

UM SISTEMA PARA MONITORAÇÃO DO RADÔNIO E SEUS PRODUTOS DE DECAIMENTO NA ATMOSFERA¹

E.B. PEREIRA, D.J.R. NORDEMANN, A.M. TAKASHIMA
L.S.V. DUTRA E S.L. MANTELLI NETO

Instituto de Pesquisas Espaciais — INPE
Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico — CNPq
Caixa Postal 515 — 12200 — São José dos Campos — SP — Brasil

A device to simultaneously measure the radon content of the atmosphere and its decay products associated with the atmospheric aerosols is described. The radon daughters are continuously precipitated through an electrostatic field onto an alpha particle detector which is also the collecting electrode. Either total counting or spectral analysis can be obtained as output data. The decay products of radon associated to the aerosols are measured in membrane filters after collecting the atmospheric aerosols within a given sampling time interval. The sensitivity of the instrument is better than $0.61 \text{ pCi}\cdot\text{m}^{-3}$, and the response time to a transient concentration change of radon is better than 20 minutes, in the present configuration.

INTRODUÇÃO

O gás nobre radônio e seus produtos de decaimento na atmosfera têm revelado grande potencialidade como traçadores em pesquisas que envolvem a circulação e o balanço dinâmico de grandes massas de ar (Larson & Bressan, 1980) e na determinação dos tempos de residência dos aerossóis, tanto na troposfera quanto na baixa estratosfera (Lambert et alii, 1982), em estudos dos efeitos da radiação ionizante na eletricidade atmosférica (Bricardi, 1965; Israelsson, 1980) e na monitoração da radioatividade atmosférica nas proximidades de reatores nucleares e de minas de urânio e de fosfato, tendo em vista a proteção radiológica.

Neste trabalho, apresenta-se um instrumento desenvolvido especificamente para permitir um estudo quantitativo e simultâneo do gás radônio na atmosfera e de seus produtos de decaimento associados aos aerossóis atmosféricos (depósito ativo). O radônio pode ser monitorado continuamente, enquanto o seu depósito ativo é medido diretamente em filtros de membrana, após um intervalo de tempo de coleta que depende da atividade no local.

PRINCÍPIOS FÍSICOS DO SISTEMA

O sistema de coleta de amostra constitui uma adaptação da antiga técnica de coleta eletrostática dos produtos de decaimento do radônio em fios e placas metálicas. Essa

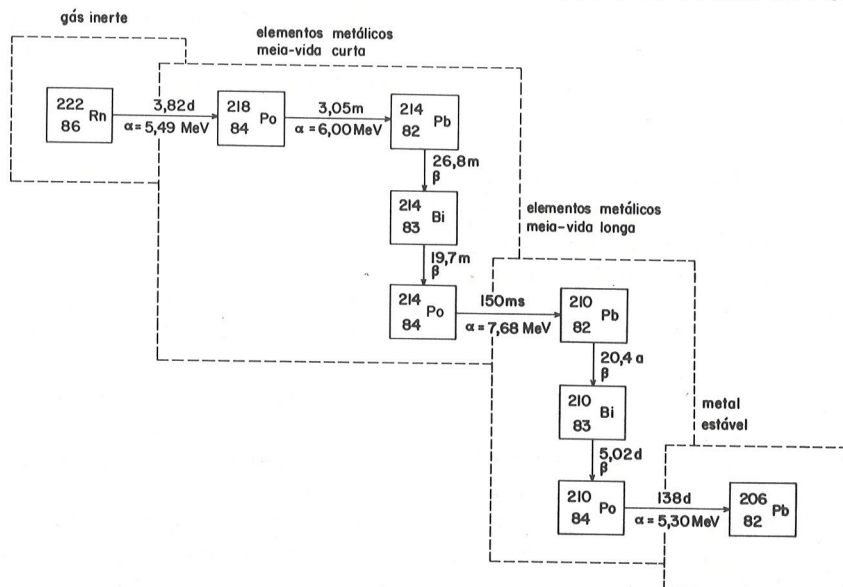


Figura 1 — Série radioativa simplificada do Radônio 222 , indicando o tipo de radiação emitida, energia das radiações alfa e meia-vida dos diversos decaimentos (s=segundos, m=minuto, d=dias, a=anos).

