by the equipment. But if the man-made radionuclide concentrations in the air are of the same order of magnitude as the natural background, they could well be hidden by the radon progeny evaluation procedure. Indeed, as was described by Vargas *et al* [8], the LB-BAI 9850 monitor shows that the temporal variation of natural radioactivity clearly influences the measurements of man-made radioactivity. To resolve these discrepancies, daily

adjustments should be made to the operation of the pseudo-coincidence circuit, as was proposed in an earlier work [14], although they could be subject to the non-objective decision of the station operator.

2.1.2. Gaseous radioiodine monitor. In this monitoring device, the air from the continuous filter is passed by means of an additional pump at a flow rate of $4\text{--}6\text{ m}^3\text{ h}^{-1}$ through a cartridge of activated carbon impregnated with TEDA (tri-ethylene di-amine), which has the capacity to retain the gaseous radioiodine fraction. Facing the cartridge, there is a $2'' \times 2''$ NaI:Tl detector coupled to two single-channel analyser circuits centred on the 364 keV photopeak energy. One channel has an energy window whose width is twice that of the other channel, and the ^{131}I activity is estimated from the calculation of the respective integrals. This activity calculation is severely limited by the indirect form of calculating the net area of the ^{131}I photopeak, apart from it being impossible to identify other gaseous radionuclides that might also be retained by the carbon cartridge like ^{133}Xe (81 keV), ^{132}Te (228 keV) and ^{132}I (668 keV). Moreover, the maintenance required by the ^{131}I measurements is costly in terms of labour and time because of the frequent visits that must be made to the monitoring station in order to manually change the activated carbon cartridge. The manufacturer guarantees a theoretical $8\text{ Bq m}^{-3}\text{ }^{131}\text{I}$ MDA value for a 600 s measurement time [5].

2.1.3. Gamma dose rate monitor. Coupled to the Berthold LB9850 air monitoring station, there is a Geiger–Müller monitor for the gamma dose rate measures (LB6361 model from Berthold company [15], dose rate measurement range 10^{-4} to 0.2 Sv h^{-1} , energy range: 80 keV to 1.3 MeV).

2.2. Development of the advanced air monitoring station

The main novel characteristics of the advanced air monitoring system involve the detection system and the remote control. Two $2'' \times 2''$ scintillation detectors (one NaI:Tl and the other LaBr₃:Ce) with compact multichannel analysers (MCAs) are included to analyse the gaseous and particulate air fractions respectively, replacing the original NaI:Tl and ZnS:Ag + plastic scintillators and their electronic chains. Obviously, the capacity for detection of pure alpha ($^{238,239,240}\text{Pu}$) and beta ($^{89,90}\text{Sr}$) emitters is lost. However, from the nuclear accidents at Chernobyl and Fukushima it was determined that pure alpha and beta emitters constitute 1.3% and 0.3%, respectively, of total activity released [16]. In fact, in the Fukushima accident the dominant radionuclides released were gaseous and volatile elements such as ^{133}Xe , ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs . In the initial stages of the accident, short-lived gamma-emitters such as ^{133}I , ^{132}I , ^{136}Cs , ^{132}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$ (^{129}Te), ^{99}Mo ($^{99\text{m}}\text{Tc}$), ^{140}Ba (^{140}La), ^{95}Nb and $^{110\text{m}}\text{Ag}$, the energy range of which is 100–700 keV, were also released [17]. On the other hand, a custom-designed automatic cartridge replacement system has been set up, and a programmable logic controller (PLC) made available to manage the movement of the fibreglass filter tape. The original air sampling system has been replaced by one with a variable flow rate within the range $40\text{--}80\text{ m}^3\text{ h}^{-1}$. An industrial computer has been installed inside the station to control all the detection devices and to manage the information provided by auxiliary equipment that will be described later. Its software sets up the desired data acquisition logic, and allows the quasi real-time calculation and reporting of the measured activities. In addition, it determines the activities for cumulative spectra over configurable longer time intervals. Finally, the information received at RARE headquarters is stored in MySQL databases, and managed with a custom data analysis and graphing software package. The advanced air monitoring system has additional equipment installed: a Geiger–Müller probe to measure the ambient dose rate, a

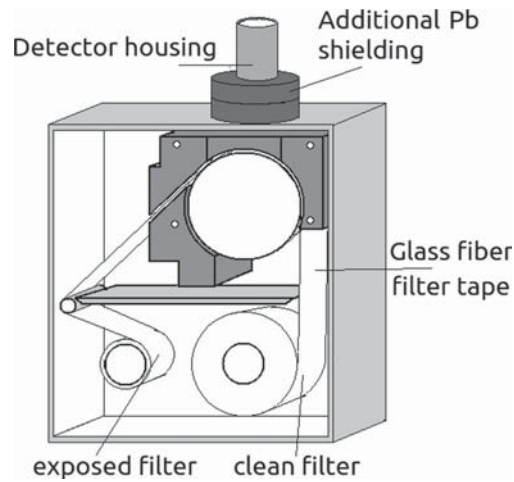


Figure 2. Scheme of the modified BAI 9100D module which is used in the advanced monitoring air system.

compact weather station, a UPS, an electric generator, an automatic reclosing residual current circuit breaker, and webcams to provide visual monitoring of the station in support of remote technical intervention.

2.2.1. Airborne gamma spectrometry. A modified BAI 9100D module is used for the measurement of the air particulate fraction (figure 2). This retains the airborne particles on a fibreglass filter tape, although, unlike the original system, this is not continuously moving in front of the detector. The main modification is the use of a PLC to control the movement of the tape. In the new system, the tape is stopped during the aerosol accumulation and measurement. Then, when the configurable time of aerosol accumulation is up, the exposed filter is moved through a slot into the lead shielding, and therefore does not contribute to the next gamma measurement that is starting on a new section of clean filter. Moreover, additional lead shielding is incorporated to house the detector and the MCA, in order to reduce the gamma contribution of the background. A $2'' \times 2''$ LaBr₃:Ce scintillator detector is positioned facing the exposed filter. The experimental procedure for the efficiency calibration of the detector in this particular geometry has been detailed in a previous work [6]. The system works in early warning mode (analysis every 10 minutes), but can also work in surveillance mode (analysis every 6 and 24 hours). During its routine measurement procedure, a clean filter area is moved into place in front of the detector in order to acquire a 6 h gamma spectrum. In this way, the aerosol particles start to be retained by the filter. During the process, every 10 min, a gamma spectrum is generated by the subtraction of the 6 h gamma spectrum that has been acquired at the moment t and the 6 h spectrum stored but non-stopped at $t-10$ min. These 10 min measurement time spectra are analysed using a previous clean filter gamma spectrum as background and the results are then reported (early warning mode). Moreover, a 6 h spectrum is eventually stored and analysed. Thus, every six hours the system provides the radionuclide air concentrations and MDA values (surveillance mode first stage). The latter are, of course, significantly lower than in early warning mode. After the 6 h measurement, the exposed fibreglass filter is removed from the area of measurement and a new clean fibreglass-tape section is moved into place in front of the detector. Finally, every 24 hours, the control software sums the four previous 6 h spectra, providing the daily

spectrum which, after analysis, delivers the daily radionuclide air concentrations and the lowest MDA values (surveillance modesecond stage). The main advantage of the gamma spectrometry that has been implemented is the ability to identify and quantify natural and man-made radionuclides in both early warning and surveillance modes. The naturally occurring radionuclides systematically analysed are: ^{214}Pb (352 keV), ^7Be (477 keV), ^{214}Bi (609 keV), and ^{40}K (1460 keV). Additionally, from the activity concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi , it is possible to determine the EEC of ^{222}Rn progeny. The expression used for this determination is that proposed by UNSCEAR [18] and Porstendörfer [19]:

$$EEC(\text{Bq}/\text{m}^3) = 0.105 \cdot (^{218}\text{Po}) + 0.516 \cdot (^{214}\text{Pb}) + 0.379 \cdot (^{214}\text{Bi}). \quad (1)$$

The ^{214}Pb plus ^{214}Bi contribution to the EEC is about 89%, whereas that of ^{218}Po is about 11%. Consequently, the EEC values are calculated using the ^{214}Pb and ^{214}Bi measurements, because ^{218}Po is not a gamma emitter. These EEC calculations were evaluated by comparison of the measurements of a commercial radon monitor (Alphaguard [20]) which was provisionally placed in Saucedilla monitoring station. In fact, after a 15-day period of continuous working, the alterations of ^{222}Rn registered by the commercial monitor (in the range of 0–250 Bq m^{-3} and with the uncertainty of 50 Bq m^{-3} when the concentration was 250 Bq m^{-3}), were properly reproduced by the EEC calculations. Furthermore, several man-made radionuclides are systematically analysed in each measurement of the advanced monitoring station: ^{60}Co (1332 keV), ^{134}Cs (604 keV), ^{137}Cs (662 keV), ^{65}Zn (1115 keV), ^{140}Ba (537 keV), ^{131}I particulate fraction (364 keV), and ^{241}Am (59 keV). In relation to the short half-life nuclides it can be said that our software analysis includes the correction factor for the nuclide decay during counting. Finally, the system records the total gamma counts in each analysis (10 min, 6 h, and 24 h). The monitoring of total gamma counts can provide information about the proper performance of the monitoring station. If a decrement of total gamma counts happens it can be related, for example, to an operational failure of the pump system.

2.2.2. Gaseous iodine gamma spectrometry. For the measurement of the gaseous iodine fraction, the LB-BAI 9850 module has been replaced with a new device (see figure 3). This device consists of a horizontal spinning platform in which there are three holes with the same diameter as that of the activated charcoal cartridge. Above this are held a lead-shielded $2'' \times 2''$ NaI:Tl scintillator detector and a linear cartridge dispenser (12-unit capacity) in motionless positions. The air sample coming from the fibreglass filter is conveyed by a pipe up to the inner lead shield and passes through the activated charcoal cartridge that is at that time being used and simultaneously analysed. When the measurement has finished, the platform rotates 120° , the measured cartridge is ejected from the platform into a basket, and an unexposed cartridge coming from the hole below the dispenser is moved into place in front of the detector. In routine operation, the rotation of the platform is controlled by the PLC system. This new device allows maintenance costs to be significantly reduced, since it is not necessary to go to the station to change each cartridge, and in emergency situations it is possible to change the cartridge at pre-established time intervals or when the analyst or the software demands it remotely. The efficiency calibration of the NaI:Tl scintillation detector for the measurement of the exposed activated carbon cartridges has been detailed in a previous work [6]. The system operates in early warning mode (acquiring and analysing spectra every ten minutes), but also in surveillance mode (analysing the four daily 6 h spectra and the 24 h spectrum), taking into account that, in principle, one cartridge is used per week.

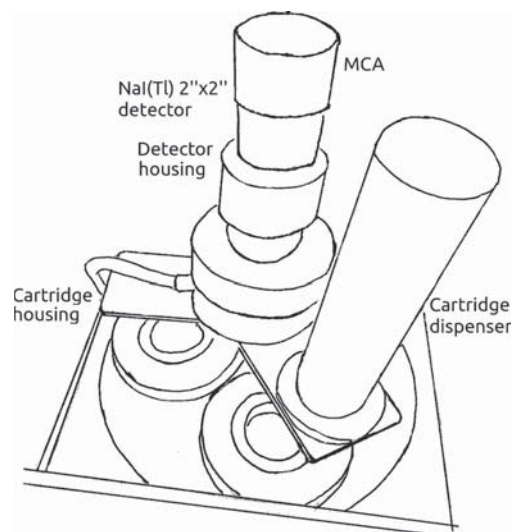


Figure 3. Scheme of the gaseous iodine measurement device which is used in the advanced monitoring air system.

2.2.3. Additional devices and data management. Coupled to the advanced air monitoring station, there are a Geiger–Müller monitor for the gamma dose rate measurements (GTXL model from Saphymo company [21], dose rate measurement range: 20 nSv h^{-1} to 10 Sv h^{-1} , energy range: 45 keV to 3 MeV) and a weather station (WTX530 model from Vaisala company [22]) for the determination of barometric pressure, air temperature, wind speed and direction, relative humidity and precipitation. Not only the dose rate and meteorological values are recorded, but also some essential technical parameters in order to provide operational alerts of any inappropriate behaviour of the mechanical or electrical components (air flow rate, temperature in the air-conditioned room, etc). A custom software package manages all the data (radiological and non-radiological) registered by the monitoring station. The data are sent to RARE's headquarters in quasi real-time, using at least two communication routes, the Internet and digital radio, although the software is ready to install GSM communication if it is required. Another capability of the station consists of an uninterruptible power supply (UPS) and a generator which, in case of power failure, together guarantee at least 8 h autonomous operation. Finally, two remotely operated webcams are installed next to the equipment in order for any operational problems to be viewed from RARE's headquarters and remotely help with local maintenance tasks. The data is managed with two different methods depending on the monitoring mode, although they work simultaneously:

- *Early warning monitoring mode:* The ambient dose rate value is registered every 180 s. In a previous work [23], the optimal dose rate measurement time was established to be 180 s, yielding dose rate standard deviations of less than 4%. Furthermore, every ten minutes the air fraction and the gaseous fraction are analysed by gamma spectrometry. Using custom software for the data acquisition, both gamma spectra are started, ended, stored, and then, using GENIE2K [24] libraries as basis, analysed by the station's computer. The ambient dose rate values, the activities, and the MDA values of the radionuclides are sent to RARE's headquarters in quasi real-time. All the data are stored

in MYSQL databases in the headquarters' servers. Then, additional custom evaluation software compares the ambient dose rate values to three pre-established levels. **Level 1:** 30% of monthly average dose rate plus annual average dose rate from natural background. **Level 2:** $0.114 \mu\text{Sv h}^{-1}$ plus annual average dose rate from natural background. **Level 3:** $0.228 \mu\text{Sv h}^{-1}$ plus annual average dose rate from natural background. Level 1 guarantees the notification of a significant gamma dose rate alteration in the area, and can be considered as a pre-alarm stage for the network staff. Level 2 and Level 3 constitute an alarm situation for the network staff as they are defined according to the Spanish regulations [25]. For the general public, 1 mSv per year is established as the maximum permissible effective dose resulting from human activities outside the natural radioactivity and doses of medicine. In addition, the evaluation software checks if the activities of man-made radionuclides are higher than the 10 min MDA values.

- *Surveillance monitoring mode:* The station's software provides the airborne radionuclide concentrations of the particulate and gaseous fractions every 6 h and 24 h. All the data and spectra are sent to RARE's headquarters. The evaluating software checks the airborne activity concentrations of naturally occurring and man-made radionuclides retained on the fibreglass filter and the carbon cartridge, comparing them with the 6 h and 24 h MDA values.

In both working modes, if abnormal values are identified—i.e. dose rates greater than the established levels or man-made radionuclide activities greater than the MDA values—a notification is delivered as text messages via Short Message Service (SMS) to the analyst's mobile phone. These messages help the analyst and the network responsible to evaluate the situation and to take the best decisions to confirm or discard the radiological event. For example, the remote connection to the PC's at the headquarters and the stations allows the analyst to take the following steps in the case of a possible event:

- to examine the radiological data provided by other stations;
- to inspect the meteorological data which are also sent to the headquarters in real time, paying attention mainly to the wind direction with respect to the ANPP;
- to re-analyse the relevant spectra (these are stored in the station and in the servers);
- to send an automatic signal to change the fibreglass filter and/or carbon cartridge, and/or to increase the flow rate and/or the filter exposure time;
- to send a mobile laboratory, where and when it is needed, to make georeferenced dose rate and *in situ* high resolution gamma spectrometry measurements, and transfer that data to the headquarters via satellite or GSM in quasi real-time [23].

In the case of an emergency mode in accordance with the relevance of the anomalous values detected and with respect to the ANPP's Plan for Nuclear Emergencies [26], the main objective is either to identify the presence of a false positive or to confirm the presence of a radiological incident so as to inform the authorities. In the case of the surveillance mode, the confirmation of abnormal radiological events would become a pre-alarm stage for the RARE network.

Regarding anomalies in the technical parameters, i.e. when the evaluation software identifies the presence of data outside the proper working ranges, an operational alert is generated via SMS. The technicians then need to identify and resolve the breakdown either from RARE's headquarters or at the affected station.

2.3. Measurements

A comparison of the results obtained with the advanced air monitoring station and the LB-BAI 9850 device was made at the Saucedilla monitoring station, one of the RARE stations around the Almaraz Nuclear Power Plant. The measurements of the two devices were registered simultaneously for three months in order to test the advanced station's operation and evaluate its analytical capabilities.

3. Results and discussion

3.1. Airborne particle and gaseous analysis

The typical values of the minimum detectable activity (MDA) obtained for each of the selected man-made radionuclides are listed in table 1 for the 10 min, 6 h and 24 h measurements. The table shows that for a 10 min measurement time these MDA values are of the order of 10 Bq m^{-3} , which is the recommended value for detection limits in emergency situations [27]. Nevertheless, they are four orders of magnitude greater than the Reporting Levels established in Article 36 of the European Commission Recommendation [28]. However, the 24 h measurement time MDA values are of the same order of magnitude as the European Commission Recommendation: $5 \times 10^{-3} \text{ Bq m}^{-3}$ gross beta (based on ^{90}Sr) and $3 \times 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3}$ for ^{137}Cs . These results justify the simultaneous operation of the emergency and surveillance modes of our system. It can also be seen in table 1 that the MDA values for ^{65}Zn are significantly greater than for the rest of the man-made radionuclides. This fact is easily explained since not only are the main gamma emission of ^{65}Zn (1115 keV) and the highest intensity ^{214}Bi photopeak (1120 keV) in the same energy region, but there is also a broad feature at 750 to 1000 keV due to coincidence of the 789 keV gamma ray of ^{138}La with a beta particle [29]. For those reasons, the ^{65}Zn MDA values are one order of magnitude greater than those of ^{134}Cs , ^{137}Cs , and ^{60}Co . In brief, this gamma spectrometry applied to the determination of airborne concentrations provides MDA values for several man-made radionuclides that meet the requirements of both emergency situations (10 min measurement times) and environmental radioactive monitoring (6 h and 24 h measurement times). The analyses were performed over a long time, 05/03/2015 to 15/06/2015, and the results present high stability in the MDA values, as can be seen from the range of the measurements in table 1.

3.2. Comparison of the Berthold BAI system and the advanced air monitoring station working simultaneously

3.2.1. Equilibrium equivalent concentration of radon decay products. Figure 4 shows the temporal evolution over 15 days of the ^{222}Rn ECC as registered by the Berthold BAI and the ECC evaluated from the gamma spectrometry measurements of ^{214}Pb and ^{214}Bi . Firstly, one observes in both sets of data the well-known daily cycle of the air concentrations of ^{222}Rn and its progeny, with a maximum in the early morning hours and a minimum at noon [19]. Secondly, the mean, standard deviation, and range of the EEC values are $33 \pm 34 \text{ Bq m}^{-3}$ and $3\text{--}150 \text{ Bq m}^{-3}$ respectively. These values are coherent with the indoor Rn values measured by Poncela *et al* [13] in the vicinity of the ANPP. A correlation analysis between the EEC values given by the two systems gave the following linear regression: $EEC_{\text{Berthold}} = A \cdot (EEC_{\text{Advanced monitoring station}}) + B$; $A = 1.00 \pm 0.03$; $B = 4 \pm 2 \text{ Bq m}^{-3}$; $r^2 = 0.77$. These results show a strong correlation between the two sets of EEC values. One thus infers that the

Table 1. Values of the MDA of naturally occurring and man-made radionuclides analysed by gamma spectrometry in the advanced air monitoring station in the period 05/03/2015-18/06/2015 for different measurement times.

Measurement time	Minimum detection activity (Bq m ⁻³)					
	10 min		6 h		24 h	
	Range	Mean ± SD	Range	Mean ± SD	Range	Mean ± SD
Man-made						
Particulate ¹³¹ I	1.0-7.2	3.3 ± 0.7	0.006-0.034	0.018 ± 0.004	(1.8-2.3) · 10 ⁻³	(2.2 ± 0.3) · 10 ⁻³
¹⁴⁰ Ba	11-87	37 ± 6	0.065-0.305	0.180 ± 0.030	(2.1-2.4) · 10 ⁻²	(2.2 ± 0.2) · 10 ⁻²
¹³⁷ Cs	1.6-11.8	5.6 ± 1.1	0.009-0.044	0.025 ± 0.004	(2.6-3.1) · 10 ⁻³	(3.1 ± 0.3) · 10 ⁻³
¹³⁴ Cs	1.2-18.3	4.1 ± 0.6	0.007-0.035	0.020 ± 0.003	(1.8-2.2) · 10 ⁻³	(2.5 ± 0.2) · 10 ⁻³
⁶⁰ Co	1.9-12.6	6.0 ± 1.0	0.011-0.056	0.030 ± 0.005	(3.7-4.2) · 10 ⁻³	(3.7 ± 0.3) · 10 ⁻³
⁶⁵ Zn	17-112	55 ± 6	0.3-2.7	1.53 ± 0.17	(3.8-4.2) · 10 ⁻¹	(0.38 ± 0.03)
²⁴¹ Am	3.4-43.7	12 ± 3	0.045-0.050	0.06 ± 0.04	(5.7-7.5) · 10 ⁻³	(7.2 ± 2.0) · 10 ⁻³
Gaseous ¹³¹ I	30-41	36.6 ± 1.4	0.125-0.241	0.18 ± 0.01	(1.7-2.6) · 10 ⁻²	(2.3 ± 0.1) · 10 ⁻²
Naturally occurring						
⁷ Be	0.4-160	80 ± 14	0.14-0.66	0.39 ± 0.07	(2.5-6.5) · 10 ⁻²	(4.8 ± 0.5) · 10 ⁻²
⁴⁰ K	19-1600	800 ± 100	8.72-39	22 ± 2	(3.2-6.5)	(5.4 ± 0.4)
²¹⁴ Bi	2.5-20	8.8 ± 1.3	0.012-0.070	0.033 ± 0.006	(2.1-5.3) · 10 ⁻³	(4.0 ± 0.4) · 10 ⁻³

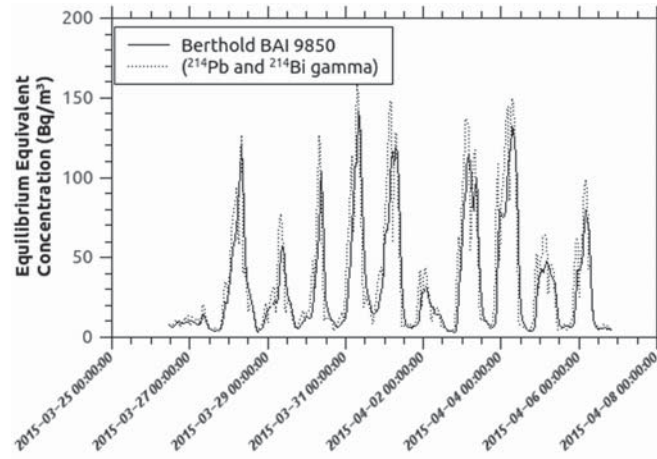


Figure 4. Comparison of EEC values obtained from the Berthold BAI and the advanced air monitoring stations, both located in Saucedilla and working simultaneously.

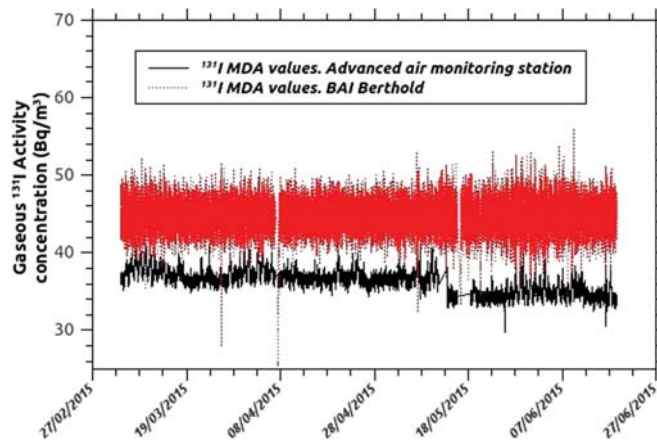


Figure 5. Comparison of the gaseous ¹³¹I MDA values obtained with the BAI Berthold and the advanced air monitoring stations in the period 05/03/2015–16/06/2015.

advanced air monitoring station provides similar EEC values to those given by the BAI Berthold air monitoring station.