¹ FNDCT, Contrato FINEP 537/CT e CIRM, Subprojeto 9586.

técnica sofreu várias modificações e aperfeiçoamentos ao longo dos anos por vários pesquisadores (Wilkening, 1964; Costa-Ribeiro, 1969; Wrenn et alii, 1975; Negro & Watnick, 1978; Porstendörfer et alii, 1980). O instrumento aqui descrito pretende associar as melhores características de cada uma dessas versões.

O ^{222}Rn , com uma meia-vida de 3,82 dias, decai segundo a série radioativa esquematizada na Fig. 1. No instante de sua formação, o ^{218}Po é um íon positivo com uma vida-média τ antes de recombinar-se com os íons de carga oposta da atmosfera. Visto que a meia-vida do ^{218}Po é muito menor do que a meia-vida do ^{222}Rn , a atividade do isótopo de menor meia-vida é controlada pelo isótopo de meia-vida mais longa. É precisamente o ^{218}Po que é capturado e medido a fim de obter a atividade do ^{222}Rn . É necessário, contudo, que este íon seja capturado em um intervalo de tempo suficientemente pequeno a fim de possibilitar um rendimento de coleta eletrostática elevado. Isso é feito aplicando um campo elétrico E entre um eletrodo de precipitação (*anodo*) e o eletrodo de coleta (*catodo*). No caso de um sistema de coleta com simetria esférica, com o eletrodo de coleta no centro de uma blindagem esférica submetida a um potencial elétrico, pode-se demonstrar pelas Leis da Eletrostática que o tempo de percurso no vácuo, de um íon positivo com massa m é dado por:

$$t = R \sqrt{\frac{2 \cdot m \cdot R}{3 \cdot n \cdot e^+ \cdot r_0 \cdot V}}, \quad \text{Para } r_0 \ll R, \quad (1)$$

onde R e r_0 são os raios da blindagem esférica e do eletrodo de coleta, respectivamente; V é o potencial eletrostático aplicado; n é o número de cargas elementares do íon (e^+). Adotando os valores empregados no sistema real, quais sejam:

$$\begin{aligned} V &= 17 \text{ kVolts,} \\ r_0 &= 3,2 \text{ centímetros,} \\ R &= 27 \text{ centímetros,} \\ e^+ &= 1,6 \times 10^{-19} \text{ coulomb,} \\ m &= 3,6 \times 10^{25} \text{ quilograma,} \end{aligned}$$

obtem-se um tempo de percurso radial da ordem de 10^{-5} segundos. Para uma aproximação mais realista, pode-se também estimar o tempo necessário para que parte dos íons de ^{218}Po formados sejam recombinados e neutralizados em condições normais. Isso é dado pela expressão:

$$\frac{dn^+}{dt} = -\alpha \cdot n^+ \cdot n^-, \quad (2)$$

onde n^+ e n^- são as densidades (íons $\cdot \text{cm}^{-3}$) de íons positivos e negativos, respectivamente; α é o coeficiente de recombinação com valor de $1,6 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (Bricard, 1965). Essa equação se reduz por integração a:

$$n^+ = n_0^+ \cdot \exp(-\alpha \cdot n^- \cdot \Delta t). \quad (3)$$

Para uma recombinação de apenas 1% dos íons de ^{218}Po formados, a Equação 3 fornece:

$$\Delta t = -\frac{\ln 0,99}{\alpha \cdot n^-} \quad (4)$$

Uma densidade de íons negativos ao nível do mar, típica de $300 \text{ íons} \cdot \text{cm}^{-3}$, resulta em um intervalo de tempo $t=21$ segundos, portanto muitas ordens de magnitude superior ao tempo de percurso e captura eletrostática estimada anteriormente. A 90% de recombinação, esse valor elevar-se-ia para 1,3 horas. Cálculos e medidas elaborados mostram que a vida média τ de um íon ao nível do mar está entre 20 segundos em um ambiente poluído (com partículas em suspensão) e 300 segundos em um ambiente sem poluição (Chalmers, 1967).

Por essas estimativas conclui-se que uma fração desprezível dos íons de ^{218}Po será neutralizada antes de ser coletada pelo catodo do sistema de coleta; conseqüentemente, ter-se-á uma elevada eficiência de coleta de íons.