3.2.2. Gaseous iodine analysis. In a nuclear accident, radioiodine isotopes can be released from the containment in different chemical species: in gaseous forms (I_2) and particulate forms (CH_3I , HIO , iodides, and iodates). The ^{131}I -gaseous/ ^{131}I -total ratio provides information about atmospheric processes from the release location to the measurement site. Iodine can be volatilized in particle-to-gas transformation processes which depend, among other parameters, on the conditions of temperature and humidity [30]. The percentage of radioiodine released in gaseous form is high. For example, in the Fukushima accident the average gaseous/total ^{131}I ratio was 77.14% [31]. Figure 5 shows the gaseous ^{131}I MDC values obtained by the BAI Berthold air monitoring station and the advanced air monitoring

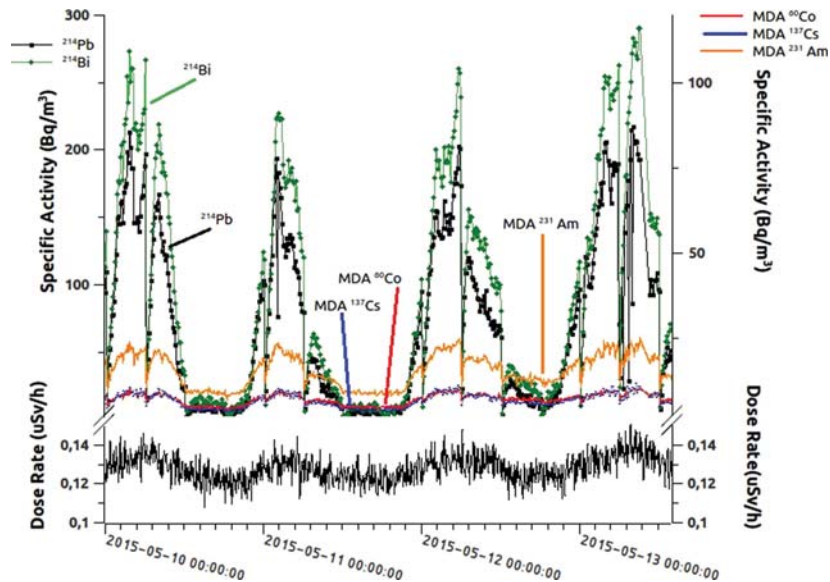


Figure 6. Comparison of gamma dose rates and various radioactivity parameters measured simultaneously in the Saucedilla station.

station over the period 05/03/2015 to 16/06/2015. One observes that the gaseous MDA values for the 10 min measurements registered by the advanced monitoring station are approximately 15% lower than those registered by the BAI Berthold station (180 s measurement times). Both of them are greater than 10 Bq m^{-3} , which is the recommended value of detection limits in emergency situations [27]. To improve these ^{131}I MDA values, as can be seen in table 1, the gamma spectrometry analyses for 6 h and 24 h spectra provide average gaseous ^{131}I MDA values of the order of 0.18 Bq m^{-3} and 0.023 Bq m^{-3} respectively. Additionally, analysis of the long-time evolution over the period 05/03/2015 to 16/06/2015 confirmed the high stability of the MDA values. Indeed, the percentage dispersion of the MDA data for a 95% confidence level is less than 11% for the 10 min, 6 h, and 24 h measurement times. In sum, in the early warning monitoring mode of operation, the advanced air monitoring station provides gaseous ^{131}I MDA values of the same order as those provided by the BAI Berthold air monitoring station. Nevertheless, every 6 h and 24 h, the advanced air monitoring station delivers values of the gaseous ^{131}I activities with MDA's that are lower than those of the BAI Berthold air monitoring station results and of the same order of magnitude as the European Commission recommended values [28].

3.2.3. Detection sensitivity in early warning monitoring mode. A plot of the gamma dose rate registered during the period 05/03/2015 to 16/06/2015 by the dose rate monitor is shown in figure 6 (left scale). The figure also shows the gamma spectrometry results provided by the advanced air monitoring station when working in early warning monitoring mode (10 min measurement times, right scale): ^{214}Pb and ^{214}Bi activities, and the MDA's of ^{241}Am , ^{60}Co , and ^{137}Cs . One observes a clear correlation between the naturally occurring radionuclide concentration in the particulate fraction (^{214}Bi and ^{214}Pb) and the gamma dose rate. This result confirms, with no need for any further interpretation, that changes in the daily dose rate are exclusively due to marked increases of radon daughter concentrations in the air.

Table 2. Alpha and beta spiked fiberglass filter sources to test the Berthold LB-BAI 9850 airborne monitoring system response.

	Alpha and Beta emitter	Spiked activity (uncertainty 3%) (Bq)
Source 1	α_{total} (^{241}Am)	22
	β_{total} ($^{131}\text{I} + ^{137}\text{Cs}$)	23
Source 2	β_{total} ($^{131}\text{I} + ^{137}\text{Cs}$)	111
Source 3	β_{total} ($^{131}\text{I} + ^{137}\text{Cs}$)	223

Table 3. Individual activities determined by the advanced monitoring system when known activities are incorporated.

	Radionuclide	Spiked activity (uncertainty 3%) (Bq)	Determinations by advanced monitoring station			
			Activities (Bq)			
			Maximum	Minimum	Mean \pm SD	MDA (Bq)
Source 4	^{131}I	46	32 \pm 6	27 \pm 6	29 \pm 3	10
	^{137}Cs	65	57 \pm 10	54 \pm 9	55 \pm 2	19
Source 5	^{131}I	92	73 \pm 12	62 \pm 10	69 \pm 6	10
	^{137}Cs	131	125 \pm 14	103 \pm 14	114 \pm 11	19

But what is the behaviour of the two systems in response to low level concentrations of man-made radionuclides captured on the fiberglass filter? To study such situations, spiked sources were prepared to test the sensitivity of the two airborne particle monitoring systems. For that purpose, known amounts of ^{241}Am , ^{131}I and ^{137}Cs were added to blank fiberglass filters. The activity concentrations of each radionuclide are shown as ‘Spiked activity’ in table 2 for the Berthold system and in table 3 for the advanced monitoring station. The spiked filters ‘Source 1’, ‘Source 2’ and ‘Source 3’ were placed in front of the plastic ZnS(Ag) Berthold BAI airborne particle detector for measurements covering 3 min. As shown in figure 7, the Berthold LB-BAI 9850 airborne monitoring system detects the presence of alpha and beta emitters, although it is obviously unable to identify the radionuclides that are producing the radiological anomaly. In addition, the total alpha and beta activities measured are several orders of magnitude less than the values of the total activities which were added to the filters. In the case of the advanced monitoring station, the spiked filters ‘Source 4’ and ‘Source 5’ were placed in front of the LaBr₃:Ce detector and 10 min spectra were acquired and analysed. As plotted in figure 8, ^{131}I and ^{137}Cs are clearly identify by the LaBr₃:Ce spectrometer, whereas the ^{241}Am on the spiked filter was below its MDA value (40 Bq). Moreover, as included in table 3, the analysis of ‘Source 4’ and ‘Source 5’ reported individual activities in good agreement with the concentrations that were deposited on the filters. For example, focusing in the lowest concentrations (Source 4), in the case of ^{137}Cs , the standard deviation is about 3%, and the measured maximum value is 54 \pm 9 Bq instead of the 65 Bq that were spiked; in the case of ^{131}I the standard deviation is about 10%, and the measured maximum value is 32 \pm 6 Bq instead of the 46 Bq that were added. By comparison of spiked and measured activities, the ^{131}I shows a higher discrepancy than the ^{137}Cs , although the high volatility of ^{131}I during spiked filter drying must be taken into account. Therefore, from the results, it is shown that the advanced monitoring station in early warning mode (10 min measurements) can identify and quantify low concentrations of man-made radionuclides in the air. Obviously, after 6 h measurement in surveillance mode, the activity of the ^{241}Am

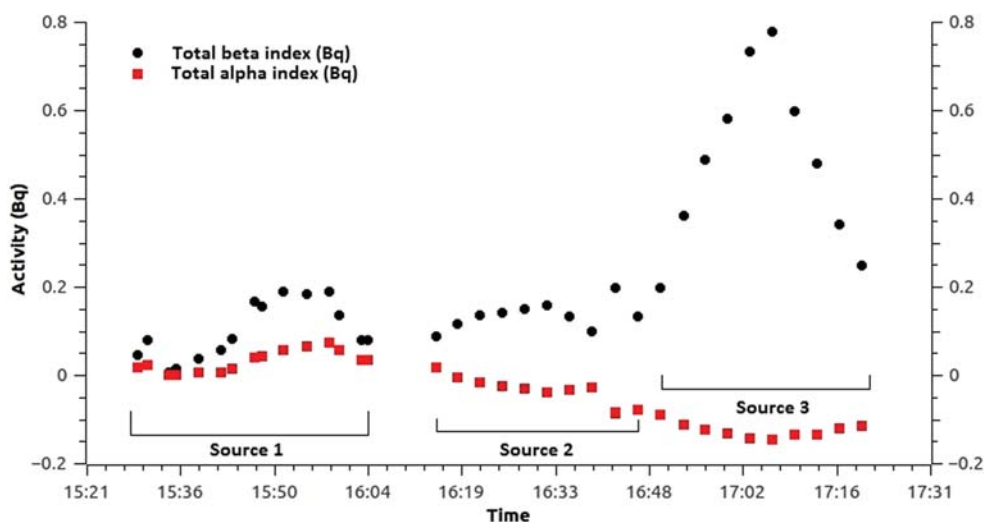


Figure 7. Total responses of the Berthold LB-BAI 9850 airborne monitoring system to the presence of alpha and beta sources (see table 2).

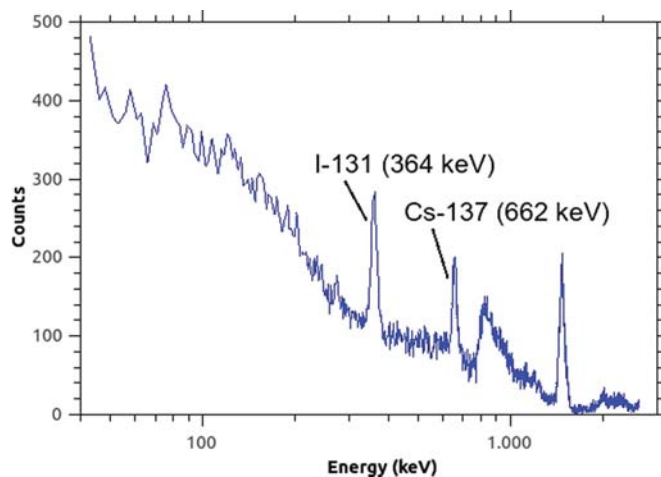


Figure 8. 10 min gamma spectrum of ‘Source 5’ spiked filter using LaBr₃:Ce of the advance airborne monitoring station.

added to the spiked filter would have been detected. It should be remarked that from the total activities determinations of MDA the specific activities can be determined considering the typical flow established in the monitoring station ($22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$) and the measurement time interval (10 minutes), resulting 11 Bq m^{-3} for ^{241}Am , 3 Bq m^{-3} for ^{131}I and 5 Bq m^{-3} for ^{137}Cs . These values are in good agreement with those reported in table 1

4. Conclusions

This paper has described the design and performance of an advanced monitoring station whose purpose is the automatic and quasi real-time determination and characterization of atmospheric radiological content if there has been an anomalous release of radioactive material into the environment.

The new station, by comparison with the LB-BAI 9850-6 Berthold system, includes innovative analytical and operational capabilities which can be summarised as follows: (i) The system is capable of measuring gamma dose rates and performing gamma spectrometry of the particle and gaseous fractions, providing data in quasi real-time to RARE's headquarters. It can identify the radioisotopes that might be produced during a possible radiological alteration, with it also being possible to quantify their corresponding activities. (ii) The gamma spectrometry used showed itself to be a powerful analytical tool, working in both the early warning and the surveillance monitoring modes simultaneously. For warning purposes (10 min spectra), the MDA values attained are fully appropriate. For surveillance functionality (6 h and 24 h spectra), the MDA values are below the reporting levels established by the CSN, the regulatory body in Spain. This analytical capability is an added value of the advanced monitoring station, because it is able to detect low level concentrations when an anomalous event has happened, even when dosimetry implications do not occur. (iii) The good performance of the acquisition custom software, the effective transmission and reception of the radiological and non-radiological information, and the support of the custom interpretation software provide assurance not only of the system's robustness during its everyday operation, but also of its competency to respond in a real emergency situation. The aforementioned new capabilities allow the assessment that our advanced monitoring station surpasses the Berthold station, which is exclusively based on global measurements and the use of single-channel analysers and, consequently, lacks the possibility of identification and quantification of radionuclides. Moreover the new monitoring station has advanced simultaneous double functionality as early warning and surveillance system. In view of the satisfactory operation of this advanced air monitoring system in our network during the last few months, two more of our stations are currently being upgraded in the same manner.

Acknowledgments

This work was made possible thanks firstly to funding received from Spain's Nuclear Safety Council for the project entitled 'Puesta a punto, gestión y optimización de una estación piloto para la detección automática y en tiempo cuasi-real de actividades de radiopartículas y radioyodos en aire', and secondly to funding from Spain's Nuclear Safety Council and the Government of Extremadura through the Collaboration Agreement for the Operation, Management, and Access to Data of the Automatic Environmental Radiation Monitoring Stations.

References

- [1] EURATOM 1957 Treaty Establishing the European Atomic Energy Community (Euratom)
- [2] Marugán I, Rey del Castillo C, Ramos L, Salas R, Sterling A, Luque S and Ramos L 2014 Programas de vigilancia radiológica ambiental. Resultados 2013. Colección de informes Técnicos 41.2014. Consejo de Seguridad Nuclear. (In Spanish). Technical report
- [3] Parages C, García J and River R 2013 Red de estaciones automáticas de vigilancia radiológica ambiental (REA) del CSN. Operación y resultados Años 2010 y 2011 (In Spanish) Tech. rep.

- [4] De Cort M, de Vries G, Breitenbach L and Dubois G 1997 EURDEP: A system for radiological data exchange in Europe *Proc. Sixth Topical Meeting on Emergency Preparedness and Response (San Francisco, 1997)* (American Nuclear Society)
- [5] Berthold G 1997 Combined particulates-iodine monitor *Manual LB BAI 9850*
- [6] Baeza A, Caballero J, Corbacho J, Ontalba-Salamanca M and Vasco J 2014 *Appl. Radiat. Isot.* **87** 57–60
- [7] Klett A, DeMey L, Erath W and Nemecek P 2002 *Nuclear Science, IEEE Transactions on* **49** 1932–4
- [8] Vargas A, Arnold D, Ortega X and Parages C 2008 *Appl. Radiat. Isot.* **66** 1627–31
- [9] Arnold D, Vargas A and Ortega X 2009 *Appl. Radiat. Isot.* **67** 833–8
- [10] HKO 2000 Environmental Radiation Monitoring in Hong Kong Tech. rep.
- [11] Sombéré L 2014 Surveillance radiologique de la Belgique. Rapport de synthèse 2013 *Tech. rep. Département Santé & Environnement* <http://www.fanc.fgov.be>
- [12] Poncela L Q, Fernández P, Arozamena J G, Sainz C, Fernández J, Mahou E S, Matarranz J M and Cascón M 2004 *Environment International* **29** 1091–6
- [13] Poncela L Q, Navarro P F, Fernández C S, Matarranz J M and García J A 2005 *J. Environ. Radioact.* **79** 347–54
- [14] Baeza A, Del Rio L and Vasco J 1997 *Radiochim. Acta* **79** 17–24
- [15] Berthold G 1996 Gamma dose rate detector *LB BAI 6361*
- [16] Hirose K 2016 *J. Environ. Radioact.* **157** 113–30
- [17] Steinhauser G, Brandl A and Johnson T E 2014 *Science of the Total Environment* **470** 800–17
- [18] UNSCEAR 2006 EFFECTS OF IONIZING RADIATION (UNSCEAR 2006 Report to the General Assembly, with scientific annexes vol II) (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation)
- [19] Porstendörfer J 1994 *J. Aerosol Sci.* **25** 219–63
- [20] Saphymo 2016 ALPHAGUARD Professional Radon monitor <http://saphymo.com>
- [21] Saphymo 2016 Gamma Tracer XL Geiger Müller Dose Rate Monitor <http://saphymo.com>
- [22] Vaisala 2016 Vaisala Weather Transmitter WXT530 Series <http://vaisala.com>
- [23] Baeza A, Corbacho J and Miranda J 2013 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60** 1400–7
- [24] Canberra 2009 Canberra Industries, 2009 Genie2000 Operations Manual
- [25] BOE 2001 Real Decreto 783/2001, de 6 de julio, por el que se aprueba el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes
- [26] PENCA 2009 Plan de Emergencia Nuclear Central Almaraz—Resolución de 20 de octubre de 2009, de la Subsecretaría, por la que se publica el Acuerdo de Consejo de Ministros de 16 de octubre de 2009, por el que se aprueba el Plan Director correspondiente al Plan de Emergencia Nuclear Exterior a la Central Nuclear de Almaraz, Cáceres (PENCA) (In spanish)
- [27] Engelbrecht R and Schwaiger M 2008 *Appl. Radiat. Isot.* **66** 1604–10
- [28] EURATOM 2000 Official Journal of the European Communities. L191. Commission recommendation of 8 June 2000 on the application of Article 36 of the Euratom Treaty concerning the monitoring of the levels of radioactivity in the environment for the purpose of assessing the exposure of the population as a whole (notified under document number C(2000) 1299) Tech. Rep. 2000/473/Euratom
- [29] Milbrath B, Fast J, Kouzes R, Choate B, Hensley W and Schweppe J 2006 *Technical Report PNL-15831* Pacific Northwest National Laboratory
- [30] Baeza A et al 2012 *J. Environ. Radioact.* **114** 138–45
- [31] Masson O et al 2011 *Environmental Science & Technology* **45** 7670–7

Artículo 4

Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks

Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks

**A Baeza¹, J M Caballero, J Á Corbacho,
M Á Ontalba Salamanca and J Vasco**

LARUEX, Department of Applied Physics, Faculty of Veterinary Science,
University of Extremadura, Avenida Universidad s/n, E-10003 Cáceres, Spain

E-mail: ymiralle@gmail.com

Received 9 August 2013, revised 27 January 2014

Accepted for publication 29 January 2014

Published 4 April 2014

Abstract

The main objective of automatic environmental radiation warning networks is to quantify a set of radiological parameters corresponding to the medium being monitored (water, air, etc) in the shortest possible time so as to be able to provide rapid and precise information on the medium's radiological status, and on any alterations that may occur and their severity. Specifically, in this paper we present the substantial improvements that have been carried out in an automatic near-real-time radiation monitoring of a water system belonging to Radiation Alert Network of Extremadura (RARE) in southwest Spain. These improvements are based on the incorporation of (i) a gamma spectrometry system with solid scintillation detectors and compact digital electronics, (ii) continuous measurement of the water flow that is being monitored, (iii) improvements in the maintenance tasks required to optimise the operation of this type of equipment and (iv) the controlled and automated collection of water samples so that, in the case of a possible radiological anomaly, it will be possible to perform ulterior specific complementary determinations in a low-background laboratory.

Keywords: water radiation monitoring, surveillance, gamma spectrometry, real time measurements

1. Introduction

The development of radiological warning networks [1, 2] was motivated by the need to monitor the radioactivity in the effluent entering the environment from various sources—industries connected with the nuclear fuel cycle, research centres and hospitals—during controlled releases and especially in accidental situations. Most of the controlled releases from the

¹ Author to whom any correspondence should be addressed.

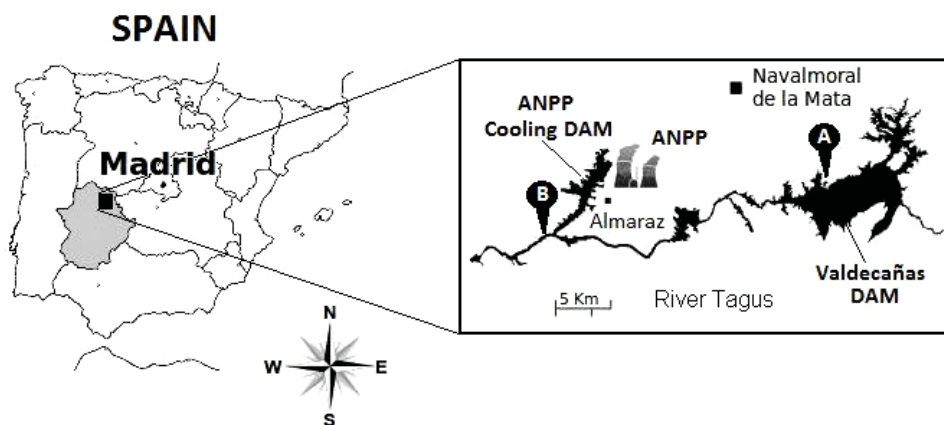


Figure 1. Location of the RARE's water monitoring stations on the river Tagus. (A) Station located upstream from the ANPP's effluent discharge point. (B) Station located downstream from the ANPP's effluent discharge point.

mentioned facilities are in the form of gases and aerosols into the atmosphere or of aqueous solutions into rivers or the sea [3]. They always have to comply with the limits established by the legislation in force in each country. Specifically, in Europe, this is Directive 96/29/EURATOM, which is the basis of the Spanish law [4].

In Spain, there are several near-real-time radiological warning networks. Some have a nationwide coverage, such as the automated station network (REA) managed directly by the Nuclear Safety Council (CSN) and the radiation alert network (RAR) managed by Civil Protection. Others have been implemented and are run by some of the country's autonomous communities, such as those of Extremadura, Catalonia, Basque Country and Valencia [5]. Their common objective is to make measurements of the radioactivity levels of the different media they are monitoring in as close as possible to real time. They will then be able to report the detection of any anomalous radiological values in the shortest possible time, so that the most appropriate measures can be taken as quickly as possible in each case. To this end, these networks include automated stations monitoring in near real time the radioactive content of the air and, in some cases, of the water.

In 1990, the University of Extremadura initiated the design, construction and management of the radiation alert network of extremadura (RARE) [6]. This was designed to acquire reliable near-real-time information on the environmental radiological status in the vicinity of the Almaraz Nuclear Power Plant (ANPP) by measuring the radioactivity levels of the air and water at different points around the plant. The phased development of this network has been in two senses. On the one hand, there has been an increase in the number of stations comprising the network, including some beyond the environment of the ANPP. On the other, there has been an increase in the number of parameters, both radiological and others, that some of the stations measure. At present, the RARE includes 12 permanent stations—ten monitoring atmospheric aerosols and gases, and two monitoring water—and one mobile laboratory [7]. The latter allows dosimetric/radioactive determinations to be made where and when required, with the capability of transmitting in near real time the georeferenced data of the detected levels. Many of these stations can quantify other, non-radiological parameters (such as meteorological data) that are related to their air and water environments.

The two water monitoring stations of the RARE are at different points on the river Tagus (figure 1). One of them is located on the Valdecañas reservoir, upstream of the ANPP's effluent

outlet, but downstream of a significant number of facilities that may discharge radionuclides into the waters of the Tagus. As an example, the Trillo nuclear plant is at about 300 km upstream. The other station is located near the discharge channel into the river Tagus from the ANPP's cooling reservoir. These two stations are thus aimed at determining both the radioactive concentration of the Tagus's waters as they enter Extremadura and the possible radioactive impact due to the water employed for cooling the ANNP, respectively.

The RARE's two water monitoring stations were implemented with widely used and highly robust detection systems. With subsequent technological advances, these systems have serious limitations today, the principal one being that indirect activity determinations are made of only two radionuclides, ^{131}I and ^{137}Cs . The objective of this work is therefore to describe the set of modifications made to the instrumentation to significantly improve the analytical capacity of these two stations. In particular, the number of radionuclides capable of being identified was significantly increased, and the precision and accuracy of the activity concentration determinations were enhanced.

2. Material and methods: description of the RARE's original two water monitoring stations

The RARE's originally installed water monitoring stations were Berthold BAI-9125 systems [8]. This equipment consists of (i) a $3'' \times 2''$ NaI(Tl) scintillation spectrometer, with an 8% energy resolution at 661.7 keV, (ii) analysis electronics and (iii) a 25 l capacity stainless steel vessel. The electronics consists of a high voltage source working in the range of 400–1400 V, a signal amplifier and two single-channel analysers. The registered counts are proportional to the specific activities of two pre-selected radionuclides which may be present in the water flowing through the 25 l vessel. This vessel is cylindrical, with a diameter of 32.79 cm and a height of 42 cm. Its bottom is hemispherical with a sump. Its top is a flat 1 cm thick lid in which are located the water inlet and outlet tubes, with, at its centre, a cylindrical steel and PVC cavity containing the detector so that it is not in direct contact with the water. The vessel is surrounded by 5 cm thick lead shielding of dimensions 92 cm \times 47.5 cm \times 47.5 cm in order to attenuate the background radiation from the surroundings [8].

The BAI-9125 system is designed to facilitate the connection of its electronics to a computer via an RS232 port. In this way, the specific activity values it provides, calculated from the total counts recorded by the two single-channel analysers, can be post-processed on a computer. The RARE has software that was specifically developed for this purpose. This computer is connected to a radio-frequency transmitter which periodically sends (roughly every 3 min) the aforementioned data to the RARE's logistic centre in Cáceres.

Together with the detection and data management systems, the standard configuration of the RARE's water monitoring stations includes a suction pump to circulate the water from the river Tagus through the vessel for monitoring. Other standard devices included in these stations are shown in figure 2. One is a mechanical flow meter which has manually operated regulatory valves and measures the real-time flow rate at the inlet to the vessel. Another consists of an uninterruptible power supply (UPS) and a generator which, in case of power failure, together guarantee at least 8 h autonomous operation.

The mode of operation of these stations is as follows. The pump draws water from the river Tagus and passes it into the vessel, with the selected flow rate being 33 l min^{-1} [8]. Then, with the detector integration time for each measurement being set at 180 s, about 100 l of water flow through the vessel during each measurement cycle. This is the result of a trade-off between obtaining near-real-time activity levels and low values of the minimum detectable activities (MDAs) which, in the conditions of these detection systems, are about 0.0016 and 0.003 Bq l^{-1}

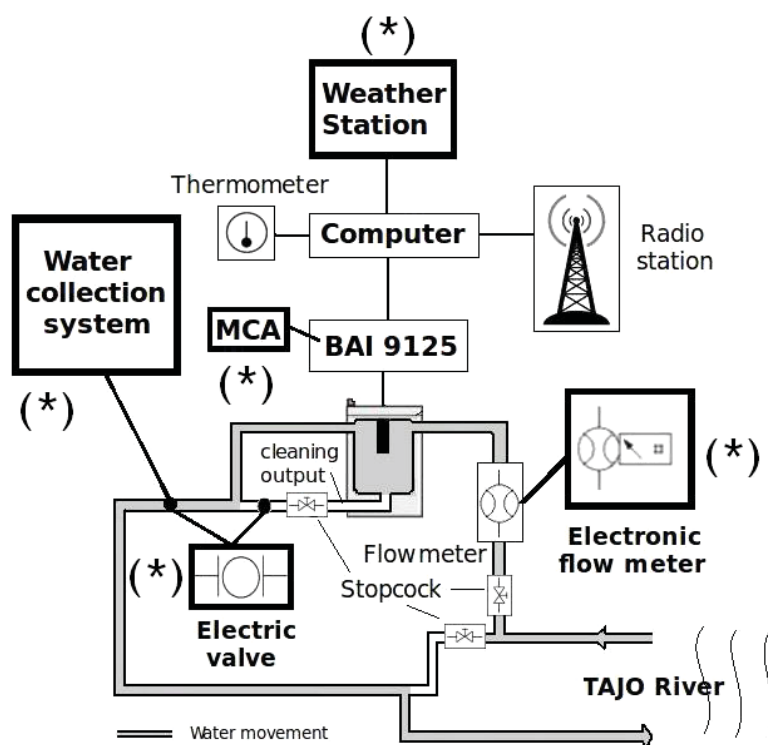


Figure 2. Operating diagram of the RARE's BAI-9125 water monitoring station and of the pilot station into which it has finally been transformed. Devices marked by (*) correspond to the new incorporations in the pilot station, which either replace or supplement the original equipment.

for ^{131}I and ^{137}Cs , respectively. To determine the ^{131}I and ^{137}Cs activities, each of the two existing single-channel analysers assigns all recorded counts in the respective energy range of values for each of the two aforementioned radionuclides. In particular, the ranges selected [8] are 320–400 keV for ^{131}I (whose photopeak emission is at 364 keV) and 596–728 keV for ^{137}Cs (which is in secular equilibrium with $^{137\text{m}}\text{Ba}$, which decays by 662 keV gamma emission).

The resulting ^{131}I and ^{137}Cs activity levels, together with other complementary non-radiological data, are sent via radio frequency to the RARE's Logistics Centre. There, they are automatically analysed and re-directed to the centres responsible for making the appropriate decisions.

3. Analysis and results

3.1. Operational limitations of the current RARE water monitoring stations

Figure 3 shows the ^{131}I and ^{137}Cs specific activity data recorded during 2011 for the analysis of water samples at the Valdecañas reservoir station (labelled A in figure 1). One first observes that both activity levels are systematically greater than zero, contrary to what might initially have been expected since this sampling point is more than 300 km downstream from the Trillo nuclear power plant, and upstream and beyond the influence of the ANPP. Second, one observes

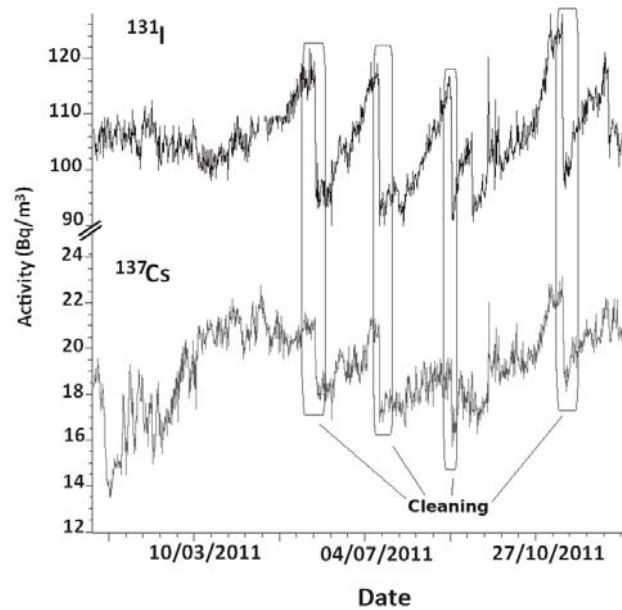


Figure 3. Temporal evolution of the ^{131}I and ^{137}Cs values recorded by the original BAI-9125 water monitoring station.

the temporal evolution of the total counts to be a series of steady rises followed by sudden drops, a pattern that is simultaneous for each of the two single-channel analysers (one for the ^{131}I energy range and the other for ^{137}Cs). This regular behaviour of the apparent activity concentrations of these two artificial radionuclides is mainly due to the increasing presence of natural radionuclides in the sediment that is progressively accumulated inside the vessel. The sediment contributes to the growth of the single-channel counts for two reasons. One consists of the photons directly emitted in intense gamma decay lines of natural radionuclides within the single-channel analysers' pre-defined energy windows, e.g., the 351.9 keV line of ^{214}Pb and the 609.4 keV line of ^{214}Bi , among others. The other consists of the Compton photons emitted by intense natural radionuclide gamma decays at higher energies than the energy windows, e.g., the 911.0 keV line of ^{228}Ac , the 1460.7 keV line of ^{40}K and the 1764.5 keV line of ^{214}Bi , among others [9, 10].

Because of this behaviour, it was established that when the apparent values of the ^{131}I specific activity reach an average value of about 110 Bq m^{-3} for three consecutive days then the sediment accumulated inside the vessel should be cleaned out. This sediment can sometimes occupy up to 20% of the vessel's total volume. This cleaning operation is responsible for immediate drops of up to 50% in the apparent ^{131}I and ^{137}Cs activity levels, as shown in figure 3.

Another set of values that requires appropriate interpretation is that corresponding to the increases in the ^{131}I and ^{137}Cs specific activities that occur during periods of relatively intense rainfall at the monitoring site. As seen in figure 4, such rainfall events lead to a significant and apparent increase in the ^{131}I and ^{137}Cs specific activities. The reason is that, at these times, surface run-off leads to there being a greater presence of suspended solid particles in the river Tagus's water. There is thus a corresponding increase in the natural isotope content whose associated photopeaks and Compton background produce the temporary increases in the two single-channel analyser counts.

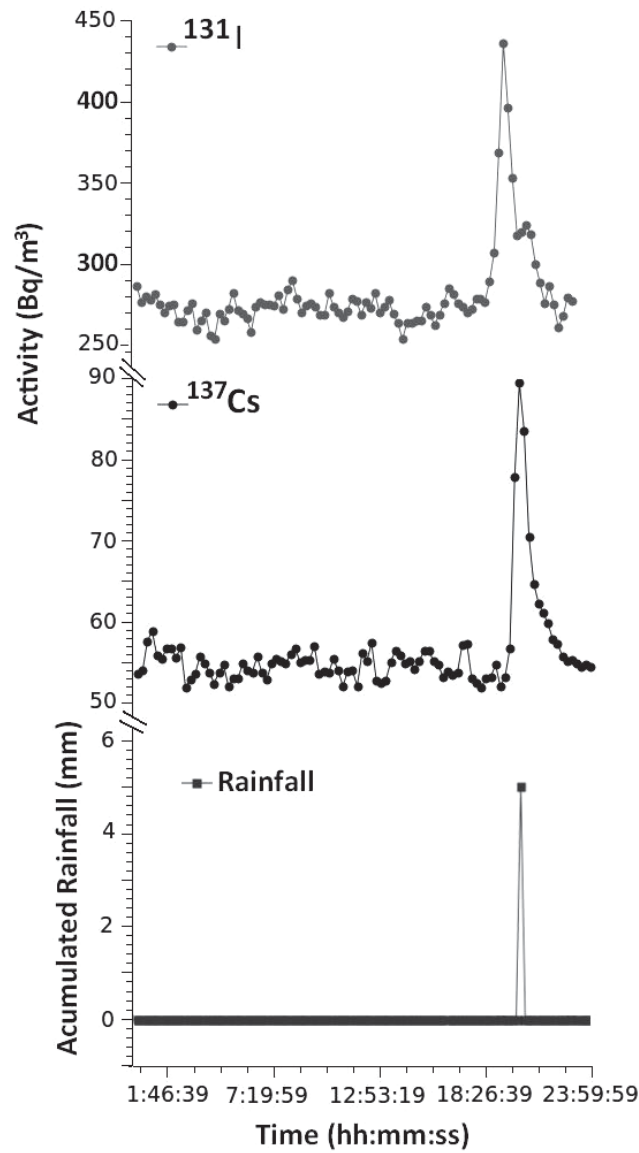


Figure 4. Increments in the supposed ^{131}I and ^{137}Cs activities recorded by the original water monitoring station and the rain gauge measurements recorded by the RARE's weather station.

In sum, the current configurations of the RARE's water radioactivity monitoring stations present the following limitations.

- (a) Improper allocation of the two selected radionuclides' radioactive levels in the water, with detected increases in the counts very frequently not really being attributable to ^{131}I and ^{137}Cs gamma emissions.
- (b) Limited information about the radioactive content of the water being monitored, since in principle it is only possible to identify the presence of the two pre-selected radionuclides.

- (c) Lack of any system to determine remotely whether the water being analysed is actually flowing through the vessel or even whether the vessel is empty due to some malfunction of the suction pump.
- (d) Inability to take a water sample for subsequent laboratory analysis when the monitoring has detected anomalous rises in the counts. Eventually, this analysis would be made in a low-background laboratory, with far more precise radiochemical techniques, which allow such anomalies to be reliably confirmed or rejected, and, where appropriate, the full extent of the anomaly to be quantified.
- (e) The absence of an automated system to eliminate the sediment that accumulates inside the vessel, and thus keep the background recorded by the detector sufficiently low, and minimise the work of maintenance of the monitoring station.

3.2. Improvements introduced in the new pilot water monitoring station

To increase the RARE water monitoring stations' current capabilities, and to eliminate or at least significantly reduce the limitations detailed in section 3.1, the following four new devices have been incorporated into the system's standard structure (see figure 2).

3.2.1. New detection system. The new detection system consists of a NaI(Tl) gamma spectrometer with a 3" × 2" crystal with an energy resolution of 8% at 661.7 keV, coupled to a compact digital multichannel analyser. The versatility of the electronics of the analyser allows the use of other types of scintillation detectors, such as LaBr₃(Ce), which have better resolution than the NaI(Tl) detector. The detector's electronics includes an integrated high voltage source, a pre-amplifier, an amplifier and a 2048-channel multichannel analyser, and can be controlled locally via a USB connection or remotely via an Ethernet connection [11]. The compactness of this system allows it, once coupled to the detector, to be put entirely inside the unmodified vessel.

The analysis of the gamma spectra generated is performed by the commercial software package GENIE2K of CANBERRA [12]. The control of the new electronics of the detection system and the handling of the data and results are performed by a new computer program developed in our laboratory based on the program used in the previous RARE stations [6]. This new program is also responsible for transmitting the data to the RARE's Logistic Centre for further processing.

3.2.2. Weather station. A weather monitoring device has been installed at the site of this pilot system. The meteorological parameters it measures are temperature, rainfall, wind speed and direction, and relative humidity, with an accuracy of 3%–5% depending on the parameter.

3.2.3. Electronic flow meter. An electronic flow meter has been installed in the water uptake pipe to measure the flow through the vessel, with an accuracy of 0.5%. The data it provides are monitored by the LARUEX software station. It is thus possible to know at all times the volume of water that is being analysed during each gamma spectrum's acquisition time. It also provides instantaneous and precise information on the state of the pumping system.

3.2.4. Flow distribution valves. Two electromechanical flow distribution valves, operating at 220 V and 1.5 A, can be controlled either remotely by the LARUEX software from the Logistic Centre, or locally. They are responsible for distributing the water through the installation's different pipes. One valve is located at the vessel's water outlet. It allows 15 l aliquots to be retained in an auxiliary tank immediately after the near-real-time gamma spectrometric

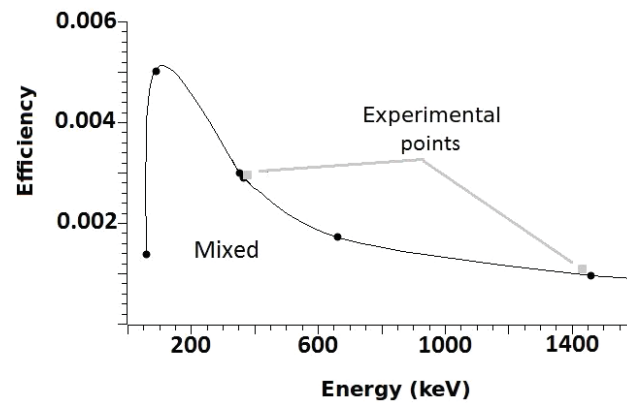


Figure 5. The mixed efficiency calibration curve of the installed gamma spectrometry system.

measurement if photopeaks with higher activity than normal appear in the spectrum. The other valve is located in the pipe from the vessel's sump, as shown in figure 2. It allows automated cleansing of the vessel when some pre-set count threshold has been reached.

3.3. Calibration of the new spectrometry system

The incorporation of the new gamma spectrometry system into the water monitoring station made it necessary to determine the detector's efficiency calibration curve. To this end, a mixed calibration procedure was followed, using both Monte Carlo simulations and activity determinations of samples of known activities.

The simulations were made using the commercial program LabSOCS [13]. This program allows one to perform efficiency calibrations of detectors characterised by many different geometries and matrices. For the present case of the NaI(Tl) detector inside the steel vessel, it was necessary to input the composition and the inner and outer dimensions of the materials in both the vessel and the detector's crystal and protective casing.

The experimental activity determinations were performed at energies of 364 and 1460.7 keV. Two solutions of known activity dissolved in 25 l of doubly distilled water were used. One consisted of 615.0 ± 0.1 g of KCl, i.e., 322.5 g of K. This amount of K corresponds to an activity of 8931.4 ± 0.2 Bq of ^{40}K , given the conversion factor of $0.02769 \text{ Bq mg}^{-1}$ [14]. The other was a ^{131}I liquid standard, with an activity at the measurement time of 3900 ± 140 Bq.

The resulting final efficiency calibration curve is shown in figure 5.

3.4. Radiological analysis results for the pilot water monitoring station

The implementation of this gamma spectrometry system has greatly improved the radiological detection system in the existing water radiation monitoring stations. It has replaced the previous indirect recording of the activities of only two pre-fixed photopeaks by displaying and recording all the photopeaks whose emission lines lie within the 80–1900 keV range. This makes it far easier to track alterations that can occur due to the presence of both naturally occurring radionuclides and/or those of artificial origin. Doubly distilled water is periodically introduced into the vessel to determine the ambient background gamma spectrum. This background will

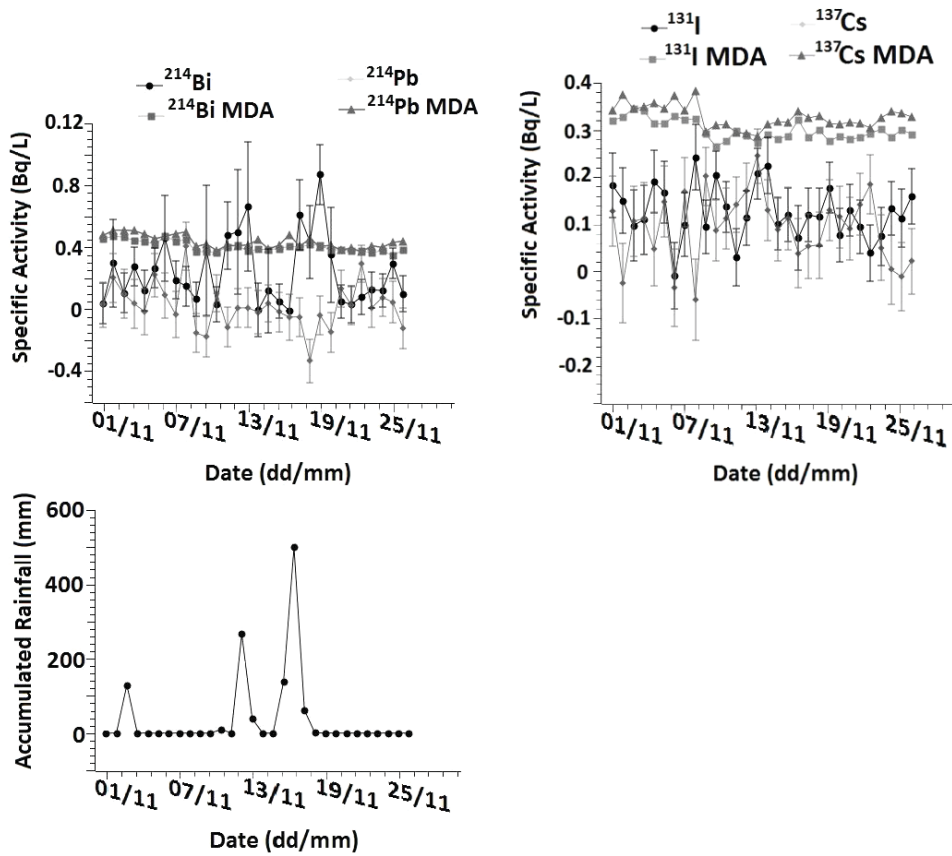


Figure 6. ^{131}I , ^{137}Cs , ^{214}Bi and ^{214}Pb activity values (the last two are natural radionuclides with gamma emission lines close in energy to the most intense lines of ^{131}I and ^{137}Cs) during heavy local rainfall events in 2011 (after the modification of the station).

then be subtracted from the systematically recorded gamma spectra of the different water samples analysed. Together with the efficiency calibration curve, this makes it possible to accurately quantify the temporal evolution of both the specific activity and the MDA of each of the radionuclides considered. This new configuration of the water monitoring station has resolved one of the limitations presented by the original design—the presence of gradual increases in the measured values of the ^{131}I and ^{137}Cs specific activities due to the build-up of natural radionuclides in the sediment accumulating in the vessel. Figure 6 shows the ^{131}I and ^{137}Cs activity levels detected at the Valdecañas reservoir station during November 2011. One can observe that the net values detected are consistently below the equipment’s MDA. Unlike the case with the original system, it can be seen that these two activity values are unaffected by the greater or lesser temporary presence of suspended run-off particles due to intense local rainfall (events that are registered by the weather station outside the monitor).

This is not the case, however, for the specific activity of the natural radionuclide ^{214}Bi . One can observe from figure 6 that it rises above the MDA when there is strong local rainfall, as a consequence of increased dispersed solids that are taken up by the pump and pass through

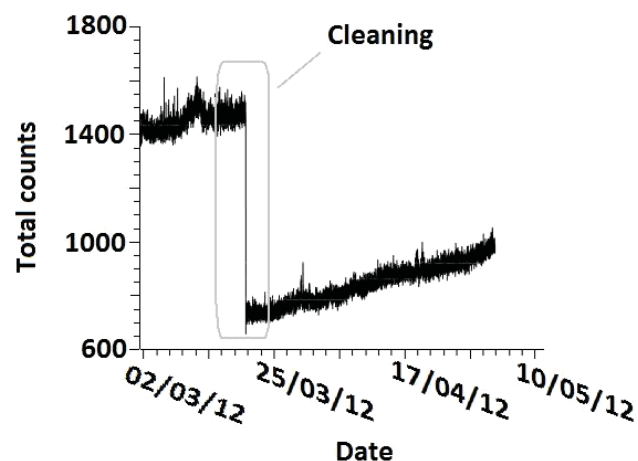


Figure 7. Reduction of the total gamma spectrum counts registered by the new pilot monitoring station during an automatic cleaning of the vessel.

the vessel. This radionuclide is thus a timely indicator of the level of suspended matter in the water.

As was reported in a previous paper [15], from radiochemical analyses and long time and low-background gamma measurements, the average values and standard deviations (2σ) of ^{137}Cs in the river Tagus during 1994–9 were $3.0 \pm 2.9 \text{ mBq l}^{-1}$ in water and $1.7 \pm 0.8 \text{ Bq kg}^{-1}$ dry in sediment for the Arrocampo sampling point (labelled B in figure 1). Therefore, using ^{137}Cs as the main indicator for current manmade radioactive contamination of the Spanish environment after world weapons tests and/or nuclear accidents, it can be assessed that background levels in the river Tagus stay below the ^{137}Cs MDA for the pilot water monitoring station.

The pilot system has also permitted efficient control of the accumulation of sediment inside the vessel. As the sediment builds up, there is a concomitant increase in the total gamma count (figure 7). This parameter is more sensitive to the amount of undesirable sediment that has built up than the temporal evolution of the measured activity of the primordial natural radionuclides that it contains, such as ^{214}Bi and ^{40}K . In this way, automatic cleansing of the interior of the vessel can be activated (by remotely opening the valve located in the conduit of the vessel's sump) when a certain total count has been reached, estimated at approximately 1550 counts in a spectrum of 10 min. This estimate was made to be equivalent to the presumed ^{131}I activity of 110 Bq l^{-1} that the initial monitoring system assigned as the reference value at which to clean the vessel, because it corresponded to an accumulation of sediment in the bottom of the vessel of about 20% of the total volume.

4. Conclusions

The modifications made to one of the RARE's Berthold BAI-9125 water radiation monitoring stations have considerably enhanced its radiological monitoring and analytical capacity. In summary, the main advances are the following.

- (1) The incorporation of gamma spectrometry in this type of monitoring station allows broader, near-real-time, monitoring by making it possible to identify the presence of a large number

of radionuclides without their having to be pre-selected, and to calculate directly and accurately their corresponding specific activities. As a consequence, this has resolved the limitation that the initial BAI-9125 system possessed of providing unreal increased counts of the only two radionuclides monitored whose origin it was necessary to interpret indirectly.

- (2) The electronic flow meter, the flow distribution valves and the auxiliary tank constitute a major system of support for the efficacy of the station's operation. They allow automatic alerts to be provided of any inappropriate behaviour of the mechanical components, which is indispensable for the station's routine operation. They also allow samples to be collected and preserved at any time, in order to perform subsequent, more precise, radiochemical analyses, and some of the station's necessary maintenance tasks to be performed remotely.
- (3) Finally, the installation of a weather station provides non-radiological complementary data that facilitate the correct interpretation of any alterations in the concentration of natural and artificial radionuclides measured in the waters being monitored.

Acknowledgments

This work was made possible thanks, firstly, to funding from Spain's Nuclear Safety Council and the Government of Extremadura, through the Collaboration Agreement for the 'Operation, Management, and Access to Data of the Automatic Environmental Radiation Monitoring Stations', and, secondly, to funding received by the LARUEX (FQM001) research group from the Government of Extremadura in its IV Regional R&D + i Plan, DOE No 250 of 30.12.2010. We also thank C Pérez for his helpful collaboration in the vessel modelling.