O depósito ativo do radônio está normalmente associado a aerossóis com diâmetros entre $0,3 \mu\text{m}$ e $5 \mu\text{m}$, com o máximo deslocado para diâmetros menores da escala (Moore et alii, 1980). A maneira adotada para coletar o depósito ativo do radônio é através do emprego de filtros de membrana com diâmetro de poros no limite inferior da faixa de maior abundância. A atividade dos filtros após a coleta é medida através da espectrometria alfa convencional, sem nenhum tratamento físico ou químico prévio. Em uma primeira medida, efetuada imediatamente após a coleta dos aerossóis pelos filtros, são registradas as atividades relativas dos produtos de decaimento de curta meia-vida do radônio (ver Fig. 1). Os filtros são a seguir armazenados durante um intervalo de tempo superior a 1 ano, a fim de que o ^{210}Po original do instante da amostragem se reduza a níveis desprezíveis. Após esse tempo, mede-se novamente a atividade residual do ^{210}Po gerado no filtro pelo decaimento do ^{210}Pb . Essas medidas combinadas permitem inferir a atividade do ^{210}Pb original do instante da amostragem, ou seja, a atividade do produto de decaimento de maior meia-vida (20,4 anos) do radônio.

DESCRIÇÃO E FUNCIONAMENTO DO SISTEMA

O sistema ilustrado na Figura 2 é constituído de uma câmara de precipitação hemisférica com aproximadamente 42 litros, confeccionada em P.V.C. reforçado com fibra de vidro. As paredes internas da câmara são revestidas com uma fina folha de material condutor (alumínio) onde é aplicado o potencial de precipitação. O diodo de silício do tipo barreira de superfície de 2000 mm^2 (EG&G Ortec, modelo BR-80-2000-100), funcionando ao mesmo tempo como eletrodo de coleta e detetor de radiação alfa, é colocado no centro esférico com a superfície sensível voltada para o interior da câmara. É importante que o detetor seja polarizado de tal modo que sua carcaça esteja sob o potencial de terra. Existem dois orifícios (entrada e saída) destinados à circulação do ar a ser medido. Uma bomba de circulação de ar de diafragma (Olidex, modelo C-17) leva o ar dos filtros à câmara de precipitação via um medidor de flu-

xo de ar (LAO, modelo MGP-2). Foi adotada no presente sistema a circulação de ar comprimido ao invés da sucção, a fim de criar um ambiente de pressão positiva no interior

da câmara e das tubulações, evitando-se desse modo a contaminação com o ar não filtrado do meio ambiente.

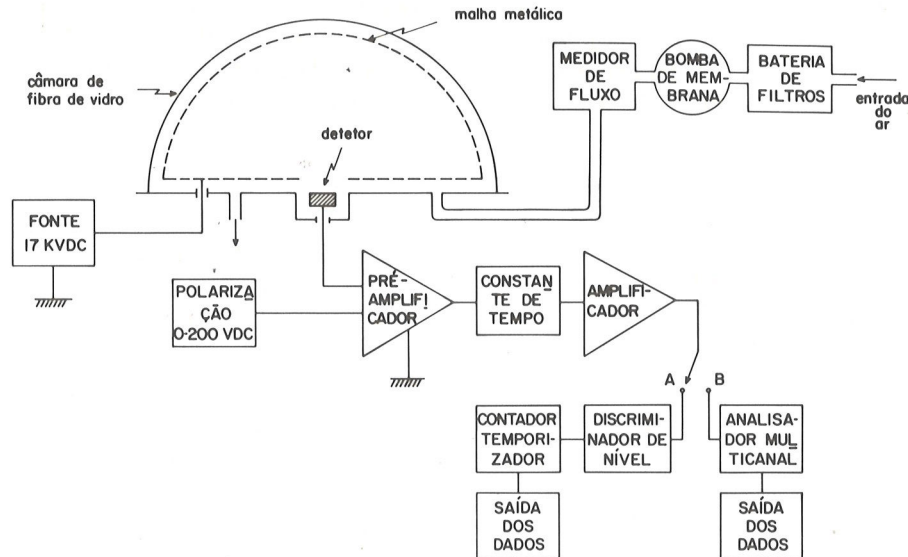


Figura 2 — Diagrama esquemático do sistema de coleta de aerossóis e medida do radônio e seus produtos de decaimento.