References

- [1] Eisenbud M and Gesell T *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources* 4th edn (New York: Academic)
- [2] Medici F 2001 The IMS radionuclide network of the CTBT *Radiat. Phys. Chem.* **61** 689–90
- [3] McDonald P, Cook G T, Baxter M S and Thomson J C 1990 Radionuclide transfer from Sellafield to south-west Scotland *J. Environ. Radioact.* **12** 285–98
- [4] Real Decreto 783/2001. BOE 26 de Julio de 2001 (in Spanish)
- [5] Informe del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) al Congreso de los Diputados y al Senado, 2012, Cap. 7. Red de Estaciones Automáticas, p 289. Colección: Informes del CSN Referencia: INF-01.12, ed. CSN Madrid, M-18573-2013, http://www.csn.es/index.php/es/?option=com_maps&view=mappoints&Itemid=32&lang=es (accessed 1 August 2013) (in Spanish)
- [6] Baeza A, del Puerto J A, del Rio M, Miró C, Ortiz F and Paniagua J M 1993 Development and operativity of a real-time radiological monitoring network centred on the nuclear power plant of Almaraz (Spain) *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **40** 2014–20
- [7] Baeza A, Corbacho J A and Miranda J 2013 Design and implementation of a mobile radiological emergency unit integrated in a radiation monitoring network *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60** 1400–7
- [8] BAI-9125 1992 *Manual* Berthold Technologies
- [9] Baeza A, del Rio M, Miro C and Paniagua J 1994 Natural radionuclide distribution in soils of Cáceres (Spain): dosimetry implications *J. Environ. Radiact.* **23** 19–37
- [10] Murray A S, Marten R, Johnson R and Martin P 1987 Analysis for naturally occurring radionuclides at environmental concentrations by gamma spectrometry *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **115** 263–88
- [11] OSPREY™: Universal Digital MCA Tube Base for Scintillation Spectrometry: www.canberra.com/products/438298.asp (accessed 1 August 2013)

- [12] Genie2K. Genie 2000 Gamma Analysis Software, Canberra Industries: www.canberra.com/products/radiochemistry_lab/genie-2000-software.asp (accessed 1 August 2013)
- [13] Moreira M C F, Conti C C and Schurri R 2010 A new NaI(Tl) four-detector layout for field contamination assessments using artificial neural networks and the Monte Carlo method for system *Nucl. Instrum. Methods A* **621** 302–9
- [14] Norma UNE 73340-2: 2003. Procedimiento para la determinación de la radiactividad ambiental. Métodos analíticos. Parte 2: Índice de actividad beta resto en aguas mediante contador proporcional (in Spanish)
- [15] Miró C, Baeza A, Madruga M J and Periañez R 2012 Caesium-137 and Strontium-90 temporal series in the Tagus river: experimental results and a modelling study *J. Environ. Radiact.* **113** 21–31

Artículo 5

Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels

Journal Pre-proof

Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels

A. Baeza, J.M. Caballero, J.A. Corbacho, M.A. Ontalba, J. Vasco



PII: S1350-4487(20)30088-3

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106324>

Reference: RM 106324

To appear in: *Radiation Measurements*

Received Date: 26 October 2018

Revised Date: 21 March 2020

Accepted Date: 24 March 2020

Please cite this article as: Baeza, A., Caballero, J.M., Corbacho, J.A., Ontalba, M.A., Vasco, J., Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels, *Radiation Measurements* (2020), doi: <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106324>.

This is a PDF file of an article that has undergone enhancements after acceptance, such as the addition of a cover page and metadata, and formatting for readability, but it is not yet the definitive version of record. This version will undergo additional copyediting, typesetting and review before it is published in its final form, but we are providing this version to give early visibility of the article. Please note that, during the production process, errors may be discovered which could affect the content, and all legal disclaimers that apply to the journal pertain.

© 2020 Published by Elsevier Ltd.

Response of an automatic air monitoring gamma-spectrometry station based on sample retention to rainfall-caused dosimetric alterations and to environments with a wide range of radon levels

A. Baeza, J.M. Caballero, J.A. Corbacho, M.A. Ontalba and J. Vasco

Environmental Radioactivity Laboratory (LARUEX), Faculty of Veterinary Sciences, University of Extremadura, 10003-Cáceres, Spain

Corresponding author: corbamer@unex.es

Abstract

An increase in ambient dose equivalent rate during precipitation events is a well known phenomenon that is easily identified by dose rate monitoring networks. Despite the invaluable information these monitors usually provide, they cannot identify the radioisotopes involved in these radiological alterations nor quantify their activity concentrations. Commercial systems based on passive gamma spectrometry using scintillation detectors allow to identify the radionuclides that increase during rainfall events but they cannot infer if they are deposited on ground or linked to the airborne particles. In 2016 an air monitoring station based on sample retention and scintillator gamma spectrometer was custom-designed and integrated into the automatic and quasi-real-time Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) in south western Spain. In this work, it is presented how the capabilities of our system take advantage of the distinction between the radionuclides that are deposited and the radionuclides that are presented in airborne during rainy events.

However, during the operation of RARE's homemade monitoring station based on sample retention and gamma-spectrometry, some shortcomings to meet the requirements appertained to real-time radiological networks, such as efficiency, were identified. Concretely, the station was targeted at monitoring the activity of gamma-emitting radioisotopes in airborne, but the relatively

poor energy resolution of the gamma scintillation detectors employed meant that exceptionally high concentrations of radon decay products (such as ^{214}Pb) in the area made it very difficult to identify and quantify the activity levels of some anthropogenic radioisotopes such as ^{131}I , with there being a significant number of false positives and substantial increase in those isotopes' minimum detectable activities. This paper describes the simple approach that has been implemented in order to overcome the aforementioned analytical difficulty in situations where the activity concentration of radioiodine in air could be of the order of natural radon concentration, for example, when effluent releases from nuclear facilities permitted under authorities' regulations.

Key words: Radon; Rainfall events; Gamma spectrometry; Ambient dose equivalent rate; Radioiodine; Radiological Emergency Network.

1. Introduction

Geiger-Müller counters are still today regarded as the simplest radiation sensors to use in an automatic and quasi-real time radiological emergency network. They are sensitive over an extended operational range of dose, reliable, and robust under harsh environmental conditions. In continuous monitoring of the radiological background in a particular geographical area, they have the capabilities required to detect minimal increments of radiation, such as those that frequently occur naturally.

In fact, gamma dose rate is considered the fundamental radiological parameter in the automatic quasi-real-time Radiological Alert Network of Extremadura (RARE, its acronym in Spanish) operating in Extremadura region, SW Spain, and Portugal. For its determinations commercial Geiger-Müller counters are used and three notification levels have been implemented for the measurements of the gamma dose rate. **Level 1** is triggered when the Geiger-Müller monitored level exceeds by 30% the annual average dose rate due to the natural radioactive background of that location. This reference level serves to allow one to check the sensitivity of the monitors for detecting weak variations of the dose rate such as those produced by weather variations of natural

origin such as (a) the seasonal and diurnal variations of the natural background dose rate caused by the fluctuating concentration of ^{222}Rn daughters in air due to the exhalation of radon from the ground and their turbulent mixing in the air influenced by meteorological conditions (Lebedyte, 2003), and (b) the increases in dose rates due to rainfall scavenging the ^{222}Rn daughters ^{214}Pb and ^{214}Bi from the atmosphere (Fujinami, 1996) when the air masses come from continental areas (Inomata, 2007). Although those studies elucidated the well-known mechanism of scavenging of radon daughters by precipitation from the atmosphere, they do not include analytical measurements to justify where they are accumulated. **Level 2** and **Level 3** were set at 0.114 and 0.228 $\mu\text{Sv/h}$ above Level 1 for each given monitor location, and are the pre-alarm and alarm levels of the aforementioned network, respectively. These values were chosen because they correspond to 50% and 100% of the 1 mSv/y annual dose limit for personnel not professionally exposed to ionizing radiation (Euratom, 2013).

Despite the solidly proven capabilities of Geiger-Müller counters, an inherent limitation of these devices is that the external dose rate, while relevant, is just an overall measurement. For this reason, if a radiological anomaly should occur, with these detectors it will be impossible to distinguish whether the cause is natural, anthropogenic, or both, and thus may seriously interfere with automatic environmental monitoring around nuclear facilities (Mercier, 2009). The only way to identify radioisotopes and quantify their activity concentrations in quasi-real-time is to use gamma spectrometry systems. There are currently commercial solutions available, (Bertin, 2018), (Evinet, 2019) although all of them involve passive systems (i.e. without sampling) and therefore, they are focused on radiological external contamination and not on inhalation processes. Moreover, those systems calculate the ambient dose equivalent $H^*(10)$ from gamma-ray spectra obtained with scintillation detectors (Yi, 1997), (Casanovas, 2016), (Vargas, 2018). By comparison with Geiger-Müller counters, gamma spectrometers have a limited measurement range for $H^*(10)$ determinations that depends on the composition and the size of the crystal. In fact, commercial spectrometers are offered with an optional Geiger-Müller. In Catalonia network (NE, Spain) two

kinds of monitors have been developed for gamma spectrometry aerosol surveillance, the first using a particulate (Casanova, 2014a) and the second using two scintillation detectors to characterise a potential nuclear release by the evaluation of the contribution of a radioactive cloud and the deposition on the ground using direct measurements (Casanovas, 2014b). In this context, atmospheric monitoring stations based not only on gamma dose rate determinations by Geiger-Müller counters (passive measurements) but also on sample retention and gamma spectrometry of its gaseous and the particulate fractions have been developed in the RARE network (Baeza, 2017). It allows the automatic monitoring of gamma dose rate alterations and, moreover, the identification of the isotopes presented in the airborne and the quantification of their activity concentrations. This capability is essential for the distinction and evaluation of the natural and the anthropogenic contributions to the inhalation dose rate.

Additionally, the RARE's spectrometric system has the dual capability of working in early warning and surveillance monitoring modes simultaneously and, in both situations, the determinations are related to the inhalation of air, as part of the cycle of breathing. For the former mode, 10-min spectra are collected and analysed. For the latter mode, accumulated 6-h and 24-h spectra are analysed, with their Minimum Detection Activity (MDA) values being below the reference levels (Euratom, 2013) set out by the Nuclear Safety Council of Spain, the regulatory body in Spain.

The advantages of using scintillation detectors such as NaI:Tl or LaBr₃:Ce in real-time radiological network spectrometry systems are their good efficiency and relative energy resolution (2.5-3% at 662 keV for LaBr₃:Ce detectors, and 6-7% at 662 keV for NaI:Tl detectors). This energy resolution is, however, insufficient to resolve very close photopeaks such as those of 364.9 keV of the artificial isotope ¹³¹I and 351.9 keV of the natural origin ²¹⁴Pb. This interference requires detailed treatment because ¹³¹I is one of the critical isotopes, for example, in case of authorised low level radioactivity releases from most of the nuclear facilities or even hospitals. As an example, during the Fukushima nuclear accident, ¹³¹I was the only radioiodine that was detected in Europe (Masson, 2011)(Baeza, 2012). The ¹³¹I concentration was about 3 mBq/m³ and, obviously, its relevance was negligible, from

the radioprotection point of view. However, it is very difficult to explain to competent authorities, public opinion and not specialized people that an automatic early warning network is not able to detect such low anthropogenic concentrations in air. The importance of deconvoluting ^{131}I and ^{214}Pb is of particular relevance when the airborne monitoring station is situated in a relatively high radon level scenario. If there occur natural rises of radon concentration then the ^{214}Pb photopeak in the spectrum will increase significantly and many ^{131}I false positives will be registered and, consequently, the effectiveness of the alert system will be drastically affected. This difficulty has been mainly faced in different automatic monitoring systems, using computational procedures to transform the original spectrum from low energy resolution to smoothed spectrum (Tsabaris, 2011) (Prieto, 2018) or to high energy resolution deconvolution spectrum with isolated peaks easily identifiable and quantifiable (Wang, 2018). In this communication, we shall describe the response of the RARE gamma spectrometry-based air monitoring stations that we use to address this problem: (i) the isotopic distinction of the origin of dose rate increments due to pluviometry and the quantification of those isotopes' activity concentrations; and (ii) the performance of the simple algorithm implemented to deal with overlapping ^{214}Pb - ^{131}I peaks and to provide accurate measurements of ^{131}I activities when using $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ detectors. This improvement of our system has allowed not only to minimise the number of ^{131}I false positives in situation of atypical high concentrations of radon but also to assert the capability of quantification of real ^{131}I activity concentrations thanks to an experimental test.

2. Material and Methods

2.1 Instruments

Extremadura's automatic radiological alert network (RARE) comprises seventeen air monitoring stations (Figure 1). Its purpose is to monitor the dosimetric and radioactive levels in the air of the environment of the Almaraz Nuclear Power Plant (39°48'29"N, 5°41'49"W) as well as of the rest of Extremadura and some bordering regions in Portugal. It is important to emphasize that a great part

of Extremadura corresponds to the highest natural gamma radiation areas of Spain (Quindós-Poncela, 2004). All these stations are equipped with meteorological probes and monitors of environmental dose rate. The meteorological information obtained, in particular the pluviometry, is very useful for interpreting the origin of any dosimetric or radiological alterations that may be detected. Some of the stations have the additional capacity to measure the radioactive concentration in aerosols. It must be pointed out that there are three stations with a double functionality: water monitoring system (gamma spectrometry based) and air monitoring system (equipped with Geiger-Müller detector)

The dose rate monitors used are Geiger-Müller probes that cover a broad dose rate and energy range, at least the intervals of 20 nSv/h to 0.2 Sv/h and 0.045 to 2.0 MeV, respectively, taking the differences between manufacturers into account (Berthold™ LB6361 <https://www.berthold.com/> and Gammatracer™ <https://www.bertin-instruments.com/>).

Two of the seventeen stations of the RARE are our own custom designs which allow the gamma spectrometric measurement of the radioactive concentration in the particulate and gaseous airborne fractions captured in their proximity. As described in detail in two previous papers (Baeza, 2017), (Baeza, 2014), these monitoring stations consist of two 2"×2" scintillation detectors (NaI:Tl and LaBr₃:Ce) with compact multichannel analysers to calculate the radionuclide concentrations of the gaseous and particulate airborne fractions, respectively. Their main advantage is their ability to simultaneously identify and quantify several natural (²¹⁴Pb, ⁷Be, ²¹⁴Bi, ⁴⁰K) and anthropogenic radionuclides (²⁴¹Am, ¹³¹I, ¹⁴⁰Ba, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁶⁵Zn, ⁶⁰Co) in the particulate fraction, and radioiodine and other gaseous radionuclides in the gaseous fraction. They function in both early warning and surveillance modes.

Another of the RARE's monitoring stations, currently under test in our network, has the capacity not only to identify several radioisotopes in one measurement but also the dose rate in its vicinity (SpectroTRACERTM <https://www.bertin-instruments.com/>). Specifically, this commercial

equipment integrates a 3"x3" NaI(Tl) detector for the direct determination of the activity in its environment and measurement range up to 100 $\mu\text{Sv/h}$ and, additionally, a Geiger-Müller tube with a range measurement up to 1 Sv/h. The system is also commercially available with CeBr_3 and $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ detector, depending on the expected sensitivity. In any case, the measurements are passive, i.e., they are performed without sample retention, and therefore the spectrometer initially assumes two possible geometries for the distribution of radionuclides around the detector: (a) a spherical geometry centred on the detector, presenting the activities in units of Bq/m^3 , and (b) a flat surface geometry, presenting the activities in Bq/m^2 . Consequently, its determinations are focused on external contamination and not on the inhalation process, like in the case of the custom-designed RARE's gamma spectrometry monitoring station where the flow rate of the pump system is established at 22 m^3/h for the retention of airborne particles on the fiberglass filter.

A commercial gas radon monitor (AlphaGUARD PQ2000PRO <https://www.bertin-instruments.com>), considered a reference device for these kinds of measurements (Lin, 2013), (Zafirir, 2011) was also used in this work. It has a 0.62L ionisation chamber and uses alpha spectroscopy to detect radon. It has a dynamic linear response from 2 Bq/m^3 to 2 MBq/m^3 and the sensitivity, for 20 Bq/m^3 , is 1 count per minute. This monitor was used in order to check the radon equilibrium equivalent concentration (EEC minus ^{218}Po) determined by the RARE's gamma spectrometry monitoring station. It was set up in flow operation (1L/min) to measure over periods of 10 min for 15 days. In that measurement conditions MDA for Alphaguard monitor is about 2 Bq/m^3 .

2.2 Quality control

A high-volume proportional counter dose rate monitor is used every year to verify each of the RARE's dose rate monitors (FAG, 1987). Every three years, an accredited external company calibrates this proportional counter using two certified sources, ^{137}Cs and ^{60}Co . The RARE network works under a quality management system certified according to UNE-UN-ISO 9001:2015

international standards (ISO9001, 2015), and the ambient dose rate measurements are accredited according to UNE-EN ISO/IEC 17025:2005 international standards (ISO/IEC17025, 2005).

The gamma spectrometry based stations have been calibrated using an experimental procedure which takes into account the singular geometry involved in both the particulate and the gaseous fractions of the air being sampled, as is described in detail in a previous work (Baeza, 2014). This procedure also allowed determinations of the minimum detectable activities (MDAs) of different anthropogenic radioisotopes that are characteristic of radioactive contamination risks.

The Alphaguard radon monitor had been tested previously during an inter-comparison exercise which took place in Saelices el Chico (Salamanca, Spain) under field conditions, and the correction factor determined then was applied for the measurements of the present work (Saelices, 2016).

As reported in the literature, Unsear report Annex B, pag 103 (Unsear, 2000), and (Porstendörfer, 1994),(Kümmel, 2014), the equilibrium-equivalent concentration employed for the calculation of radon activity concentration in air (Bq/m^3) is given by:

$$\text{EEC}=0.105 \cdot C_{218\text{Po}}+0.515 \cdot C_{214\text{Pb}}+0.380 \cdot C_{214\text{Bi}}$$

where $C_{218\text{Po}}$, $C_{214\text{Pb}}$, and $C_{214\text{Bi}}$ are the activity concentrations of the short-lived daughters ^{218}Po , ^{214}Pb , and ^{214}Bi (Bq/m^3).

In order to check the accuracy of the EEC minus ^{218}Po calculated from the ^{222}Rn daughters determined by gamma spectrometry of the air's particulate fraction, the results were contrasted with the simultaneous ^{222}Rn determinations provided by the AlphaGUARDTM radon monitor at the Saucedilla station. The two sets of results are plotted in Figure 2. The statistical correlation between them is highly satisfactory as shown the results of the linear fit:

$$\text{EEC minus } ^{218}\text{Po}=m \cdot \text{Rn} +n ; m=0.92 \pm 0.01; n=-4.4 \pm 0.6; r^2=0.78.$$

Given that both the slope and the regression parameters are close to unity, it can be asserted, from

the statistical point of view, that ^{222}Rn alterations determined by the commercial radon monitor are properly reproduced by the aforementioned EEC minus ^{218}Po calculations. It must be pointed out that the ordinate is not 0 because Alphaguard monitor is measuring radon in air and gamma spectrometry is measuring radon progenies.

2.3 Measurements

The gamma dose rate and radionuclide activity concentrations measured by two gamma spectrometry based air monitoring stations of the RARE network (Baeza, 2017) were investigated in order to characterize the effects of variations in natural radiation in the atmosphere. These stations were those of Saucedilla (39°51'24" N, 5°40'42" W; 260 m.a.s.l.) and Santiago de Alcántara (39°36'14" N, 7°12'59" W; 350 m.a.s.l.). No effect due to different Secondary Cosmic Radiation is expected because the different altitude between both stations is not significant. It must be pointed out that radon concentrations in Saucedilla can be unusually high as a consequence of the soil composition in the area, mainly, granites, as explained in (Quindós-Ponceta, 2004). Additionally, the temporal behaviour of the two sites' dose rate backgrounds was significantly different (Figure 3). Not only were the values recorded in Saucedilla higher than those in Santiago de Alcántara due to the different radioactive compositions of their soils, but the Saucedilla values showed periodic oscillations of greater amplitude. This latter behaviour reflects the influence of the radon exhalation from the soils (Sesana, 2003).

As was noted in Section 2.2, it is possible to routinely evaluate the EEC minus ^{218}Po values of ^{222}Rn from the gamma spectrometric determinations of its daughters in the particulate fraction of the air, and interpret the origin of the aforementioned dose rate alterations. In particular, the greater diurnal and seasonal variation of outdoor radon (^{222}Rn) concentrations in Saucedilla is a consequence of that site's higher values of natural radioactive background (Figure 3). Notwithstanding this interpretation of the origin of the observed daily and seasonal variations in dose rate levels at the RARE stations, a detailed study showed there to be intermittent increases superimposed on the

above behaviour. Such increases frequently coincide with rain events (Fujinami, 1996). One of the objectives of the present work was to identify and quantify the radionuclides involved in these intermittent variations in locations with significant different radon levels.

A problem can arise when using LaBr₃:Ce detectors for the gamma spectrometry monitoring of potential artificial radioactive contamination in the particulate fraction of aerosols in locations where there may occur significant activities of natural radioactive isotopes because of the possibility of overlapping photopeaks, in particular of ²¹⁴Pb (E=351.9 keV and yield 38%) with ¹³¹I (E=364.5 keV and yield 82%). A consequence is that when the natural radioactive levels of ²¹⁴Pb are high then the MDA of the artificial radionuclide, ¹³¹I, is significantly higher or that false positives are reported for that radionuclide.

The following is a brief description of the method we use to try to resolve the aforementioned problem. Given that, for each gamma spectrum, the ²¹⁴Pb activity must be the same regardless of which photopeak's area is used to calculate it, the area of the 351.9 keV ²¹⁴Pb photopeak (yield=38%) can be determined from the area of the 295.2 keV peak (yield=19%) of the said radionuclide:

$$Area_{Pb214(352\ keV)} = Area_{Pb214(295\ keV)} \cdot \frac{Intensity_{Pb214(352\ keV)} \cdot Efficiency_{Pb214(352\ keV)}}{Intensity_{Pb214(295\ keV)} \cdot Efficiency_{Pb214(295\ keV)}}$$

The area of ¹³¹I can be inferred from the area of the ¹³¹I-²¹⁴Pb multiplet:

$$Area_{I131(364\ keV)} = Area_{multiplet} - Area_{Pb214(352\ keV)}$$

In the RARE network, we then determine the ¹³¹I activity by means of a custom-coded program which makes use of the GENIE2K™ software libraries. For MDA evaluation of ¹³¹I, the area of the overlapped peak ¹³¹I+ ²¹⁴Pb from a spectrum with high radon concentration, i.e. considering the most adverse situation, is used to evaluate the L_D and then Currie equations GENIE2K™ are applied in the algorithm .

3. Results and Discussion

3.1. Indirect identification of gamma emitters radionuclides after a rainfall event and comparison with passive air monitoring gamma spectrometry system

From January 2015 to June 2017, the RARE air monitoring stations identified 27 environmental dose rate increments associated with rainfall events. One indirect method to identify the gamma emitters which are involved in these increments is based on the calculation of the average experimental half-life from the ambient dose rate values measured after the dose rate monitors had recorded a maximum $H^*(10)$ value during a rainfall event (Dabrowski, 2017). These values were fitted to an exponential function of decay over time:

$$D=D_0 \exp[-\ln 2 (t/T_{1/2})]$$

An example is shown in Figure 4. The result of 42 ± 4 min is in fairly good agreement with the ^{214}Pb half-life of 27 min (Pritychenko, 2011), and also in good agreement with the same study carried out by Dabrowski et al (Dabrowski, 2017). A simple statistical analysis of the complete set of calculations gave the mean $T_{1/2}=46$ min, SD=11 min, range 17-74 min.

In order to identify those radionuclides in the above cited rainfall events, during 2017 a passive air monitoring gamma spectrometry station based on NaI(Tl) scintillation detector (SPECTROTRACERTM) was installed in the RARE's network and its measurements were evaluated. On 17/06/2017 there was a rainfall event in which the ambient dose rate increased by 50% over baseline. Figure 5 shows the ambient dose rate measured by the Geiger-Müller counter and calculated from the naturally occurring radionuclides on that day. Also shown is the gamma spectrum acquired by the NaI(Tl) scintillation detector during the rainfall event, clearly showing the ^{212}Pb , ^{214}Pb , and ^{214}Bi main peaks (238, 352, and 609 keV).

The measurements that were carried out by the passive gamma spectrometry air monitoring equipment have shown that radon daughters gamma emitters are responsible of the environmental

dose rate increases during rainfall events. However, they cannot distinguish if these radionuclides are deposited on ground or, moreover their concentrations in air have increased due to the scavenging processes.

3.2. Study of gamma dose rate alterations with the air monitoring gamma spectrometry station based on sample retention

For the monitoring station of Saucedilla and the year 2016, the upper part of Figure 6 left shows the temporal evolution of the dose rate levels recorded every 10 minutes and, superposed on them, their average daily values are plotted. One observes that both sets of levels generally vary smoothly throughout the year, but that at certain moments (identified by 1 to 4 on the plot) there occur significant temporary rises in the dose rate. To help understand these behaviours, the temporal evolution of the mass of aerosols deposited weekly on the filters is also shown in Figure 6 left. These masses are directly proportional to the weekly average concentration of the aerosols in the air. Likewise, in the lower part of the figure are shown the daily values of rainfall and the radon EEC minus ^{218}Po calculated from the ^{214}Pb and ^{214}Bi activities determined by gamma spectrometry of the particulate air fraction.

In Figure 6 (left) one clearly observes, that there is a great variability of radon EEC minus ^{218}Po activities in the atmosphere of Saucedilla. The higher level during the Summer months (June-September) or exceptional warm period (for instance, November 2015 with temperatures up to 25°C) are due in part to that season's low soil moisture and therefore high airborne particle concentration. This temporal evolution of the radioactive concentration in the air is reflected with an attenuated amplitude in the dose rate levels.

As one observes in the zoomed-in part of the plot corresponding to label 1 (Figure 6 right), there are some clear intermittent increases in the environmental dose rate. They coincide with a period of rainfall events. Nevertheless, the temporal evolution of the radon EEC minus ^{218}Po first declines during this rainy period, to then recover later. Indeed, the mass deposited ($1.95 \cdot 10^{-5} \text{ g/m}^3$) on the

filter during the week of those frequent rainfalls was less than the masses deposited in the previous and the subsequent weeks during which there was no rainfall.

Therefore, the decrease registered in the activity levels of the descendants of ^{222}Rn in the analysis of the particulate fraction of the air means that the atmosphere had been cleansed of aerosols with gamma radioactive emitters during the week in which there was frequent rainfall. In particular, all those gamma emitters were deposited on the ground and other surfaces around the monitoring station at the start of each rain event, and consequently the gamma dose rate determined by the Geiger-Müller counters increased.

Figure 7 top illustrates the aforementioned process, identifying three different phases. (i) State 1 exemplifies the pre-rainfall situation of typically high ^{222}Rn exhalation during a dry period. (ii) In State 2, the gamma emitters are being scavenged from the atmosphere, and the result is a significant increase in gamma dose rate. It should be noted that the Geiger-Müller detection geometry has changed from that of a semi-infinite “sphere” to one of several “planes” relatively close to the detector. During this state, the high moisture content of the soil shields gamma ray emissions from the ground, and reduces ^{222}Rn exhalation. (iii) State 3 is post-rainfall, when the ground is naturally drying out and ^{222}Rn emanation is gradually increasing to reach its maximum which occurs when soil is dry. Figure 7 bottom illustrates this recovery of the dosimetry levels due to the increase in the concentration of ^{222}Rn descendants in the atmosphere after various rainfall events with a zoomed-in plot of the levels labelled as 2 in Figure 6. As can be seen, immediately after the rains, the dose rate levels are lower than those registered before. As the values shown correspond to winter months, the ambient temperature is relatively low, and the loss of soil moisture and consequent increase in radon exhalation occurs slowly.

This temporal evolution of the dose rate, with rises at the beginning of precipitation and subsequent falls due to the reduction of radon levels in the atmosphere, is a phenomenon that is systematically observed in the RARE air monitoring gamma spectrometry station system. Figure 8 top, for

example, shows the measurements at Saucedilla of the external ambient dose rate together with the ^{214}Bi and ^{214}Pb airborne activities during a rainfall period (3–8 November 2016). Similarly, Figure 8 bottom shows the same measurements during a rainfall period (16–18 June 2017) measured in Santiago de Alcántara monitoring station. It is important to note that, although the Saucedilla outdoor ^{222}Rn activity concentrations in the air are greater than those of Santiago de Alcántara, both of their dose rates increase by a factor of about 2 as a result of the rainfall event.

In summary, it is observed that the activity concentrations of ^{214}Bi and ^{214}Pb in the particulate fraction of air during the rain event are low due to their scavenging from the atmosphere and deposition onto the ground. As a result, inhalation dose rate due to ^{214}Bi and ^{214}Pb concentrations in air is significantly reduced.

3.3. Method for resolving overlapping ^{131}I and ^{214}Pb peaks

In order to test the method implemented, we considered 10-min gamma spectra acquired from the particulate fraction of the air by the $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ detector over five days. These 703 spectra were evaluated by the analysis software before and after implementing the separation algorithm. The results, together with the ^{131}I MDA values, are displayed in Figure 9. It is clearly seen that the number of ^{131}I activity values above the respective MDA is significantly reduced. Specifically, of the 703 spectra analysed, 386 showed net activity values of ^{131}I which fell to 29 when the algorithm was implemented. All of these presented uncertainties that were of the order of the MDA. Such events are notified via SMS (short message service) to the RARE analysts who evaluate the situation so as to make the best decision as to whether to confirm or discard the radiological event as being of artificial origin. An additional tool that the analyst has available to accept or discard the probable real existence of radioiodines in the atmosphere is to check whether that detection is observed simultaneously in the gamma spectrum of the gaseous fraction of the atmosphere.

In order to check the accuracy of the ^{131}I activity concentration analysis software when using the ^{214}Pb area subtraction algorithm (described in Material and Methods) against the Genie2KTM sum/non-linear least squares fit peak area algorithm (Genie2K, 2004), filters with well-known ^{131}I activities were put in front of the LaBr₃:Ce detector, 10 min spectra were acquired, and analyses were made with and without application of the algorithm. Then these gamma spectra were added to a typical gamma spectrum collected at the Saucedilla station when the outside Rn levels were high in order to evaluate the accuracy with which the ^{131}I activity incorporated in the filter is reproduced in the presence of high ^{214}Pb levels. As one observes in Table 1, the activities of the two spiked filters were consistent between the two algorithms. This was to be expected because both methods can correctly determine the area of the 364 keV ^{131}I photopeak when there is no presence of ^{214}Pb .

	^{131}I activity evaluation method	Determinations from airborne gamma monitoring station activities (Bq)			
		Max	Min	Mean \pm SD	MDA(Bq)
Spiked filter 1	Sum/non-linear LSFP area	32 \pm 6	27 \pm 6	29 \pm 3	10
	Subtracting ^{214}Pb area	26 \pm 6	21 \pm 6	24 \pm 3	
Spiked filter 2	Sum/non-linear LSFP area	73 \pm 12	62 \pm 10	69 \pm 6	10
	Subtracting ^{214}Pb area	78 \pm 12	57 \pm 10	65 \pm 11	

Table 1. ^{131}I activities determined by the gamma spectrometry-based air monitoring station at Saucedilla using the ^{214}Pb area subtracting algorithm method and the Genie2KTM sum/non-linear least squares fit peak area algorithm when known ^{131}I activities are introduced and the presence of ^{214}Pb is negligible.

However, as one observes in Table 2, under conditions of high outside concentrations of Rn for which there is a significant ^{214}Pb photopeak at 351.9 keV, the Genie2KTM sum/non-linear LSFP area algorithm overestimates the ^{131}I and/or ^{214}Pb activities even when there is no ^{131}I presence. The proposed ^{214}Pb area subtraction method, however, correctly calculates both the ^{131}I and the ^{214}Pb activities.

	¹³¹ I activity evaluation method	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Pb	¹³¹ I	¹³¹ I
		(295keV) (Bq/m ³)	(352keV) (Bq/m ³)	(364keV) (Bq/m ³)	MDA
Spiked filter 1 + ²¹⁴ Pb and ²¹⁴ Bi	Sum/non-linear LSFP area	95 ± 10	96 ± 20	50 ± 20	20
	Subtracting ²¹⁴ Pb area	95 ± 10		40 ± 10	30
Spiked filter 2+ ²¹⁴ Pb and ²¹⁴ Bi	Sum/non-linear LSFP area	95 ± 10	198 ± 20	100±20	20
	Subtracting ²¹⁴ Pb area	95 ± 10		97 ± 20	30
Spectrum with ²¹⁴ Pb and ²¹⁴ Bi but without spiked filter	Sum/non-linear LSFP area	80 ± 20	80 ± 20	40 ± 7	20
	Subtracting ²¹⁴ Pb area	100 ± 20	100 ± 20	10 ± 7	30

Table 2. ¹³¹I activities determined by the gamma spectrometry-based air monitoring station at Saucedilla using the ²¹⁴Pb area subtracting algorithm method and the Genie2K™ sum/non-linear least squares fit peak area algorithm when known ¹³¹I activities are introduced and the presence of ²¹⁴Pb is non-negligible.

4. Conclusions

Data from the RARE gamma spectrometry based air monitoring station have proven to be a powerful analytical tool to understand which radioisotopes are involved in natural gamma dose variations. For example, it is well-known that there is an increase in radiation during precipitation events due to the scavenging of ²²²Rn daughters. From the present gamma spectrometry results, we can assert that these radioisotopes are deposited on surfaces around the gamma dose monitors, leading to an increase in the ambient dose rate registered by the Geiger-Müller monitors. Obviously too, this scavenging of ²²²Rn daughters reduces the inhalation gamma dose rate.

The method implemented to resolve the overlap of the ¹³¹I gamma (364 keV) and ²¹⁴Pb gamma (351.9 keV) peaks when using a LaBr₃:Ce scintillator as detector proved itself to be successful for application in these automatic gamma spectrometry based air monitoring stations. The algorithm significantly reduces by 95% the number of false positive ¹³¹I notifications (due to natural increases in ²¹⁴Pb), which is essential for stations located in areas of high radon levels, at the same time as

allowing the accurate measurement of ^{131}I if there were a minimal presence of this artificial radioactive isotope in the atmosphere.

Acknowledgements

This work was made possible by funding received from Spain's Nuclear Safety Council for the project entitled "Puesta a punto, gestión y optimización de una estación piloto para la detección automática y en tiempo cuasi-real de actividades de radiopartículas y radioyodos en aire", and by funding from that same Council and the Government of Extremadura through the Collaboration Agreement for the Operation, Management, and Access to Data of Automatic Environmental Radiation Monitoring Stations.

References

- (Baeza, 2012) Baeza, A., Corbacho, J. A., Rodríguez, A., Galván, J., García-Tenorio, R., Manjón, G. and Serrano, I. (2012). Influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident on Spanish environmental radioactivity levels. *Journal of environmental radioactivity*, 114, 138-145.
- (Baeza, 2014) Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Ontalba-Salamanca, M. Á., & Vasco, J. (2014). Calibration of an air monitor prototype for a radiation surveillance network based on gamma spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 87, 57-60.
- (Baeza,2017) Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. Á., Vasco, J., & Valencia, D. (2017). Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 37(3), 642-658
- (Bertin, 2018) <https://www.bertin-instruments.com/product/environmental-radiation-monitoring-systems/spectrotracer-air-soil-water/>
- (Casanovas, 2014a) Casanovas, R., Morant, J.J., Salvadó, M. 2014. Development and calibration of a real-time airborne radioactivity monitor using gamma-ray spectrometry on a particulate filter.

(Casanovas, 2014b) Casanovas, R., Morant, J.J., Salvadó, M. (2014). Development and calibration of a real-time airborne radioactivity monitor using direct gamma spectrometry with two scintillation detectors. *Applied Radiation and Isotopes* (89), 102-108.

(Casanovas, 2016) Casanovas, R., Prieto, E., & Salvadó, M. (2016). Calculation of the ambient dose equivalent $H^*(10)$ from gamma-ray spectra obtained with scintillation detectors. *Applied Radiation and Isotopes*, 118, 154-159.

(Dabrowski, 2017) Dąbrowski, R., Dombrowski, H., Kessler, P., Röttger, A., & Neumaier, S. (2017). Detection of rain events in radiological early warning networks with spectro-dosimetric systems. *Journal of Instrumentation*, 12 (10), P10005.

(Euratom, 2013) DIRECTIVA 2013/59/EURATOM DEL CONSEJO de 5 de diciembre de 2013 por la que se establecen normas de seguridad básicas para la protección contra los peligros derivados de la exposición a radiaciones ionizantes, y se derogan las Directivas 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom y 2003/122/Euratom Diario Oficial de la Unión Europea. 17 de Enero de 2014 (*in Spanish*).

(Envinet, 2019) https://envinet.com/images/produkte/sara/data_sheet_sara_station.pdf

(FAG, 1987) FAG Strahlen-Meßtechnik System Frieseke Detektoren zur Umgebungsüberwachung Serie FHZ 600 (Technische Beschreibung); Erlangen 1987.

(Fujinami, 1996) Fujinami, N. (1996). Observational study of the scavenging of radon daughters by precipitation from the atmosphere. *Environment International*, 22, 181-185.

(Genie2K, 2004) Genie™ 2000 Spectroscopy Software Operations. Canberra industries Inc. 2004. Meriden USA.

(Inomata, 2007) Inomata, Y., Chiba, M., Igarashi, Y., Aoyama, M., & Hirose, K. (2007). Seasonal

and spatial variations of enhanced gamma ray dose rates derived from ^{222}Rn progeny during precipitation in Japan. *Atmospheric Environment*, 41(37), 8043-8057.

(ISO/IEC17025,2005) General requirements for the competence of testing and calibration laboratories. ISO/IEC 17025:2005, International Organization for Standardization, Switzerland.

(ISO9001,2015) Quality management systems - Requirements. ISO9001:2015 International Organization for Standardization, Switzerland.

(Kümmel,2014) Kümmel, M., Dushe, C., Müller, S., & Gehrcke, K. (2014). Outdoor ^{222}Rn -concentrations in Germany – part 1 – natural background. *Journal of Environmental Radioactivity*, 132, 123-130.

(Lebedyte,2003) Lebedyte, M., Butkus, D., & Morkūnas, G. (2003). Variations of the ambient dose equivalent rate in the ground level air. *Journal of Environmental Radioactivity*, 64(1), 45-57.

(Lin,2013) Lin, C. F., Wang, J. J., Lin, S. J., & Lin, C. K. (2013). Performance comparison of electronic radon monitors. *Applied Radiation and Isotopes*, 81, 238-241.

(Masson, 2011) Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F.P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., Didier, D., Depuydt, G., De Geer, L.E., De Vismes, A., Gini, L., Groppi, F., Gudnason, K., Gurriaran, R., Hainz, D., Halldórsson, Ó., Hammond, D., Hanley, O., Holeý, K., Homoki, Zs., Ioannidou, A., Isajenko, K., Jankovic, M., atzlberger, C., Kettunen, M., Kierepko, R., Kontro, R., Kwakman, P.J.M., Lecomte, M., Leon Vintro, L., Leppänen, A.-P., Lind, B., Lujaniene, G., Mc Ginnity, P., Mc Mahon, C., Malá, H., Manenti, S., Manolopoulou, M., Mattila, A., Mairing, A., Mietelski, J.W., Møller, B., Nielsen, S.P., Nikolic, J., Overwater, R.M.W., Pálsson, S.E., Papastefanou, C., Penev, I., Pham, M.K., Povinec, P.P., Ramebäck, H., Reis, M.C., Ringer, W., Rodriguez, A., Rulík, P., Saey, P.R.J., Samsonov, V., Schlosser, C., Sgorbati, G., Silobritiene, B.V., Söderström, C., Sogni, R., Solier, L., Sonck, M., Steinhauser, G., Steinkopff, T., Steinmann, P., Stoulos, S., Sýkora, I., Todorovic, D., Tooloutalaie, N., Tositti, L., Tschiersch, J.,

Ugron, A., Vagena, E., Vargas, A., Wershofen, H., Zhukova, O., 2011. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environmental Science and Technology*. 45, 7670- 7677

(Mercier,2009) Mercier, J. F., Tracy, B. L., d'Amours, R., Chagnon, F., Hoffman, I., Korpach, E. P., & Ungar, R. K. (2009). Increased environmental gamma-ray dose rate during precipitation: a strong correlation with contributing air mass. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(7), 527-533.

(Prieto, 2018) Prieto, E., Casanovas, R., Salvadó, M. (2018). Spectral windows analysis method for monitoring anthropogenic radionuclides in real-time environmental gamma-ray scintillation spectrometry. *Journal of Radiological Protection*, 38, 229-246.

(Porstendörfer,1994) Porstendörfer, J. (1994). Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science*, 25(2), 219-263.

(Pritychenko,2011) Pritychenko, B., Běták, E., Kellett, M. A., Singh, B., & Totans, J. (2011). The nuclear science references (NSR) database and web retrieval system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 640(1), 213-218.

(Quindós-Poncela,2004) Poncela, L. Q., Fernández, P. L., Arozamena, J. G., Sainz, C., Fernández, J. A., Mahou, E. S., & Cascón, M. C. (2004). Natural gamma radiation map (MARNA) and indoor radon levels in Spain. *Environment International*, 29(8), 1091-1096.

(Saelices,2016) Intercomparación de monitores de gas radón en condiciones de campo. Saelices del Chico (España), marzo 2016. Jose Luis Gutierrez-Villanueva, Carlos Sainz Fernández, Ismael Fuente Merino, Jorge Quindós López, Luis Quindós López, Santiago Celaya González, Alicia Fernández Villar, David López Abascal, Enrique Fernández López y Luis Santiago Quindós Poncela. ISBN: 978-84-86116-97-2 D.I.:SA 129-2016.

(Sesana,2003) Sesana, L., Caprioli, E., & Marcazzan, G. M. (2003). Long period study of outdoor

radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and dispersion properties of atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 65(2), 147-160.

(Tsabaris, 2011) Tsabaris, C., Prospathopoulos, A. 2011. Automated quantitative analysis of in-situ NaI measured spectra in the marine environment using a wavelet-based smoothing technique. *Applied Radiation and Isotopes*, 69, 1546-1553.

(Unsclear, 2000) United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. (2000). *Effects of ionizing radiation: UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes* (Vol. 1). Annex B. United Nations publications.

(Vargas,2018) Vargas, A., Cornejo, N., & Camp, A. (2018). Comparison of methods for $H^*(10)$ calculation from measured LaBr₃ (Ce) detector spectra. *Applied Radiation and Isotopes*, 137, 241-249.

(Wang, 2018) Wang, J., Zhang, Y., Liu, D., Wu, B., Zhang, Y.,Jiang , H. (2018). Automated spectra analysis of in situ radioactivity measurements in the marine environment using NaI(Tl) detector. *Applied Radiation and Isotopes*, 141, 88-94.

(Yi,1997) Yi, C. Y., Jun, J. S., Chai, H. S., Oh, J. J., & Yun, J. Y. (1997). Measurement of ambient dose equivalent using a NaI (Tl) scintillation detector. *Radiation Protection Dosimetry*, 74(4), 273-278.

(Zafri,2011) Zafri, H., Haquin, G., Malik, U., Barbosa, S. M., Piatibratova, O., & Steinitz, G. (2011). Gamma versus alpha sensors for Rn-222 long-term monitoring in geological environments. *Radiation Measurements*, 46(6-7), 611-620.

Figure captions

Figure 1. Locations of the RARE network monitoring stations in Extremadura (blue dots) and Portugal (Red dots).

Figure 2. Comparison of ^{222}Rn concentration measured simultaneously by an AlphaGUARDTM system and EEC as calculated from the data given by the gamma spectrometry based monitoring station at Saucedilla.

Figure 3. Top: Natural gamma Radiation map in Spain (MARNA). Bottom: comparison of measurements made at Saucedilla and Santiago de Alcántara over the same time period, dose rates (Bottom left) and ^{222}Rn equilibrium equivalent concentrations (EEC) (Bottom right)

Figure 4. Decay of the ambient dose rate as a function of time and its experimentally determined half-life after an increment associated with precipitations at the Saucedilla monitoring station of the RARE network registered on 04/11/2016.

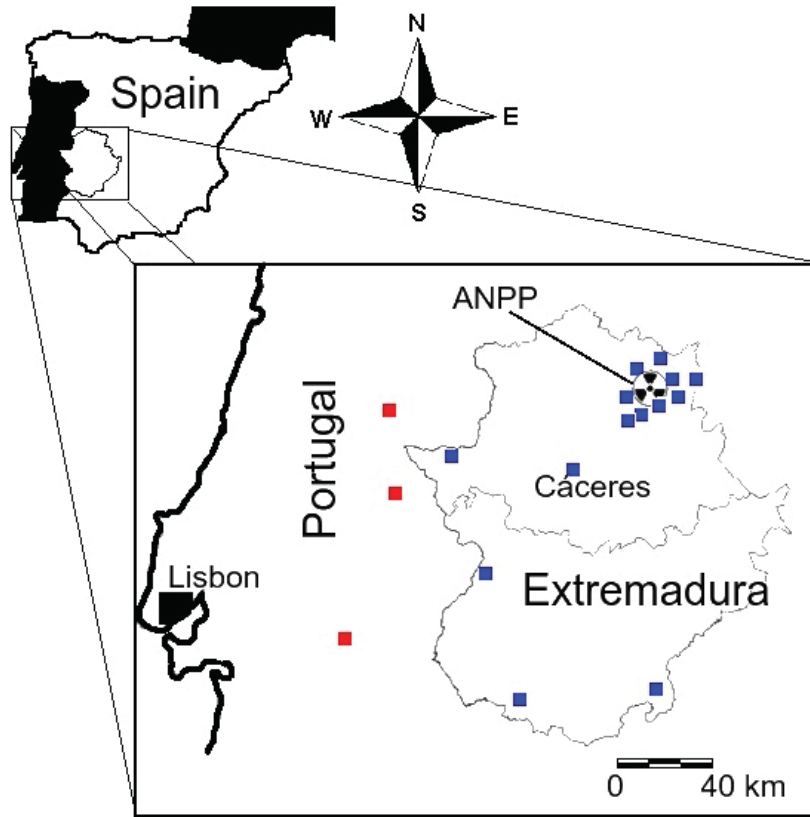
Figure 5. Dose rate data and gamma spectrum associated with a rainfall event in Cáceres, registered by a dual Geiger-Müller tube and passive (i.e. without sample retention) gamma spectrometry system (SPECTROTRACERTM).

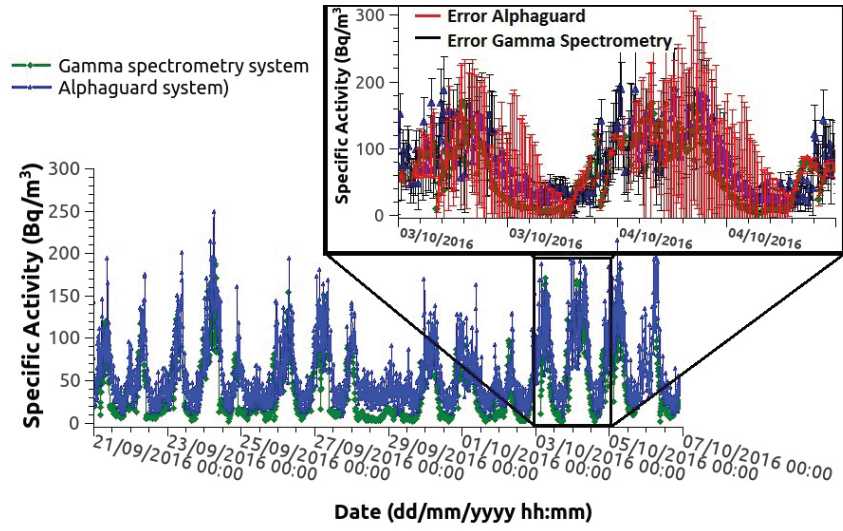
Figure 6. (Left) External gamma dose rate (yearly average: 0.126 μSv), radon EEC, and precipitation registered at the Saucedilla monitoring station of the RARE network. (Right) Aerosol concentrations (g/m^3) on weekly filters from a different monitoring station located at the same place.

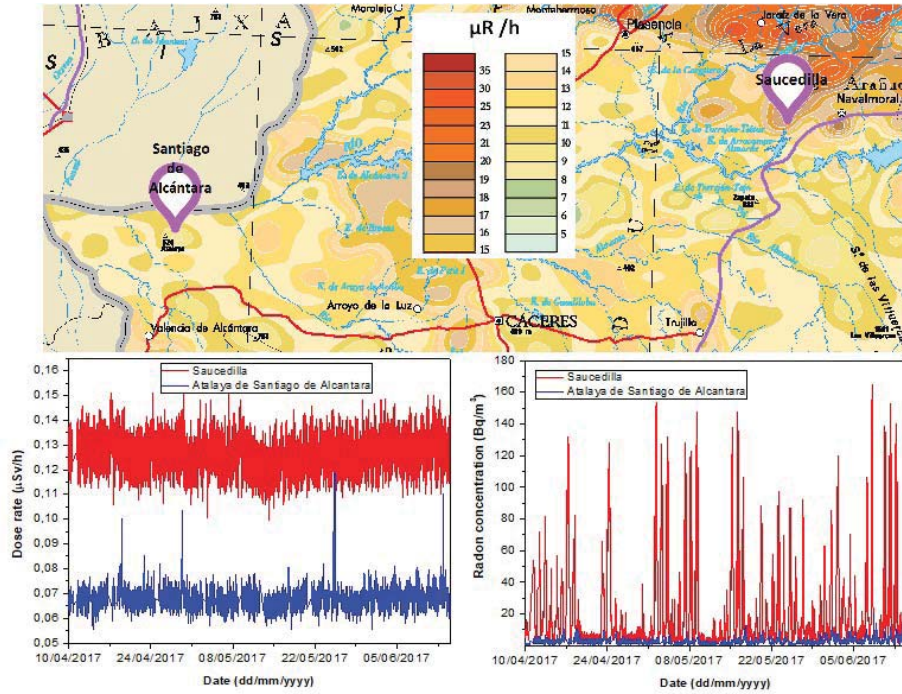
Figure 7. Illustration of the scavenging process of ^{214}Bi and ^{214}Pb , together with the subsequent ambient dose rate increase during periods of rainfall and later recovery from the ^{222}Rn ground exhalation process (event number 2 of Figure 6).