A bateria de filtros (Millipore, do tipo MF) tem dois estágios para aerossóis com diâmetro superior a $0,8 \mu\text{m}$ e entre $0,1$ e $0,8 \mu\text{m}$. O primeiro estágio ($\phi > 0,8 \mu\text{m}$) pode ser duplo a fim de permitir o emprego da análise tanto da atividade alfa do depósito ativo do radônio pela espectrometria alfa, como da constituição química dos aerossóis pela ativação dos filtros com nêutrons retardados, seguida da espectrometria gama. No caso de empregar o estágio duplo, anexam-se dois rotâmetros, um para cada filtro, a fim de balancear igualmente o fluxo de ar.

A eletrônica associada está ilustrada no diagrama de funções dado na Fig. 2. Tanto as fontes de alta voltagem do precipitador (17 kVolts) como a fonte de polarização do detector alfa (0 a 250 Volts D.C.) são do tipo chaveado, com núcleos toroidais para máxima eficiência. No caso da fonte do precipitador, seguem-se ainda 4 estágios dobradores de tensão para atingir a tensão requerida. Os circuitos do pré-amplificador sensível à carga e do amplificador tiveram seus projetos baseados nos sistemas descritos por Brant et alii (1977), adaptados à disponibilidade de componentes eletrônicos no mercado nacional. O ruído eletrônico total do sistema na saída do pré-amplificador com máximo ganho e com a entrada aterrada é de 60mV. A constante de tempo para formação dos pulsos foi determinada empiricamente para melhor relação sinal-ruído e é de aproximadamente $5 \mu\text{s}$.

Normalmente os pulsos seguem a via A da chave indicada na Fig. 2, salvo na etapa de calibração do sistema, quando a visualização dos espectros é necessária. Com a chave na posição B, os pulsos passam por um circuito comparador operando como discriminador de nível mínimo de

pulso, seguido por um circuito lógico para padronizar a altura e duração dos pulsos. Os pulsos padronizados entram, a seguir, em um sistema contador-temporizador reciclado e os dados na forma de número de eventos no intervalo de tempo de integração são armazenados tanto graficamente por uma impressora, quanto em fita magnética digital do tipo cassette.

RESULTADOS E CONCLUSÕES

Na Fig. 3 ilustram-se as variações da atividade alfa devida ao radônio obtidas pelo sistema precipitador-detector nas proximidades do laboratório de Geofísica Nuclear no INPE em São José dos Campos, SP. As variações cobrem dois períodos diurnos completos. Esse tipo de modulação é bastante típico e pode ser visto aqui com excelente resolução indicada pelas barras de erro (1σ) calculadas para os pontos iniciais da curva. O rendimento de detecção R para o sistema precipitador-detector de radônio permite converter os dados de contagens alfa por minuto (A) para atividade equivalente de radônio (a) em $\text{pCi} \cdot \text{m}^{-3}$. R é dado pela fórmula abaixo:

$$R = \frac{a}{A} = (V \cdot \epsilon \cdot n \cdot \kappa \cdot \beta)^{-1}, \quad (5)$$

onde $V = 0,042\text{m}^3$ é o volume do hemisfério; $\epsilon = 2,2$ é o fator de conversão dpm-pCi (1 pCi = 2,22 dpm); $n = 0,5$ é o rendimento geométrico do diodo detector alfa; $\kappa = 2$ é o fator que leva em conta o decaimento em cascata do ^{222}Rn para ^{218}Po e ^{214}Po com conseqüente emissão de duas

partículas alfa; $\beta < 0,59$ é a razão entre a área ativa do detector e sua área total, ou seja, o rendimento de coleta dos íons pela superfície detetora. Substituindo-se os valores acima na Equação (5) obtém-se para R o valor de 18,2. Deste modo, as atividades medidas durante o período de teste, mostradas na Fig. 3 são numericamente da mesma grandeza que os valores de contagens/20 minutos. Esses valores estão dentro da taxa de valores indicada por Lambert et alii

(1982) de 10 a 10^4 pCi . m⁻³, com média de cerca de 100 pCi . m⁻³. Para um ruído de fundo observado inferior a 2 contagens por hora, pode-se inferir que a sensibilidade do instrumento é melhor do que 0,61 pCi . m⁻³, na atual configuração.