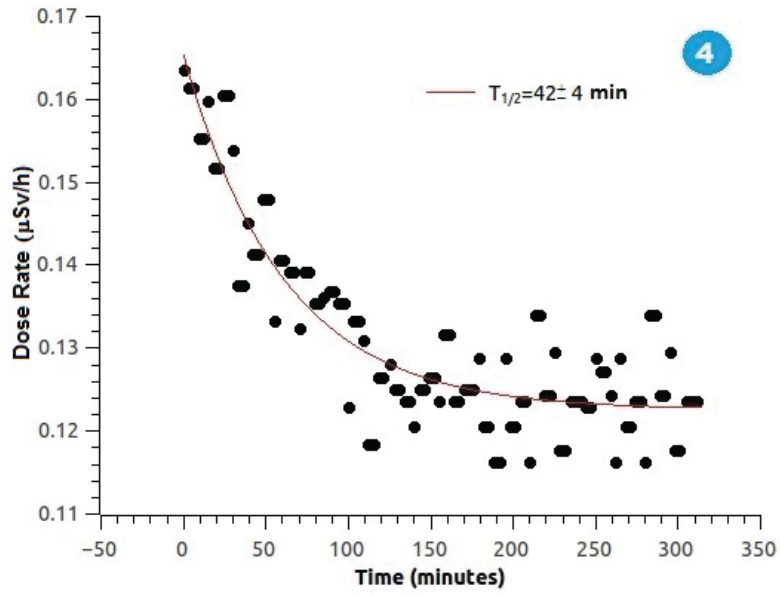
Figure 8. External gamma dose rate and ^{214}Bi and ^{214}Pb specific activities measured during rainfall events at the Saucedilla (upper) and Santiago de Alcántara (lower) monitoring stations of the RARE network.

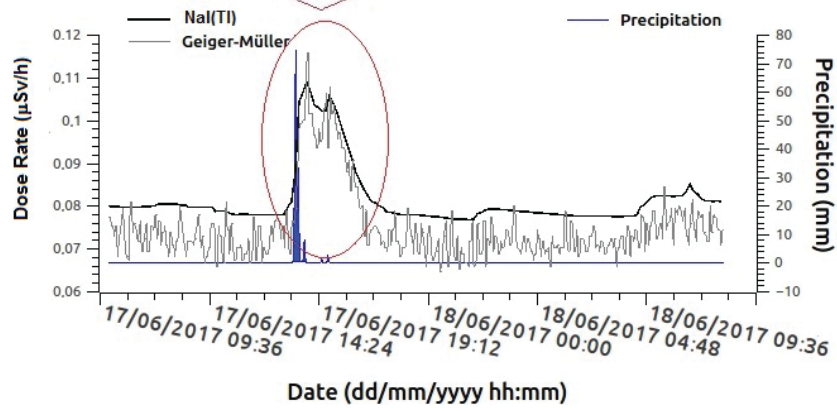
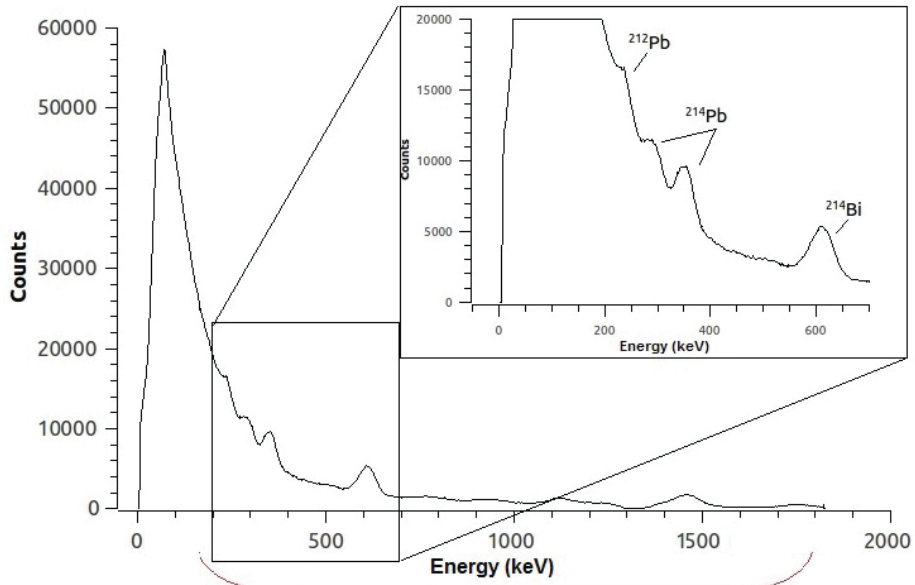
Figure 9. ^{131}I activity determined by a gamma spectrometry based air monitoring station (at the Saucedilla location) before (^{131}I original) and after (^{131}I recalculated) the implementation of the ^{214}Pb area subtraction algorithm.

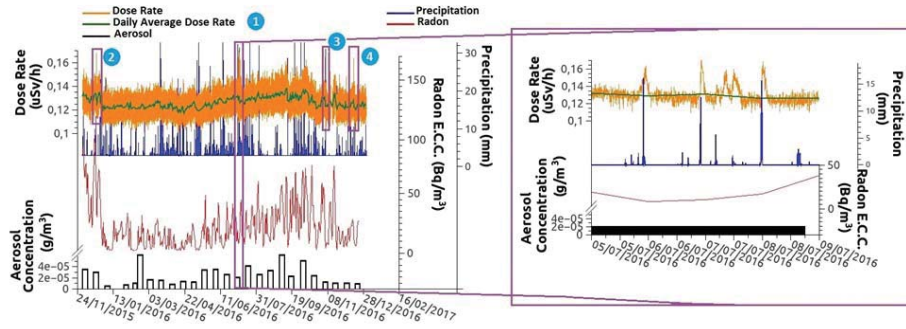


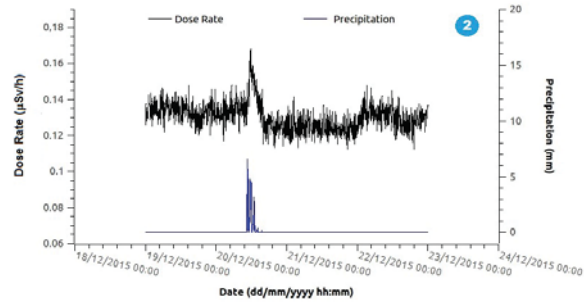
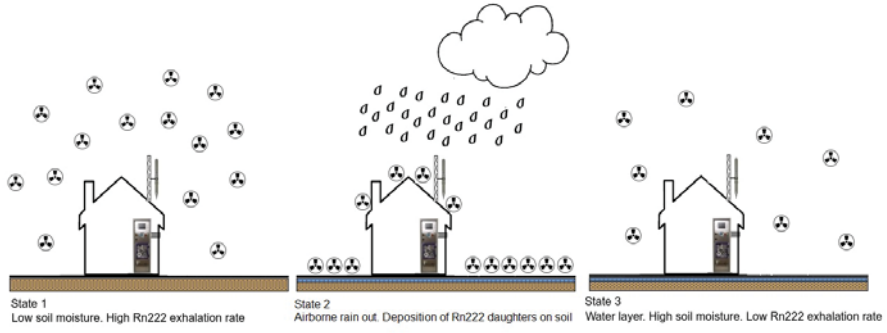


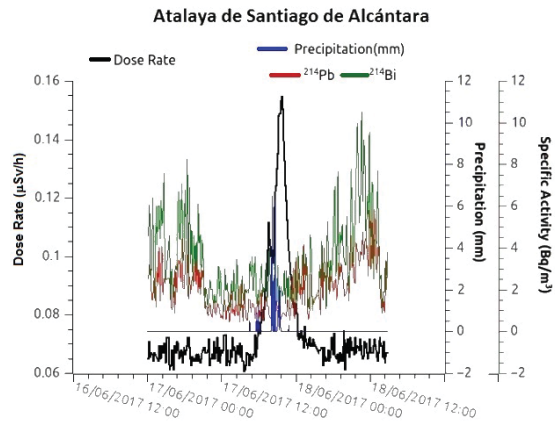
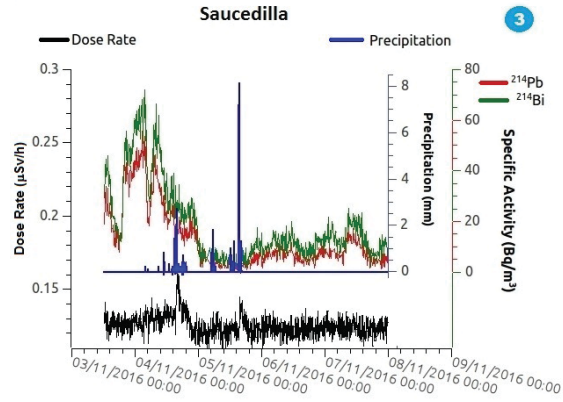


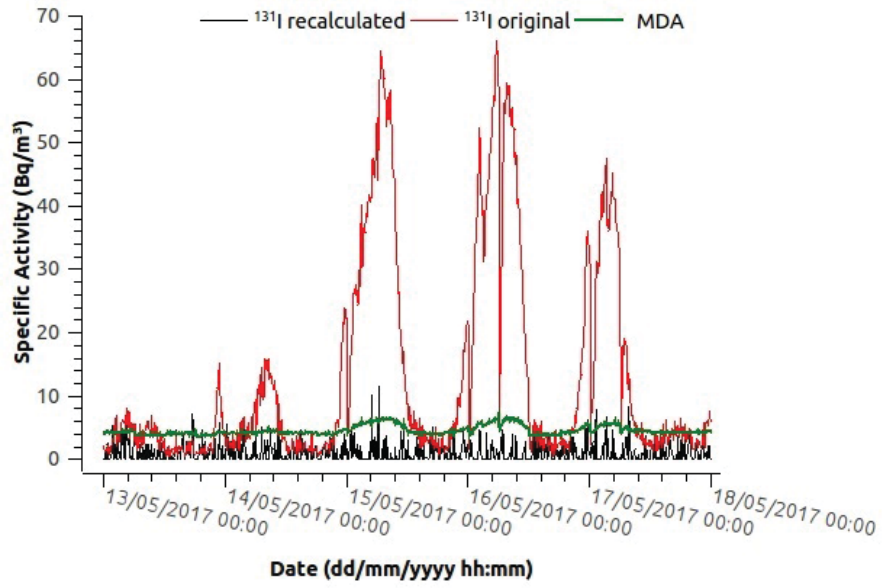












Highlights:

The capabilities of the automatic airborne gamma spectrometric monitoring station based on sample retention to identify and quantify Rn daughters in airborne during a rainfall event are shown.

When Rn daughters and I-131 activity concentration in air is of the same order, a simple calculation method to resolve overlapping I-131/Pb-214 photopeaks is implemented

Journal Pre-proof

Artículo 6

Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) at 2020: 30 years of development and current performance of on-real time monitoring.

Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) at 2020: 30 years of development and current performance of on-real time monitoring

*A.Baeza, J.M. Caballero, M.Á. Ontalba, J.A. Corbacho, D. Valencia and J.Vasco
Environmental Radioactivity Laboratory (LARUEX). University of Extremadura. Spain*

Abstract

At the beginning of the 90's of the past century, the University of Extremadura initiated the design, construction and management of the Radiological Alert Network of Extremadura (RARE in Spanish). This was designed to acquire reliable near-real-time information on the environmental radiological status in the surroundings of the Almaraz Nuclear Power Plant by measuring, mainly, the ambient dose equivalent rate $H^*(10)$ levels at different locations around the nuclear facility. The phased development of this network has been in two ways. On the one hand, there has been an increase in the number of stations comprising the network, including some beyond the environment of the Almaraz nuclear power plant. On the other hand, there has been an increase in the number of monitored parameters, not only radiological but also meteorological and operational ones. In this paper, a description of the current RARE network is carried out. Moreover, our commitment to develop gamma spectrometry-based monitoring stations, both in airborne and water, is presented. Additionally, two mobile emergency monitoring systems (terrestrial vehicle and drone) have been developed and can be used during a radiological emergency to strength the surveillance coverage or for routine measurements wherever radiological monitoring is required.

As a consequence of the growth of RARE network, both in terms of number of monitoring stations and number of radiological and non-radiological monitored parameters, large data volumes are daily generated (about 200000). To face this big data paradigm, sophisticated software applications have been developed in order to maintain the indispensable real-time and efficient performance of the alert network. The performance of this software is briefly described in this paper for daily assessment of the registered parameters and, additionally, including its on-real time operation when radiological and/or operational anomalies happen.

Keywords: Radiological Alert Network. Automatic gamma spectrometry monitoring stations. Big data management. Friendly data management software.

Corresponding autor: J.A. Corbacho. email adress: corbamer@unex.es

1. Introduction

In 1990, the Radiological Alert Network of Extremadura (RARE) was aimed at continuous monitoring of the radiological status of the environment around the Almaraz Nuclear Power Plant (ANPP) to verify that there is compliance with the Basic Safety Standards of Council Directive Euratom/96/29 (EC,1996) and to monitor tendencies overtime. The network design was based on two main principles: reliability, in order to permit gathering the information even under adverse operating conditions, and versatility, to facilitate substitution of components and implementation of future stations. Under those requirements, it was necessary to develop home-made software—applications for the efficient integration, management and analysis of the huge number of registered data. After 30 years of operation the RARE network has increased significantly the number of monitoring stations and, moreover, the amount of radiological and non-radiological parameters that are measured in real time by those monitoring stations. In 2020, RARE network is composed by 17 ambient dose equivalent rate monitoring stations, 5 airborne monitoring stations (4 of them based on a home-made innovative gamma spectrometry system and the other one being changed to the same capabilities), 3 water monitoring stations based on gamma spectrometry and, as spearhead of the radiological network, there is an advanced mobile laboratory with dosimetric and gamma spectrometric capabilities but also incorporating a drone which can be equipped with different scintillator gamma detectors.

One of the main radiological parameters measured in RARE network is the ambient dose equivalent rate, $H^*(10)$. In fact, this radiological parameter has been adopted by the International Commission on Radiological Protection (ICRP) as a fundamental magnitude in the field of dosimetry (Council Directive 1996/29/EURATOM). It is usually monitored in continuous manner, using Geiger-Müller or ionization chamber detectors, by early warning radiological networks around the world (<https://remap.jrc.ec.europa.eu/>; <https://realtime.safecast.org/>; <https://www.epa.gov/radnet>) as well as in the RARE network. These devices have several advantageous capabilities like their sensitive and fast response, easy operation, relatively low cost and robustness. However, their main drawback is based on the impossibility to individually identify and quantify each of the natural and/or man-made radioisotopes that produce alterations of the natural background. In fact, in the case of a nuclear accident, to know the radioisotopes released to the environment (atmospheric and/or aquatic media) and their activities is a crucial support to take decisions about the protection

not only of civilian population but also of emergency teams. For that reason, some strategic locations were chosen to install airborne and water monitoring stations in the RARE network and, therefore, to provide more comprehensive characterization of the radioactive content of the environment during a potential nuclear accident. The first airborne monitoring stations were based on gross alpha and beta with radon compensation measures (Berthold, 1997) . In the case of the water monitoring stations, the initial configuration was based on a NaI(Tl) gamma detector but using an electronic chain based on mono-channels (Berthold, 1992).

Our experience during 30 years operating with this commercial equipment, considering the main advantages and drawbacks, has let us to develop a home-designed systems mainly aimed to use gamma spectrometry by the incorporation of LaBr₃(Ce) and NaI(Tl) detectors with multichannel-based acquisition systems (Baeza et al, 2014), (Baeza et al, 2017). Furthermore, important mechanical, electronic and communication improvements have been introduced in order to strength their operational capabilities.

Taking in account the new configuration of the RARE, based on the monitoring of gamma dose rate and gamma spectrometry, and after about five years of experience, its analytical and operational capabilities are considered highly satisfactory. As complementary tools, the RARE has two mobile monitoring systems: a land vehicle and a drone that can be used to perform in situ georeferenced dosimetric and radiological measurements wherever it is needed.

Moreover, due to the progressive growth of the number of monitoring stations and their complexity, the substantial number of data which is produced every single day by the RARE network has been increasing in a sizable manner. Under these new conditions and in order to accomplish not only with the early warning function of the RARE network but also its surveillance function, new home-made software tools have been developed. It implies to store, manage and analysis the information in an efficient way considering the huge volume of data that is available, the high required velocity to maintain the real-time performance of the network and the variety of formats on which the data reside. This situation responds to a big data structure and has been an obvious RARE's challenge to develop software applications not only to analyse and visualize the information in a friendly manner, but also to construct an intelligent system to generate the necessary warnings when radiological anomalies or technical problems are produced in the network. The working of the new software applications is described in this paper for daily supervision of the network, for a hypothetical

radiological event around ANPP and, additionally, for some real radiological and operational anomalies during typical performance of the RARE network.

One of the aspects to be highlighted in RARE's network concerns its performance under international standards. The network has ISO 9001:2015 certification (ISO, 2015) which guarantees the implementation of a quality management system, but also the accreditation under ISO/IEC 17025:2017 (ISO,2017) which assures the technical competence to provide gamma dose rate measurements on real-time.

2. Material and methods

2.1. RARE's layout and equipment

The RARE network's design is based on the principles of reliability and versatility. The first one is essential in order to allow the gathering of data even under adverse operating conditions, whereas the second guarantees the substitution of components and the implementation of future stations regardless the manufacturer companies. The network comprised of 17 monitoring stations, 9 of them around the ANPP, 5 along the Spain-Portugal border (2 at the Spanish side and 3 at the Portuguese side), 2 next to El Cabril radioactive waste disposal facility (WDF) and 1 at the network's headquarter placed in Cáceres. All of them are equipped with a Geiger-Müller detector in order to provide the ambient dose equivalent rate as warning fundamental parameter in case of a potential radiological incident. Additionally, 5 stations are able to monitor airborne (4 of them using gamma spectrometry for the particulate and gaseous fractions and 1 with gross alpha and beta activity determinations plus gaseous form ^{131}I but, currently, under migration to include gamma spectrometry) and 3 are dedicated to water monitoring (all of them are gamma spectrometry based).

Moreover, the network's stations register and report values of non-radiological parameters (meteorological and operational data). For data acquisition and communication management, each station has a computer, an analogical or digital radiofrequency broadcasting station and/or internet connection. To ensure maximum reliability of the network even under extreme conditions such as the interruption of the main electrical power supply, each station operates its own 1000 VA uninterrupted power supply (UPS) which delivers about 24h autonomy. There are also high-voltage suppressing filters installed at the inputs of the UPS to avoid voltage peaks that could damage the equipment. Additionally, the headquarters in Cáceres and

some essential stations are equipped with an autonomous diesel or petrol generator for a long-running electrical autonomy (up to 7 days). Due to the distance, more than 70 km, between stations in the surroundings of the ANPP and the RARE headquarters located in Cáceres, the network incorporates a radio frequency repeater situated at 840 metres above sea level. Figure 1 shows the location of the ANPP, El Cabril WDF, the RARE headquarters (Cáceres) and the monitoring stations with their fundamental analytical capabilities.

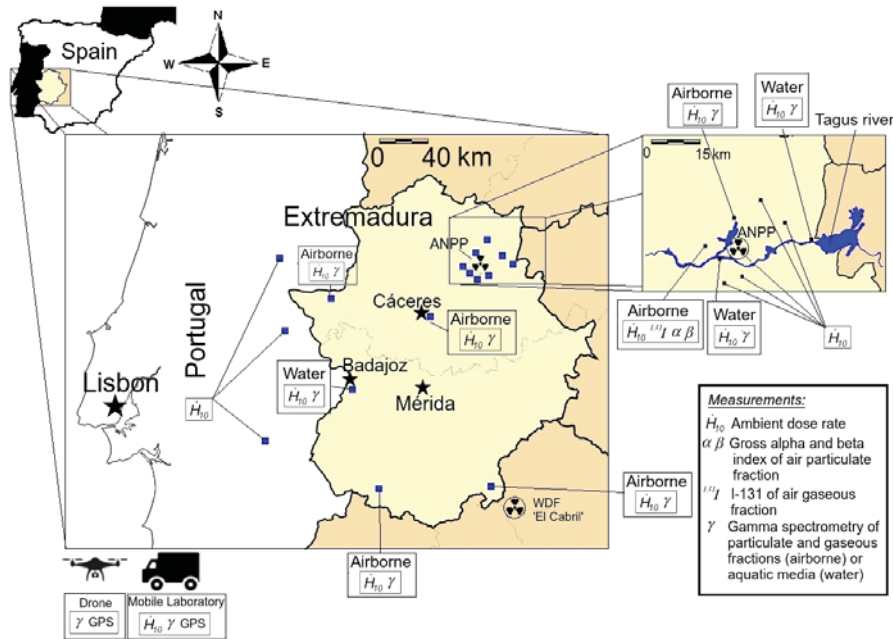


Figure 1. Map showing the RARE's headquarters (Cáceres) and its 17 monitoring stations. The stations are mainly placed around ANPP but also along the Spain-Portugal border and next to El Cabril (WDF). The radiological determinations which can be carried out by each individual monitoring station are also showed.

As complementary tools, the RARE has two mobile monitoring systems: a land vehicle (mobile laboratory) that can be used to perform in situ georeferenced radiological measurements and a drone with georeferenced gamma detection capability.

2.2. *Main specifications of the detection systems*

Each monitoring station includes a Geiger-Muller probe that covers a broad ambient dose equivalent rate range from 10 nSv/h to 10 Sv/h and energies from 0.045 to 2.0 MeV (manufacturers' specifications (Berthold, 1996)).

Related to the airborne monitoring stations, 1 of them are based on the BAI9100D Berthold system and the other 4 are a modified version of that device. In the modified monitoring stations, the main detection system is a 2''x2'' LaBr₃(Ce) scintillator detector which is placed to face the exposed filter that is used to recollect particulate fraction of air. For the determination of the gaseous fraction of radioiodine a 2''x2'' NaI(Tl) gamma detector is used. Gaseous fraction of radioiodine is retained in active charcoal cartridges which are situated in front of the gamma detector. A sophisticated mechanical device has been designed to change automatically the exposed cartridge by a new one but also remotely if it is required by the technical staff under certain radiological events. Both scintillation detectors are assembled to a compact digital multichannel analyser and placed inside a lead shield in order to reduce the gamma contribution of the cosmic and terrestrial background (Baeza, 2017).

On the other hand, related to the water monitoring stations, they are Berthold BAI-9125 modified systems (Baeza, 2014). This equipment consists of a (i) NaI(Tl) or LaBr₃(Ce) gamma spectrometer with a 2''x2'' crystal coupled to a compact digital multichannel analyser, (ii) a 25 L capacity stainless steel vessel. The vessel is surrounded by 5 cm thick lead shielding in order to attenuate the background radiation from the surroundings. A complex pipe system, that includes remotely controlled water pumps and electronic valves, allows to monitor the water flow intake to the 25 L vessel. Additionally, when anomalous activity concentration is detected, the system controller is designed to take a sample of water in order to be analysed later in a low background laboratory.

The RARE land vehicle (mobile laboratory) is equipped with a sealed proportional counter to register georeferenced ambient dose equivalent rate and two scintillation gamma spectrometers to perform analytical measurements of air and soil on the move (georeferenced passive determinations, i.e. without sampling). It is also equipped with a ionization chamber Reuter Stokes RS200 to be placed on a tripod for in situ ambient dose equivalent rate measurement of inaccessible areas for the van. It also carries a high resolution HPGe gamma detector both for in situ soil measurements or air and soil samples measurements inside of a

300 kg iron shield. In order to achieve great electrical autonomy, the vehicle has a battery, and UPS and a diesel generator which can altogether guarantees about 14 h coverage without refuelling (Baeza, 2013).

The performance of RARE network was successfully tested in a simulated Loss of Coolant Accident (LOCA) nuclear accident around Almaraz NPP in 2013 (CURIEX international exercise) (Baeza et al, 2016).

To conclude, it is important to mention that RARE quality management system is certified by ISO 9001:2015 (ISO, 2015) and, therefore, the network has demonstrated the ability to consistently provide data and services that meet customer (Regional Government of Extremadura and Spanish Nuclear Safety Council) and regulatory requirements and also continuous improvement. Moreover, RARE is accredited under the UNE-EN ISO/IEC 17025:2017 (ISO, 2017) standard for ambient dose equivalent rate measurements that implies complete guarantee of its technical competence.

2.3. *Communication routes, database management system and data storage*

The first design of the RARE network was based on a star distribution (Baeza et al, 1993). One NODE station, with functions as a smart multiplexer, received all radiation information provided by each station around the ANPP. This information was sent on to the CENTRAL station, placed in RARE headquarters, using a cable phone communication. It was carried out by means of 300 baud asynchronous modems working in duplex with RS-232 series connection. A specific communications protocol was designed to provide communication between the CENTRAL and the NODE stations. This protocol was based on the widely implemented XMODEM protocol. Related to the Data Base Management a specific software was developed, GESBDAT, which allowed a basic statistical management of the data. Technical staff received warnings from the CENTRAL computer through a beeper in case of ambient dose rate increments or certain operative anomalies.

In 2004, the RARE network was modified in order to improve the communications ways. The communication between the NODE station and the Cáceres headquarters was improved using a broadcast radio communication. This new communication way allowed to avoid communication problems between CENTRAL and NODE stations due to wire failures whose amends needed, in the best situation, to be repaired by phone company.

Since 2012, when the gamma spectrometry started to be implemented in RARE network, the number of data to be sent from the monitoring stations to Cáceres headquarters became huge. For this reason, an internet connection was installed in each monitoring stations both using 3G communications or local government network. In this way, each monitoring station has got, at least, two communication ways. In the case of the mobile laboratory, 3G using a conventional mobile phone is used as primary communication system but, in case of failure, the communication is automatically established through a satellite.

On the other hand, at the beginning of the RARE operation, a homemade database software was developed in order to manage the data sent by the monitoring stations. However, since 2012 a MYSQL database software have been developed as a powerful system because of its reliability, performance, and simplicity in use in order to improve the management of radiological data. Moreover, a data base storage structure based on the use of servers has been incorporated considering not just the volume of data but also other features such as the speed and ease of access, redundancy, security, as well as the longevity of the systems considering the probable growth of the RARE. At this moment, about 200000 data per day are received in Cáceres RARE headquarters and an efficient dealing of the information has been achieved.

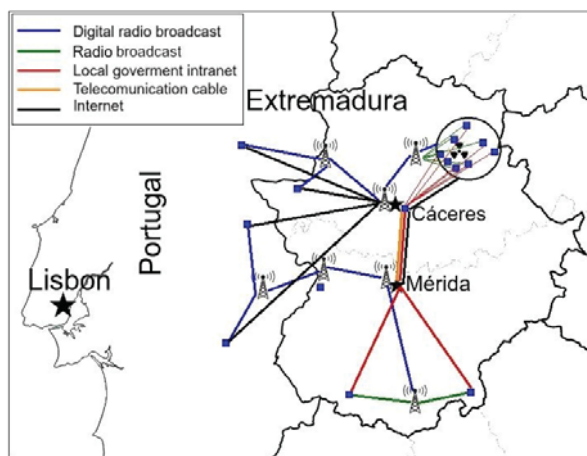


Figure 2. Schema showing the different communication paths between each monitoring station and Cáceres RARE's headquarters and Mérida local government.

2.4. Data analysis of RARE network

2.4.1. Daily assessment

The radiological status, the meteorological information and the operational parameters of the RARE network are daily supervised by the technical staff at Cáceres headquarters. Due to the huge number of data and deeply aimed by the crucial simplification of the essential and efficient evaluation, a powerful graphing system was home-developed. The software is called 'GráficasRARE' (RAREcharts in English) and provides real-time radiological monitoring and performance troubleshooting of the devices. 'GráficasRARE' software is fast and efficient and provides instantly diagnose of anomalies with different metrics, interactive visualizations, and insightful visual alarms. Its development has been done under the premises of stability and robustness and its commitment to the probable increasing of monitoring stations in future.

The oversight of the data is divided in four main sections:

a) Ambient dose equivalent rate: The measures carried out during the last 72 hours in each monitoring station are displayed, firstly, of the area close to ANPP and then of the rest monitoring stations. As an example, Figure 3 shows the temporal variation of ambient dose equivalent rate in each monitoring station close to ANPP (data of 5 minute-integration time). Also a red line sets the first upper limit established on 30% over the monthly average. At a glance, technical staff can identify an ambient dose equivalent rate anomaly or even an operational interruption. It should be pointed out that usually 72h is chosen to show data although this period is configurable.

b) *Gamma spectrometry*: The section is dedicated to show the activity concentration of different naturally occurring and man-made radionuclides measured by gamma spectrometry in airborne monitoring stations (particulate and gaseous fractions) and water monitoring stations. In each graph, the activity and Minimum Detection Activity (MDA) values are shown and they can be easily identify. Figure 4 shows the airborne gamma spectrometry monitoring station of Saucedilla which is situated close to ANPP. The activity and MDA determinations on 10 minute gamma spectra acquisition time are automatically performed by Basic Spectroscopy software and the Acquisition and Analysis software of Canberra's Genie2k™ package. In fact, if an increase of activity levels happens, when clicking on the 'GráficasRARE' chart the gamma spectrum will be loaded by the commercial application in order to be available for its supervision or reanalysis by the specialized technical staff.

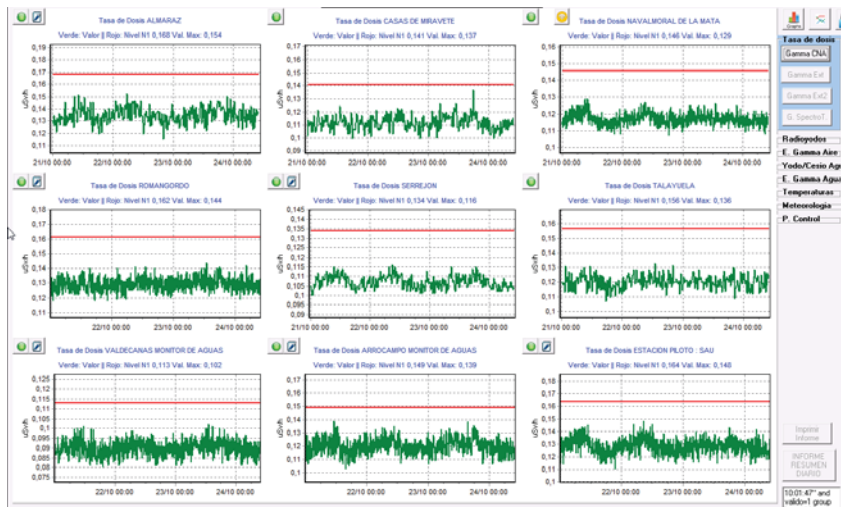


Figure 3. Screen capture of RARE’s software “GráficasRARE” which shows the time evolution of ambient dose equivalent rate during the last 72 h of each monitoring station located close to ANPP (in green: dose rate values – red line: 30% over the monthly average).

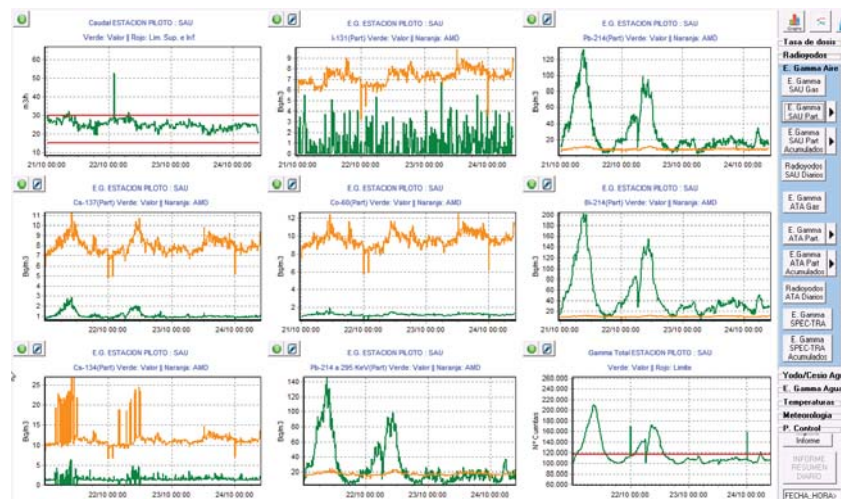


Figure 4. Screen capture of RARE’s software ‘GráficasRARE’ which shows an example of the activity and MDA determinations of 10-minute gamma spectra in Saucedilla airborne monitoring station.

In addition to the early warning mode, with the determinations of 10 minute-gamma spectra, a surveillance mode is also available through the analysis of 6 and 24 hour-gamma spectra. In

that situation, the MDA values decrease and the possibility to identify lower levels of contamination is boosted. Therefore, the gamma spectrometry allows RARE to operate in two different ways: early warning mode (short time acquisition: 10 min) and surveillance mode (long time acquisition: 6h and 24h). The MDA provided by RARE's air monitoring stations in surveillance mode are of less than 0.2 Bq/m³ and 0.02 Bq/m³ for 6 h and 24 h, respectively. From those MDA values, as it was detailed in a previous paper, measurements below the reporting levels established by the CSN, are guaranteed (Baeza, 2017). It is important to emphasize that the MDA of radioactive iodine in the 24h gamma-ray spectra is about the maximum activity detected in Cáceres after Fukushima accident (Baeza, 2012).

The measurements of the water monitoring stations are displayed by "GráficasRARE" in a similar way. The MDA evaluations, reported in a previous paper (Baeza, 2014), can be considered satisfactory for the monitoring purposes. For example, for 10-minute gamma-ray spectra, the ¹³¹I and Cs 137, values are about 4.5 and 6 Bq/L, respectively. Again, MDA are below the reporting limit established by CSN (CSN, 1994).

Not only radionuclide activity and MDA values are shown by 'GráficasRARE' software, also significant parameters like air or water flow or gross gamma counts are displayed. They give key information of the status of air or water pump system as well as the presence of other gamma radionuclides not covered by gamma analysis software.

c) *Meteorological data:* After an exhaustive review of radiological parameters of each monitoring station, the information related to weather stations is displayed. The essential parameters are: temperature, precipitation, relative humidity, wind speed and wind direction relative to ANPP or nearest radioactive facility (El Cabril waste disposal facility). These parameters are very important when a radiological anomaly is detected because they inform about the essential weather behaviour in real time during a radiological emergency.

d) *Operational data:* This section allows to monitor different control parameters like room and Geiger-Müller temperature, power supply and battery status of UPS systems and, moreover, communication ways status in each monitoring station. Therefore, technical staff can check the main indicators of the proper operation of the devices and prepare an interventional task where operational anomalies are identified.

Furthermore, the application allows to specify a time range in order to revise historical data of the RARE network.

2.4.2. Real time data analysis and warning system

In addition to the daily assessment activities of RARE performance by RARE technical staff, a permanent analysis of the data and a warning communication system are essential in order to maintain the real time surveillance status of the radiological network. For this reason, several software applications have been developed at RARE network in order to analysis the data provided by its systems at different levels. According to the Gartner Analytic Ascendancy model (Gartner, 2018), four different types of analysis can be identified and be ranked in terms of value and difficulty: descriptive, diagnostic, predictive and prescriptive analysis.

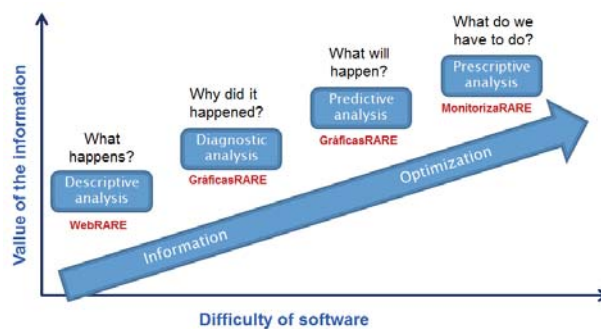


Figure 5. Gartner Analytic Ascendancy model for data interpretation and, in red, the RARE's home-made developed software package to face the different analysis. The linear relationship between value and difficulty is a simplification of reality (Gartner, 2018).

In fact, 'GráficasRARE' software, described in the previous section, can be established like a diagnostic analysis. For example, a trained staff can easily identify the presence of operational failures of the measurement systems, or recognise an ambient dose equivalent rate increment produced by rain events or an anomalous increment of man-made origin around one or more monitoring stations. The same software application, showing the data of the last 72 hours (although this period is configurable), can be considered like a predictive analysis tool because the tendencies of the radiological and radioactive parameters can be identified and used in order to take decisions about how to face a potential radiological event.

But, when speaking about emergency and response situation, is essential the existence of warning system to inform the technical staff, that is permanently on duty -24 hours a day-,

about radiological or operational anomalies. For this purpose, 'MonitorizaRARE' (RARE monitoring in English) software application have been developed. The performance of this application is based on rules, previously defined and intensely tested with real and simulated data, in order to inform about a radiological situation and/or an operational problem providing information and support for decision making by sending text message with SMS service (Short Message Service) to the mobile phone of the staff on duty. When it happens and the person on duty is not at the RARE headquarters, it is possible to check the radiological status of the RARE in a quick manner through a webpage, 'WebRARE', using the mobile phone or other device with internet connection that it has been previously authorized. 'WebRARE' is able to plot the radiological data (ambient dose equivalent rate, activity levels and MDA of naturally occurring and man-made radionuclides) and meteorological data of the last 8 hours including visual warnings when a radiological event happens. Therefore, 'WebRARE' can be considered as a descriptive analysis tool that provides a fast and precursory information about the radiological status of the RARE network to be later investigated in a deeply manner at RARE headquarters using 'GráficasRARE' application.

As an example of the SMS text messages generated by 'MonitorizaRARE' software application, the messages associated to ambient dose equivalent rate parameter anomalies are included in the table 1, considering the increment of ambient dose equivalent rate around one or more monitoring stations, its random and anomalous appearance (i.e., casual and abrupt increase and decrease) or its continuous and progressive behaviour (i.e., no abrupt increase or decrease), and how long they last. Previously, it is necessary to describe the three pre-established levels for that key parameter. **Level 1:** 30% of annual average dose rate from natural background. **Level 2:** 0.114 $\mu\text{Sv/h}$ plus annual average dose rate from natural background. **Level 3:** 0.228 $\mu\text{Sv/h}$ plus annual average dose rate from natural background. Level 1 guarantees the notification of a significant ambient dose equivalent rate alteration in a monitoring station, and can be considered as a pre-alarm stage for the network staff. Level 2 and Level 3 constitute an alarm situation as they are defined according to the Spanish regulations.

Number of stations	Level	Behaviour of the ambient dose equivalent rate	SMS text message for the RARE staff on duty and comments
1 or more	L1	Random and anomalous L1 or continuous L1 for less than 30 min.	-
1 or more	L1	Continuous L1 for more than 30 min.	«L1 at station A since hh:mm» and similar SMS text message for stations B, C,...
1 or more	L1	Continuous L1 for more than 1h.	«L1 confirmed at station A. CSN and JExt have to be informed before 48 h» and similar SMS text message for stations B, C,.... (For information purposes only)
1 or more	L2	Random and anomalous L2.	-
1	L2	Continuous L2 for less than 1h.	«L2 at station A. CSN and JExt have to be informed before 48 h.» (For information purposes only)
1	L2	Continuous L2 for more than 1h.	«L2 confirmed at station A. WARNING. CSN and JExt have to be immediately informed»
2 or more	L2	Continuous L2 for less than 30min.	«L2 at station A and station B since hh:mm.»
2 or more	L2	Continuous L2 for more than 30min.	«L2 confirmed at station A and station B. WARNING. CSN and JExt have to be immediately informed»
1 or more	L3	Random and anomalous L3.	-
1	L3	Continuous L3 for less than 30 min.	«L3 at station A since hh:mm».
1	L3	Continuous L3 for more than 30 min.	«L3 confirmed at station A. ALARM. CSN and JExt have to be immediately informed.»
2 or more	L3	Continuous L3.	«L3 confirmed at station A and station B. ALARM. CSN and JExt have to be immediately informed»

Table 1. SMS text messages received by the RARE staff on duty in case of dose rate anomalies giving the particular needs for Spanish National Safety Council (CSN) and regional Government of Extremadura (Jext).

Similarly, messages are sent by ‘MonitorizaRARE’ software informing about the operational anomalies (like air or water flow increase/decrease due to irregularities of the pump systems, significant increment of the room temperature to advert about a possible damage of the electronics devices, voltage drops due to external power supply failure, etc) and, of course, about increases of the activity concentrations above MDA values when gamma spectrometry is available at the monitoring station.

2.5. Quality control:

In the RARE network a management quality system is implemented since 2008 and, in fact, its operation is certified by the international ISO 9001 (firstly 2008 and later 2015) standard with the scope “Control, follow-up and maintenance of RARE”. However, in order to prove

the technical competence, the RARE is also accredited since 2017 by ISO/IEC 17025 (firstly 2005 and later 2017) standard with the scope “Ambient Dose Equivalent rate measurements by sealed proportional counter at permanent monitoring stations and terrestrial vehicle” which assures the technical competence to provide dose rate measurements on real-time.

The requirements that are established by ISO/IEC 17025:2017 are many and varied, although perfectly defined. But, concerning the measurements tests, the calibration and/or verification of the monitoring devices, the participation in external intercomparisons and the measurement of duplicates should be pointed out. Two sealed proportional counter are externally calibrated by a ISO17025 accredited laboratory once every three years. Then, these devices are used to verify the proper working of all the RARE’s Geiger-Müller monitors at least once a year. A plan of duplicate measurements has been established such way that a duplicate is carried out once a semester and the different monitoring stations are considered (two different stations a year). It is based on the use of a itinerant Geiger-Müller monitor that is placed as close as possible to the own monitor of each station in that way that both monitors are working simultaneously during at least two months. The reproducibility of the data is checked. Finally, every three years RARE network participates in an external intercomparison. As an example, the last one was the IRSN 154DI300 outdoor gamma dose rate intercomparison which was carried out in June 2018 (IRSN, 2018). In that intercomparison a new Reuter Stokes RS Detection RS-S131-200 system was used.

3. Results and discussion

The goal of this section is to illustrate the combined performance of the RARE software applications in different scenarios, such as involving real operational anomalies and radiological events, but also using simulated radiological data.

3.1. Software performance during real operation of RARE

3.1.1. Automatic interruption and connection of equipment

Conventional electronic components are designed to operate over a specified temperature range. Extremadura region exhibits a continental climate moderated by dominant Atlantic westerly and south-westerly winds. It corresponds to the class Csa according to the Köppen classification (Kottek, 2006). During summer the average monthly temperatures in excess of 24°C with maximum of 42° C. For this reason, air condition systems are used at the monitoring stations to maintain the room temperature below 30°C and to protect electronic

devices from overheating. As an example, according with the operational rules defined with ‘MonitorizaRARE’ software application, three SMS text message about anomalous temperature and different electronic devices of one of the RARE’s monitoring station were received at the mobile phones and, through the use of ‘GráficasRARE’ application, the operational anomaly was easily examined (figure 6).

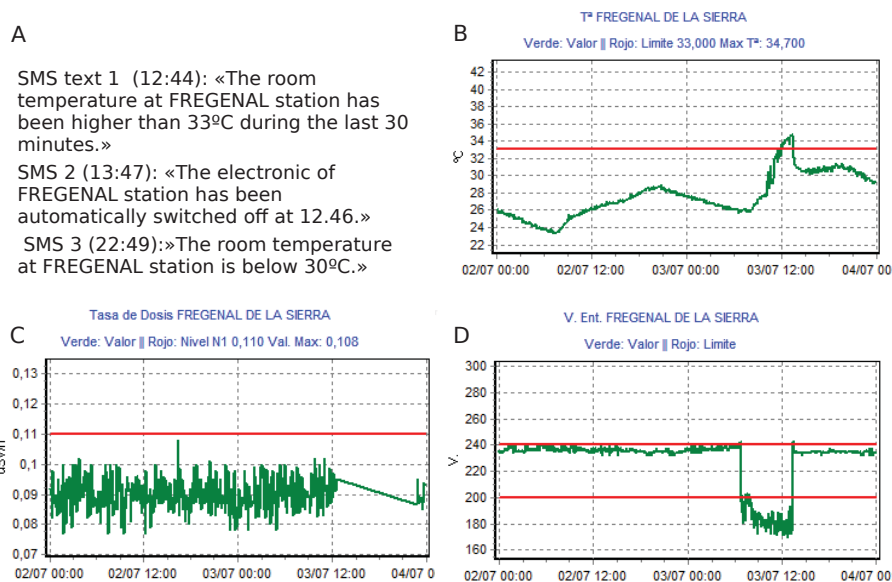


Figure 6. A) SMS text messages received at the mobile phone during an operational failure and data plotted by ‘GráficasRARE’ software on real time from Fregenal de la Sierra airborne monitoring station: B) room temperature C) ambient equivalent dose rate and D) input power supply voltage. For B and D graphs, the proper operational limits are displayed using red lines.

The first SMS text message informed about an anomalous high room temperature at Fregenal de la Sierra monitoring station. The value exceeded the predefined value of 33°C during 30 minutes and, as consequence, the electronic devices were automatically switched off as it was informed to the technical staff by a second SMS text message. The values of the temperature were uninterruptedly measured at the station, but the ambient dose equivalent rate determination was obviously stopped when, after reaching high temperature, the electronic interruption occurred, as it could be checked at Cáceres headquarter using ‘GráficasRARE’ application. By consulting the input power supply voltage, monitored by the UPS and plotted by ‘GráficasRARE’, a drop in power supply voltage was identified. Therefore, the operational anomaly can be understood in this way: the power supply failure produced a shutdown of the

air conditioning system, then, the room temperature increased and the electronic systems of the monitoring devices were automatically stopped. After some hours, the power supply was automatically re-established, then the air conditioning system run again. The third SMS text message was sent automatically by ‘MonitorizaRARE’ software when the room temperature decreased below 30°. When the power supply was recovered and the room temperature decreased to an operational range, the technician verified the proper working conditions and, remotely, switch on the electronic devices.

3.1.2. False positive radiological anomaly

‘GráficasRARE’ application allows the review of historical data in order examine trends. In fact, a slight increase of ambient dose equivalent rate measurement by one of the Geiger-Müller monitors was observed. By graphing a long period of data, the starting of the anomaly was identified weeks ago. Despite the continuous increase, the no presence of increments in nearby monitoring stations suggested an operational failure of the Geiger-Müller monitor, probably because the dissociation of the quenching gas. In fact, when the monitor was replaced the typical values of the area were registered (figure 7).

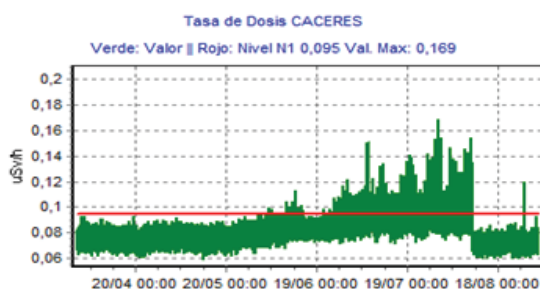


Figure 7. Ambient dose equivalent rate anomaly due to the Geiger-Müller failure in a RARE monitoring station.

3.1.3. Radiological anomalies

The increase of ambient dose equivalent rate due to the scavenging processes of the airborne naturally occurring radionuclides during precipitation events is a well-known phenomenon (Fujinami, 1996) However, there is a possibility that a simultaneous weak man-made radiological anomaly could be overlooked during those rainy events. For these situations, it is advantageous to have gamma spectrometry monitoring to infer the contribution of natural and

man-made gamma emitters. In figure 8, an example is shown: during a rainy event, clear dose rate increments are identified, no alteration of activity concentrations are recorded (as an example, activity concentration and MDA of ^{131}I is included), although a simultaneous increment of the gross gamma counts in the scintillation detector, produced by natural descents of radon (^{212}Pb and ^{212}Bi), is registered.

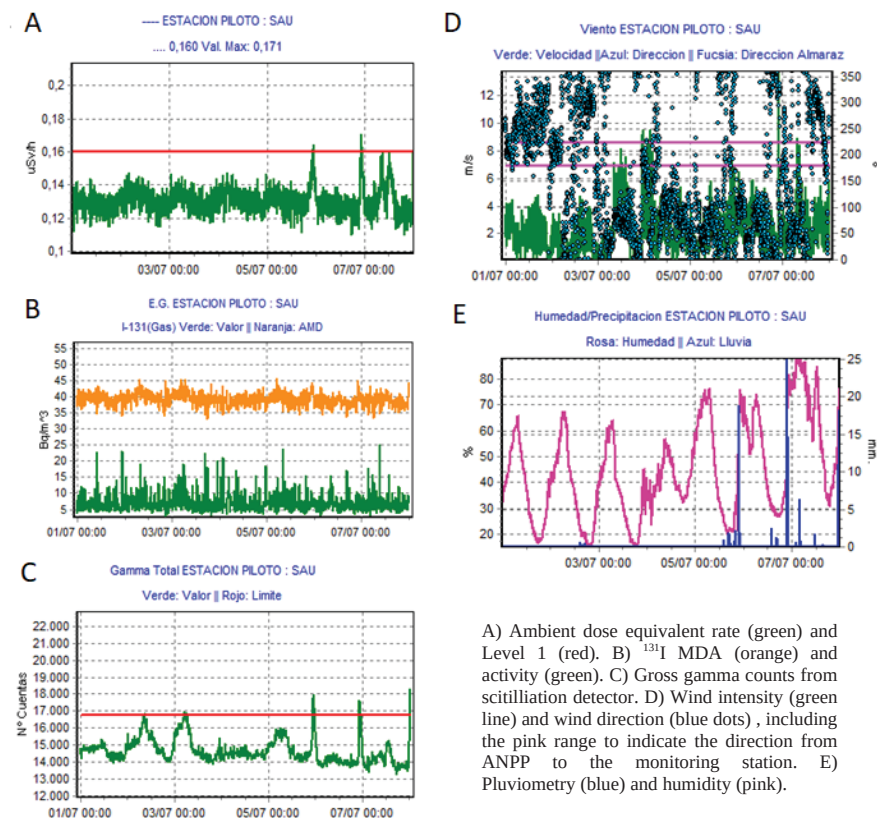


Figure 8. Ambient dose equivalent rate increments during a rainy event and some of the radiological and meteorological parameters easily overseen using 'GáficasRARE' software.

On the other hand, significantly high spurious dose rate increases are sometimes detected. They are mostly related to electronic noises in the Geiger-Müller probe. However, there is a very small probability, but no despicable, that they could be related to a short time exposure to a radioactive source. For example, in Figure 9 it is plotted the dose rate registered by the proportional counter of our mobile laboratory when a lorry carrying radioactive waste was

driving to El Cabril WDF: there are two increments, A and B, that correspond to measurements at a long and short distance from the mobile laboratory, respectively. In that situation, without gamma spectrometry capabilities, it was impossible to identify the gamma emitter radionuclides that were involved.