A Fig. 4 mostra a variação da atividade no interior do precipitador operando no modo estático, ou seja, com a bomba de circulação desligada. Observa-se nesse caso

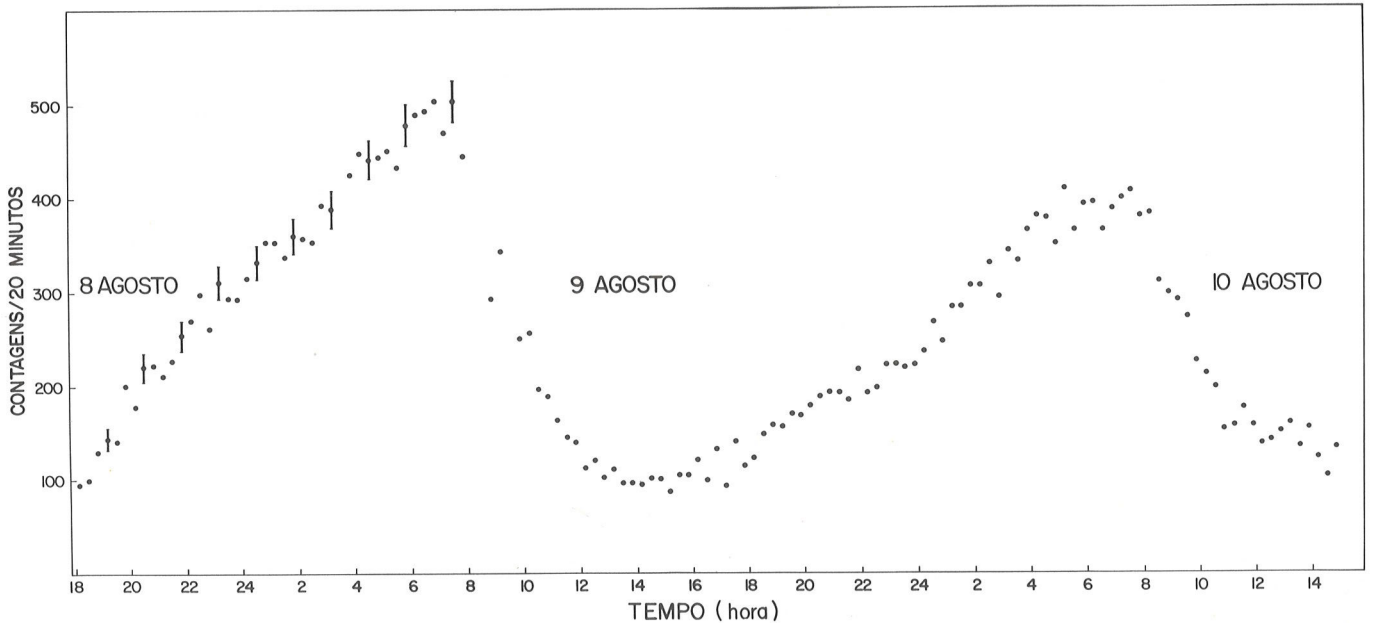


Figura 3 — Variação temporal da atividade (A) do radônio em São José dos Campos no período de 8 a 10 de agosto de 1983. As barras de erro correspondem a 1σ . A conversão dos dados de contagem/20 minutos para teores de radônio em pCi . m⁻³ pode ser obtida multiplicando os dados por 0,91.