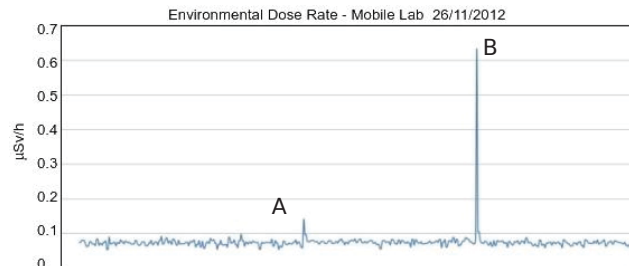


Figure 9. RARE detection of increments of ambient dose equivalent rate by the mobile laboratory when a lorry carrying radioactive waste was driving to El Cabril WDF. Measurements of 30 s during 3 hours.

3.2. Software performance using data from a nuclear accident simulation

In 2013, the Cáceres Urgent Response International Exercise CURIEX, (Baeza, 2016) was held. The goal of the exercise was to evaluate the capability of the different European radiological teams to quantify the radioactive impact that would occur simulating a release of a nuclear plume of ANPP. In fact, the effectiveness of RARE network during the simulated nuclear accident was satisfactory proved as it is detailed in a previous work (del Campo, 2013).

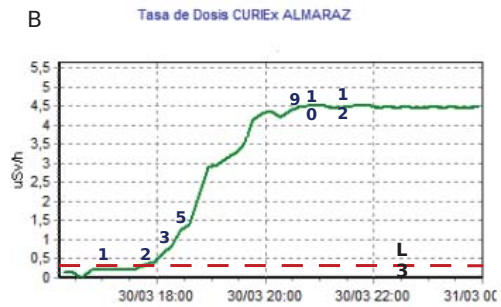
Later, after having developed the new software applications, the CURIEX scenario was considered suitable to assess their capabilities. For that, a reduced range of the ambient dose equivalent rate data of the Almaraz and Navalmoral monitoring stations used during the CURIEX was considered. Additionally, a simulated increment of the same radiological parameter in Saucedilla monitoring station (where gamma spectrometry was available) was produced. The data were introduced in RARE databases every 10 minutes, in order to accelerate the simulation, and the performance of 'MonitorizaRARE' (sending SMS text messages), 'WebRARE' (showing early charts in mobile devices) and 'GráficasRARE' (plotting all the registered parameters by the network) was tested. In figure 10, the SMS text messages received during the first hours of the simulation on real time are incorporated and, additionally, the graphs of ambient dose equivalent rate from the three involved stations are shown. The effectiveness of the combined performance of the applications is shown in figure

10, since each message was received at proper time according with the temporal requirements defined in table 1: notifications of the appearance of levels L1, L2 and L3 and, of course, their confirmations considering the time they lasted and the number of stations that were involved.

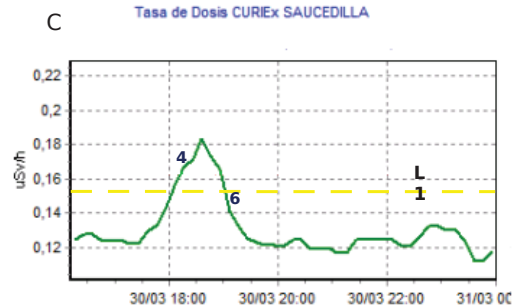
A

SMS 1 (17:08): « L1 at CURIEX ALMARAZ since 16 :46»
 SMS 2 (17:49): « L1 confirmed at CURIEX ALMARAZ. CSN and JExt have to be informed before 48 h »
 SMS 3 (18:18): « L3 at CURIEX ALMARAZ since 17:56»
 SMS 4 (18:19): « L1 at CURIEX SAUCEDILLA since 17:46»
 SMS 5 (18:29): « L3 confirmed at CURIEX ALMARAZ. ALARM. CSN and JExt have to be immediatly informed»
 SMS 6 (19:07): « L1 at CURIEX SAUCEDILLA has finished»
 SMS 7 (19:10): « L1 at CURIEX NAVALMORAL since 18 :46»
 SMS 8 (19:47): « L1 confirmed at CURIEX NAVALMORAL. CSN and JExt have to be informed before 48 h»
 SMS 9 (20:39): « L2 at CURIEX ALMARAZ and CURIEX NAVALMORAL since 20:26»
 SMS 10 (20 :57): « L2 confirmed at station CURIEX ALMARAZ and CURIEX NAVALMORAL. WARNING .CSN and JExt have to be immediatly informed »
 SMS 11 (21:28): « L2 confirmed at CURIEX NAVALMORAL. WARNING .CSN and JExt have to be immediatly informed »
 SMS 12 (21:37): « L3 at CURIEX ALMARAZ and CURIEX NAVALMORAL since 21:16. ALARM. CSN and JExt have to be immediatly informed »

B



C



Tasa de Dosis CURIEx NAVALMORAL

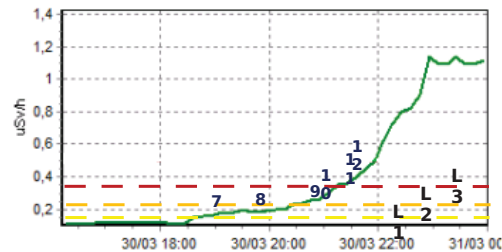


Figure 10. A) SMS text messages and when are they sent by 'MonitorizaRARE' software to the technical staff. Ambient dose rate from three different monitoring stations around ANPP B) Almaraz, C) Saucedilla and D) Navalmoral de la Mata, plotted by 'GráficasRARE' application using, partially, data from the international emergency exercise CURIEX 2013. On the graphs, the levels L1, L2 and L3 for each particular location have been included using yellow, orange and red lines, respectively, but also the numerical identification of the received messages.

The introduction of a simulated radiological increment in a monitoring station with gamma spectrometry was done in order to prove the proper graphing of ^{131}I and ^{137}Cs radioactive concentrations and the capability of direct opening of the spectrum with the spectrometric software just by clicking the increment on 'GráficasRARE' application. This is a very useful tool to confirm or reject the presence of photopeaks and, if it is required, to carry out a detailed analysis of the spectrum containing the radiological anomaly by the trained staff. SMS text messages about this anomaly were also sent by 'MonitorizaRARE' application. Figure 11 shows these functionalities about gamma spectrometry analysis during the simulation of the nuclear accident.

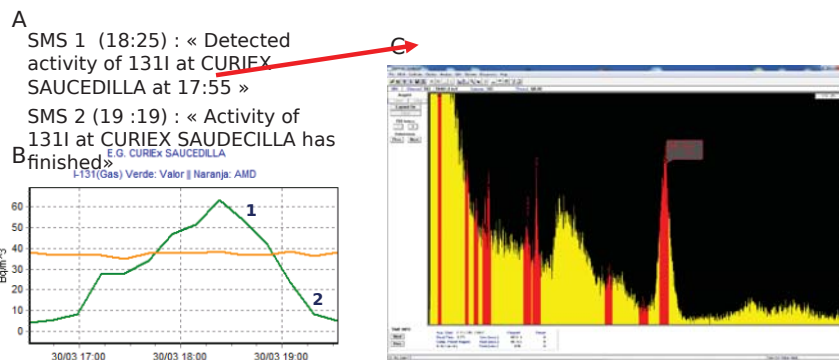


Figure 11. A) SMS text message sent by 'MonitorizaRARE' software to the technical staff and B) ^{131}I activity concentration (green) and MDA (orange) in Saucedilla monitoring station plotted by 'GráficasRARE' during the simulation of the nuclear accident around ANPP. The labels inside the graph indicate when the received message are received. C) Automatic opening of the gamma spectrum by Genie2KTM software package with the radiological anomaly after clicking on the graph.

4. Conclusions

After 30 years operating the RARE network, it is important to resume the main functionalities parameters that, from our point of view and experience, are critical in a radiological early warning network:

- The communications play a key role in an emergency. It is impossible to give an appropriate prompt response during a radiological emergency if the competent authorities do not receive information of the radiological status of the affected area on quasi real time. For this reason, we strongly support that each monitoring station must be provided with, at least, two communications ways and, as far as possible, one of

them must be independent of external power supply like RF or satellite communications.

- The efficient management of data is essential in order to give an accuracy information to competent authorities. The radiological and non-radiological information must be displayed to be easily and impartially interpreted by the technical staff. Powerful analytical tools are required not only for graphing and warning but also including a real time decision support system. In fact, one of the goals of this paper has been to point out the great advantages of data assessment automation.
- The power supply autonomy is another fundamental capability in an emergency network. As it was cited in previous sections, the first 48 – 72 h after a nuclear accident are critical in order to provide a fast and proper response by competent authorities. For this reason, each monitoring station must be in operation even if the electrical power supply has shut down.
- It is clear that the ambient dose equivalent rate is a fundamental parameter in the field of dosimetry and must be monitored. However, as it has been mentioned in this paper, the main drawback is based on the impossibility to individually identify and quantify each of the natural and/or man-made radioisotopes that produce alterations over the natural background. In fact, the only way to identify radioisotopes and quantify activity concentrations in quasi-real-time is to use automatic gamma spectrometry monitoring stations. RARE's atmospheric monitoring stations are based not only on gamma dose rate determinations by Geiger-Müller counters (passive measurements) but also on sample retention and the gamma spectrometry of its gaseous and the particulate fractions. From our gamma spectrometry systems, there are two operational modes: surveillance mode (based on the 24h spectra) and warning mode (based on 10 min spectra). However, the presence of radioactive sources may occur far from the airborne collector and could not be detected by our gamma spectrometry systems. In that situation, the Geiger-Müller response is guaranteed for a wider range of situations.

For all above mentioned, RARE network has been continuously working to expand its analytical capabilities and to strength its operational functionalities by the introduction of new developments and methodologies.

Acknowledgments

The performance and development of the RARE network during the last 30 years has been possible thanks to the collaboration and financial support of Regional Government of Extremadura (Junta de Extremadura) and Spain's Nuclear Safety Council (CSN), through different cooperation agreements and research projects.

And, finally, we are grateful to previous and current members of the our LARUEX research group for their dedication to the RARE network.

References

- (Baeza, 1993) Baeza, A., Del Puerto, J. A., Del Rio, M., Miró, C., Ortiz, F., & Paniagua, J. M. (1993). Development and operativity of a real-time radiological monitoring network centered on the nuclear power plant of Almaraz, Spain. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 40(6), 2014-2020.
- (Baeza, 2012) Baeza, A., Corbacho, J. A., Rodríguez, A., Galván, J., García-Tenorio, R., Manjón, G., ... & Serrano, I. (2012). Influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident on Spanish environmental radioactivity levels. *Journal of environmental radioactivity*, 114, 138-145.
- (Baeza 2013) Baeza, A., Corbacho, J. A., & Miranda, J. (2013). Design and implementation of a mobile radiological emergency unit integrated in a radiation monitoring network. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 60(2), 1400-1407.
- (Baeza,2014) Baeza, A., Caballero, J. M., Corbacho, J. Á., Ontalba Salamanca, M. Á., & Vasco, J. (2014). Proposed improvements to existing water monitoring systems in automatic radiological warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 34(2), 313.
- (Baeza, 2016) Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. A., Valencia, D., Vasco, J., & Gil, J. M. (2016). Lessons learnt from the radiological measures performed by the Radiological Emergency Network of Extremadura in the International Emergency Exercise CURIEX 2013. *Journal of Radiological Protection*, 36(3), 616.
- (Baeza,2017) Baeza, A., Corbacho, J. A., Caballero, J. M., Ontalba, M. A., Vasco, J., & Valencia, D. (2017). Development of an advanced radioactive airborne particle monitoring system for use in early warning networks. *Journal of Radiological Protection*, 37(3), 642.
- (Berthold,1992) BAI-9125 water monitoring system. 1992. Manual. Berthold Technologies.
- (Berthold, 1996) Berthold G 1996 Gamma dose rate detector LB BAI 6361

(Berthold,1997) Berthold Technologies, 1997. Combined particulates-iodine monitor BAI 9850-6, Standard Manual.

(CSN, 1994) Consejo de Seguridad Nuclear, Control de seguridad del agua de bebida, Guía de seguridad nº 7.7, 1994 (in Spanish).

(del Campo, 2013) del Campo D, Lorente N and Serrano J 2013 Estimación de las medidas de las redes de alerta a la radiactividad en el entorno de C.N. Almaraz (RAR y RARE) y de las unidades móviles desplazadas a la zona durante la realización del ejercicio CURIEX 2013 (In Spanish) Technical Report CSN/TGE/AEIR/13/2321 www.curiex.es/en/home (For English readers).

(EU,1996) Council Directive 96/29/Euratom of 13 May 1996 laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation.

(Fujinami, 1996) Fujinami, N. (1996). Observational study of the scavenging of radon daughters by precipitation from the atmosphere. *Environment International*, 22, 181-185.

(Gartner, 2018). Gartner. *Analytics. Gartner moves to the core. 2018*. Retrieved from: <http://www.ithappens.nu/levels-of-data-analytics/>

(Kottek, 2006) Kottek, M., Grieser, J., Beck, C., Rudolf, B., & Rubel, F. (2006). World map of the Köppen-Geiger climate classification updated. *Meteorologische Zeitschrift*, 15(3), 259-263.

(ISO,2015) ISO 9001:2015(en) Quality management systems— Requirements.

(ISO,2017) ISO/IEC 17025:2017.General requirements for the competence of testing and calibration laboratories.

(IRSN, 2018) RESULTATS DE L'ESSAI D'APTITUDE 154 DI 300. Mesure du débit d'équivalent dedose gamma ambiant. PSE-ENV/SAME/2018-00030. Service d'analyses et de métrologie de l'environnement.INTERLABORATORY COMPARISON FOR THE ENVIRONMENT ORGANIZED BY IRSN. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire [in French].

7.- Sistemas de detección de la RARE 2020

Sistemas de detección de la RARE (2020).

MONITORES DE TASA DE EQUIVALENTE DE DOSIS AMBIENTAL			
Nombre de las estaciones de la RARE y su localización	Tipo	Rango de sensibilidad H*(10)	VÍAS DE TRANSMISIÓN DE DATOS
	Fabricante		
	Modelo		
Saucedilla 39°51'24,5"N 5°40'43,1"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Intranet Radio analógica Radio digital(4RF)
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL		
Romangordo 39°44'31,6"N 5°42'02,9"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁴ µSv/h a 2 Sv/h	Intranet Radio analógica Radio digital(4RF)
	BERTHOLD		
	Simple		
Almaraz 39°48'51,5"N 5°40'37,3"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Intranet Analogical radio Radio digital(4RF)
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL		
Navalmoral de la Mata 39°53'32,6"N 5°32'40,3"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 5x10 ⁻³ Sv/h	Intranet Radio analógica Radio digital(4RF)
	BERTHOLD		
	LB6360H10 (alta)	y 10 ⁻⁴ Sv/h a 0,2 Sv/h	
	LB6361H10 (baja)		
Serrejón 39°49'07,7"N 5°47'58,5"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 5x10 ⁻³ Sv/h	Intranet Radio analógica Radio digital(4RF)
	BERTHOLD		
	LB6360H10 (alta)	y 10 ⁻⁴ Sv/h a 0,2 Sv/h	
	LB6361H10 (baja)		
Casas de Miravete 39°43'39,0"N 5°44'36,7"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 ⁻² Sv/h	Radio analógica Radio digital(4RF)
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer		

Nombre de las estaciones de la RARE y su localización	MONITOR DE TASA DE EQUIVALENTE DE DOSIS AMBIENTAL		VÍAS DE TRANSMISIÓN DE DATOS
	Tipo	Rango de sensibilidad \dot{H}_{10}	
	Fabricante		
	Modelo		
Talayuela 39°57'16,2"N 5°36'14,6"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio analógica Radio digital(4RF)
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL		
Arrocampo 39°46'58,16"N 5°44'24,72"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio analógica Radio digital (4RF) 4G
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Cáceres 39°28'45,85"N 6°20'51,11"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Conexión directa
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Atalaya Santiago de Alcántara 39°36'14,3"N 7°12'58,6"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (RADWIN) 4G
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Badajoz 38°50'43,5"N 7°2'37,52"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (RADWIN) 4G
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Fregenal de la Sierra 38°9'58,07"N 6°39'22,42"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁴ μSv/h a 0,2Sv/h	Radio digital (4RF) Intranet
	BERTHOLD		
	Simple		
Azuaga 38°15'36,95"N 5°41'18,41"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (4RF) Intranet
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		

Castelo Branco 39°49'0,23"N 7°30'37,02"W	Geiger-Müller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (RADWIN) Internet
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL		
Portalegre 39°15'58,58"N 7°25'47,1"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (RADWIN) Internet
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Evora 38°32'47,47"N 7°54'57,24"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁸ Sv/h a 10 Sv/h	Radio digital (RADWIN) Internet
	SAPHYMO		
	Gamma Tracer XL2-2		
Valdecañas 39°49'36,24"N 5°27'18,75"W	Geiger-Mueller	10 ⁻⁴ µSv/h a 0,2Sv/h	Radio analógica Radio digital(4RF) 4G
	BERTHOLD		
	Simple		

MONITORES DE TASA DE EQUIVALENTE DE DOSIS AMBIENTAL UTILIZADOS PARA VERIFICACIONES Y/O CONTROLES DE CALIDAD DE LA RARE			
Función	Tipo	Sensibilidad	Fecha de la última calibración (C) o verificación (V)
	Fabricante		
	Modelo		
Monitor utilizado como repuesto y para duplicados (verificado anualmente)	Geiger-Müller	Ĥ ₁₀ fondo 500 mSv/h	Febrero 2018 (V)
	ENVINET		
	MIRA-10-L-B		
Monitor externamente calibrado (frecuencia: triannual) utilizado para las verificaciones de los monitores de tasa de dosis	Contador proporcional (2 unidades)	0 µSv/h a 1 mSv/h Ĥ ₁₀	Noviembre 2017 (C)
	FAG		
	FHZ 600A		
Monitor externamente calibrado (frecuencia: triannual) utilizado para las verificaciones de los monitores de tasa de dosis	Contador proporcional	-2.298 10 ⁻⁸ A/R/h	Enero 2018 (C)
	Reuter-Stokes		
	100 R/Hr		

ESTACION DE MONITORIZACIÓN RADIOLÓGICA DEL AIRE EN LA RARE

Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema de detección.	Filtro y caudal	Parámetros radiológicos	Frec. Medida	Vías de transmisión de datos
Serrejón 39°49'07,7"N 5°47'58,5"W	<u>Fracción de partículas:</u> ZnS(Ag)+plástico +circuito electrónico pseudocoincidencia	Fibra de vidrio 22m ³ /h	α, β, γ , ²²² Rn	5 min	Intranet Radio analógica Radio digital (4RF)
Estación de monitorización atmosférica Berthold LB 9850	<u>Fracción gaseosa:</u> 2"x2" NaI (Tl)+ circuito analizador de dos monocanales Berthold	Cartucho de carbón activo 5-6 m ³ /h	¹³¹ I		

**ESTACIONES DE MONITORIZACIÓN RADIOLÓGICA DEL AIRE
DOTADAS DE ESPECTROMÉTRIA GRAMMA EN LA RARE**

Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema de detección.	Filtro y caudal	Isótopos	Frec. Medida	Vías de transmisión de datos
<p>Saucedilla</p> <p>39°51'24,5"N 5°40'43,1"W</p> <p>Sistema desarrollado por la RARE a partir de estación de monitorización atmosférica Berthold LB 9850</p>	<p><u>Fracción de partículas:</u></p> <p>1.5"x1.5"LaBr₃(Ce)+ analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías de Genie2K</p>	<p>Fibra de vidrio</p> <p>20–30 m³/h</p>	<p>⁶⁰Co , ⁶⁵Zn ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba ²¹²Bi, ²¹²Pb, ²⁴¹Am, ²²²Rn</p>	<p>10 min 6h 24h</p>	<p>Intranet</p> <p>Radio analógica</p> <p>Radio digital (4RF)</p>
	<p><u>Fracción gaseosa:</u></p> <p>Genie2K software 2"x2" NaI (Tl)+ analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Cartucho de carbón activo</p> <p>5 m³/h</p>	<p>¹³¹I</p>		

Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema de detección.	Filtro y caudal	Isótopos	Frec. Medida	Vías de transmisión de datos
<p>Azuaga</p> <p>38°15'37,15"N 5°41'17,9 W</p> <p>Sistema desarrollado por la RARE a partir de estación de monitorización atmosférica Berthold LB 9850</p>	<p><u>Fracción de partículas:</u></p> <p>1.5"x1.5"LaBr₃(Ce)+analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Fibra de vidrio</p> <p>20–30 m³/h</p>	<p>⁶⁰Co, ⁶⁵Zn ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba ²¹²Bi, ²¹²Pb, ²⁴¹Am, ²²²Rn</p>	<p>10 min 6h 24h</p>	<p>Intranet</p> <p>Radio Digital (4RF)</p>
	<p><u>Fracción gaseosa:</u></p> <p>Genie2K software 2"x2" NaI (Tl)+analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Cartucho de carbón activo</p> <p>5m³·h⁻¹</p>	<p>¹³¹I</p>	<p>10 min 6h 24h</p>	

Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema de detección	Filtro y caudal	Isótopos	Frec. Medida	Vías de transmisión de datos
<p>Atalaya Santiago de Alcántara</p> <p>39°36'14,3"N 7°12'58,6 W</p> <p>Sistema desarrollado por la RARE a partir de estación de monitorización atmosférica Berthold LB 9850</p>	<p><u>Fracción de partículas:</u></p> <p>1.5"x1.5"LaBr₃(Ce)+analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Fibra de vidrio</p> <p>20–30 m³.h⁻¹</p>	<p>⁶⁰Co, ⁶⁵Zn ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba ²¹²Bi, ²¹²Pb, ²⁴¹Am, ²²²Rn</p>	<p>10 min 6h 24h</p>	<p>Radio Digital (RADWIN)</p> <p>4G</p>
	<p><u>Fracción gaseosa:</u></p> <p>Genie2K software 2"x2" NaI (Tl)+analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Cartucho de carbón activo</p> <p>5m³.h⁻¹</p>	<p>¹³¹I</p>		

Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema de detección	Filtro y caudal	Isótopos	Frec Medida	Vías de transmisión de datos
<p>Fregenal de la Sierra</p> <p>39°36'14,3"N 7°12'58,6 W</p> <p>Sistema desarrollado por la RARE a partir de estación de monitorización atmosférica Berthold LB 9850</p>	<p><u>Fracción de partículas:</u></p> <p>1.5"x1.5" LaBr₃(Ce)+ analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Fibra de vidrio</p> <p>20–30 m³·h⁻¹</p>	<p>⁶⁰Co, ⁶⁵Zn ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba ²¹²Bi, ²¹²Pb, ²⁴¹Am, ²²²Rn</p>	<p>10 min</p>	<p>Intranet</p> <p>Radio Digital (4RF)</p>
	<p><u>Fracción gaseosa:</u></p> <p>Genie2K software 2"x2" NaI (Tl)+ analizador multicanal compacto Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>Cartucho de carbón activo</p> <p>5m³·h⁻¹</p>	<p>¹³¹I</p>	<p>6h</p> <p>24h</p>	

ESTACIONES DE MONITORIZACIÓN RADIOLÓGICA DE AGUA DOTADAS DE ESPECTROMETRÍA GRAMMA EN LA RARE				
Nombre de la estación de la RARE, localización y tipo de sistema	Sistema espectrométrico	Isótopos	Frec. Medida	Vías de trasmisión de datos
<p>Arrocampo 39°46'58,16" N 5°44'24,72" W Sistema desarrollado por la RARE</p>	<p>2"x2" LaBr₃(Ce)+ analizador multicanal compacto Ortec Software RARE utilizando librerías GammaVision</p>	<p>⁶⁰Co, ¹³¹I, ¹³⁷Cs, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb</p>	<p>10 min</p>	<p>Radio analógica Radio digital (4RF) 4G</p>
<p>Valdecañas 39°49'36,24" N 5°27'18,75" W Sistema desarrollado por la RARE</p>	<p>2"x2" NaI (Tl)+ analizador multicanal compacto Estabilizado en temperatura Canberra Software RARE utilizando librerías Genie2K</p>	<p>¹³¹I, ¹³⁷Cs, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb, ⁴⁰K</p>	<p>10min 6h 24h</p>	<p>Radio analógica Radio digital (4RF) 4G</p>
<p>Badajoz 38°50'43,5" N 7°02'37,5" W Sistema desarrollado por la RARE</p>	<p>3"x3" NaI (Tl)+ analizador multicanal compacto Estabilizado en temperatura Ortec Software RARE utilizando librerías GammaVision</p>	<p>¹³¹I, ¹³⁷Cs, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb, ⁴⁰K</p>	<p>10min</p>	<p>Radio analógica Radio digital (Radwin) 4G</p>