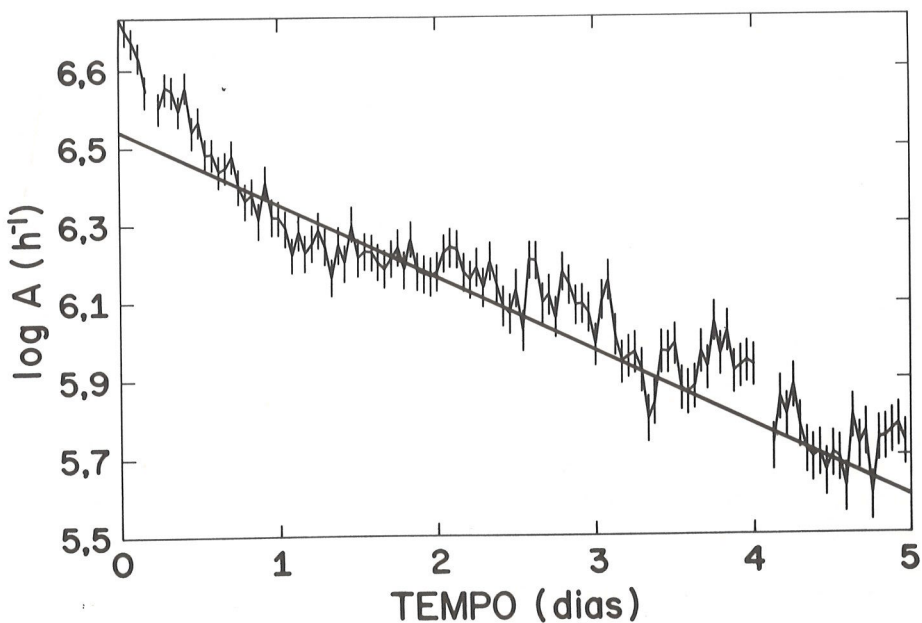


Figura 4 — Variação da atividade (A) no interior da câmara de precipitação, com a bomba de circulação desligada. O decaimento radioativo do ²²²Rn com meia-vida de 3,82 dias (reta superposta) pode ser observado.

o decaimento do ^{222}Rn com a meia-vida de 3,82 dias (a reta indica a curva de decaimento calculada). A discordância observada nas primeiras horas do decaimento é devida aos produtos de decaimento de meia-vida mais curta do que a do ^{222}Rn (o ^{212}Pb da série do ^{220}Rn com 10,6 horas é o principal responsável).

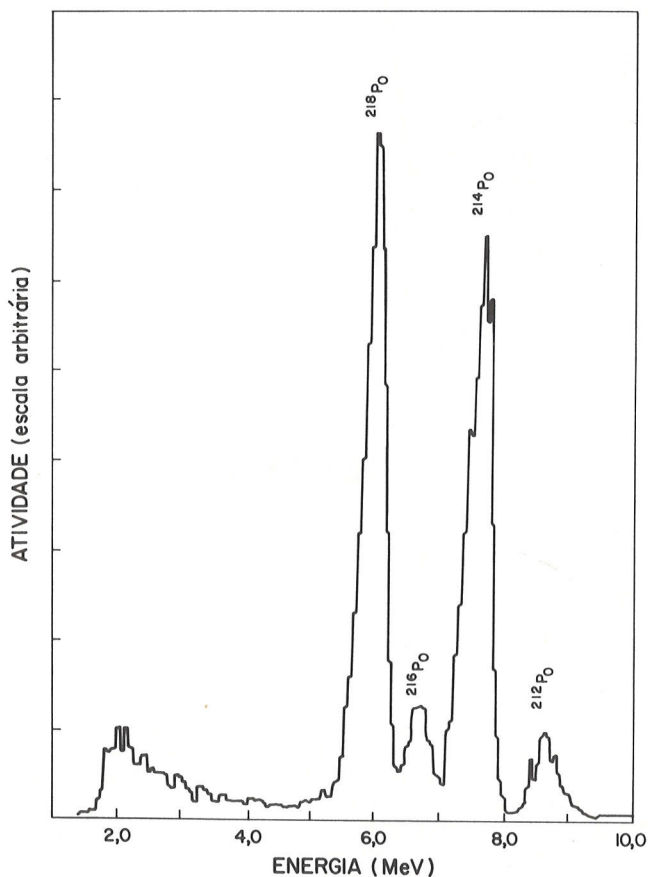


Figura 5(a) — Espectro de energias alfa obtido no precipitador eletrostático.

pectrometria alfa do filtro ($0,8 \mu\text{m}$) com um detector de 200 mm^2 . O filtro contém o depósito ativo do radônio acumulado durante o intervalo de tempo em que os dados da Fig. 5(a) foram coletados pelo precipitador. Desse modo, esses dois espectros são complementares; no precipitador estão os produtos do decaimento do radônio gerados "in loco" na câmara de precipitação, enquanto no filtro estão os produtos de decaimento gerados à distância e transportados até o local da amostragem, associados aos aerossóis atmosféricos. É o estudo conjugado dos dados obtidos simultaneamente por esses dois sistemas coletados (precipitador-filtro) que fornece ao pesquisador as relações de concentrações e as relações temporais de interesse nos estudos associados à dinâmica da atmosfera terrestre.

É importante ressaltar que o instrumento descrito

A Fig. 5(a) mostra um espectro típico obtido empregando o analisador de pulsos junto com o precipitador (chave na posição B da Fig. 2). Pode-se discriminar perfeitamente os picos de energia correspondentes ao ^{218}Po e ^{214}Po da série radioativa do ^{222}Rn e ^{216}Po e ^{212}Po da série do ^{220}Rn . A Fig. 5(b), mostra o espectro de energias obtido pela es-

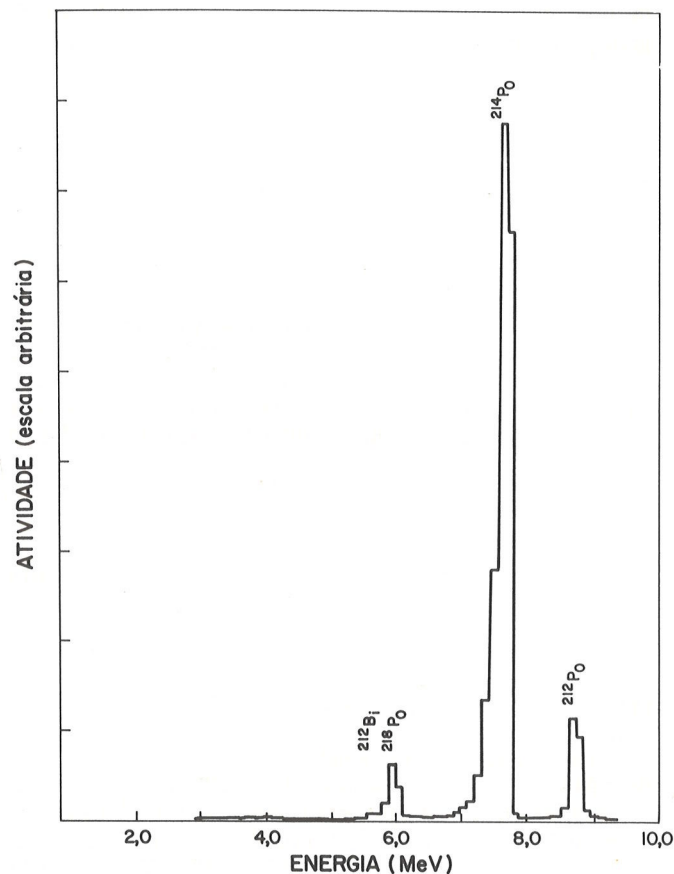


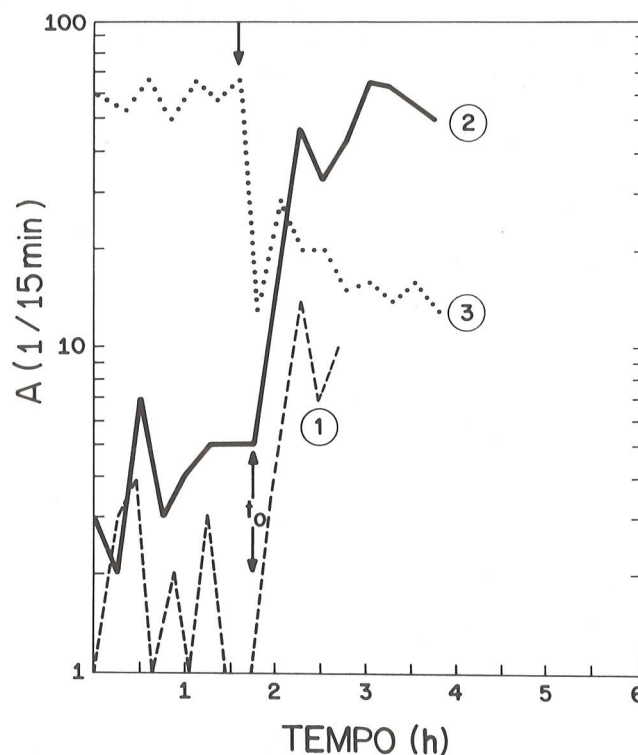
Figura 5(b) — Espectro de energias alfa do depósito ativo do radônio coletado pelo filtro.

nesse trabalho permite a coleta praticamente contínua dos dados de radônio atmosférico, com a resolução temporal que se desejar, bastando ajustar-se o tempo de integração do sistema contador-temporizador. O menor tempo de integração, compatível com o tempo de resposta do sistema a transientes de concentração, define a resolução temporal do instrumento τ_r . Empregando uma tubulação de amostragem com cerca de 4 metros e com diâmetro interno de 6 milímetros, a um fluxo médio de 360 litros por hora, obteve-se experimentalmente valores de τ_r de 30 minutos para transientes de subida de concentração e, pouco menos que 15 minutos, para transientes de decréscimo de concentração de radônio. Os resultados experimentais para as estimativas de τ_r são mostrados graficamente na Fig. 6.

A monitoração contínua ($\tau_r \ll$ tempo de amostra-

gem) é particularmente útil em medidas sistemáticas de longa duração em estações desatendidas ou remotas. Este é o caso das medidas de concentrações de radônio da baixa atmosfera Antártica, cujos resultados serão publicados proximamente, efetuadas na região onde se encontra instalada a base brasileira Comandante Ferraz. Sob o ponto de vista mais aplicado, pode-se sugerir o emprego do sistema para fins de monitoração do radônio em regiões de intensa atividade de mineração, nas proximidades de minas de urânio ou de fosfatos a céu aberto, no intuito de propiciar um controle de proteção radiológica em tempo real.

Figura 6 — Resposta do instrumento a transientes de concentração de radônio. Curvas 1 e 2 correspondem à chegada de uma frente de alta concentração, curva 3 corresponde à chegada de uma frente de baixa concentração de radônio. O tempo de resposta do sistema é de 15 a 30 minutos.



REFERÊNCIAS

- BRANDT, S., GRUPEN, C., ROSCHANGER, M. & SCHÖFER, B. — 1977 — A high resolutions low cost charge sensitive amplifier. *Nuclear Instruments and Methods*, **145**: 593-600.
- BRICARD, J. — 1965 — Action of radioactivity and pollution upon parameters of atmospheric electricity. In: *Problems of Atmospheric and Space Electricity*, Proceedings of the International Conference on Atmospheric and Space Electricity, Montreux (1963), Elsevier, Amsterdam: 87-117.
- CHALMERS, J.A. — 1967 — *Atmospheric Electricity*. Pergamon Press, Oxford, 2ª edição, 516 pp.
- COSTA-RIBEIRO, C. — 1969 — A radon detector suitable for personnel or area monitoring. *Health Phys.* **17**: 193-198.
- ISRAELSSON, S. — 1980 — Meteorological influences on atmospheric radioactivity and its effects on the electrical environment. In: *Natural Radiation Environment III*, T.F. Gesell e W.M. Lowder (editors), U.S. Department of Energy, NTIS, USA, **1**: 210-225.
- LAMBERT, G., POLIAN, G. SANAK, J., ARDOUIN, B. BUISSON, A., JEGOU, A. & LEROUULLEY, J.C. — 1982 — Cycle du radon et de ses descendants: applications à l'étude des échanges troposphère-stratosphère. *Ann. Geophys.*, **38**(4): 497-531.
- LARSON, R.E. & BRESSAN, D.J. — 1980 — Radon²²² as indicator of continental masses and air mass boundaries over ocean areas. In: *Natural Radiation Environment III*, **1**: 308-326.
- MOORE, H.E., POET, S.E. & MARTELL, E.A. — 1980 — Size distribution and origin of lead-210, bismuth-210, and polonium-210 on airborne particles in the troposphere. In: *Natural Radiation Environment III*, **1**: 415-429.
- NEGRO, V.C. & WATNICK, S. — 1978 — "Fungi" — A radon measuring instrument with fast response. *IEEE Transaction on Nuclear Science*, **NS-25**: 757-761.
- PORSTENDÖRFER, J., WICKE, A. & SCHRAUB, A. — 1980 — Methods for a continuous registration of radon, thoron, and their decay products indoors and outdoors. In: *Natural Radiation Environment III*, **2**: 1293-1307.
- WILKENING, M.H. — 1964 — Radon-daughters ions in the atmosphere. In: *Natural Radiation Environment*, J.A.S. Adams & W.M. Lowder (editors), University of Chicago Press, USA: 359-368.
- WRENN, M.E., SPITZ, H. & COHEN, N. — 1975 — Design of a continuous digital-output environment radon monitor. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. **NS-22**: 645-648.

Versão original recebida em Mai./84;
Versão final, em Set./84.