# MEDICIÓN DE RADIOACTIVIDAD DE AEROSOLES: DISEÑO Y ANÁLISIS DE UNA EXPERIENCIA DE LABORATORIO

# RADIOACTIVITY MEASUREMENT OF AEROSOLS: DESIGN AND ANALYSIS OF A LABORATORY EXPERIMENT

J. P. de Rosas,<sup>\*</sup> D. L. Valladares, and M. Rizzotto

Departamento de Física - Grupo de Estudios Ambientales (IMASL) - Univ. Nac. de San Luis

Recibido 30/03/2012; aprobado 17/09/2012

Los aerosoles presentes en la atmósfera poseen adheridos radioisótopos provenientes principalmente de la cadena de decaimiento del radón ( ${}^{86}Rn^{222}$ ) y del thoron ( ${}^{86}Rn^{220}$ ). Es posible realizar una estimación de la concentración de estos radioisótopos en el ambiente filtrando aire y luego midiendo la variación de la actividad del filtro con el tiempo. En este trabajo se describe y analiza una experiencia de laboratorio en que se mide la radioactividad de aerosoles obtenidos por filtrado del polvo ambiental mediante un contador Geiger-Müller. Se presenta el sistema de ecuaciones diferenciales que describe el decaimiento del radón y se discute la adecuación del modelo a los datos experimentales obtenidos. Se evalúa además la utilidad de la experiencia para estimar la concentración de radón en el ambiente.

Palabras clave: Radón, Radioactividad ambiental

Radioisotopes attach to aerosols in atmosphere. These radioisotopes are mainly from the decay chain of radon ( ${}^{86}Rn^{222}$ ) and thoron ( ${}^{86}Rn^{220}$ ). It is possible to make an estimation of the concentration of these radioisotopes in the environment by filtering air and then measuring over the filter the temporal variation of activity. This paper describes and analyzes a laboratory experiment that measure the radioactivity of aerosols obtained by filtering airborne dust using a Geiger-Müller counter. A system of differential equations describing the decay of radon is presented, discussing the adequacy of the model to experimental data. Also evaluates the usefulness of the experimence to estimate the concentration of radon in the environment.

Key Words: Radon, Environmental radioactivity

## I. INTRODUCCIÓN

El radón es un gas noble radiactivo, inodoro e incoloro. Sus dos isótopos de mayor interés desde el punto de vista de la protección radiológica son el radón (<sup>86</sup>Rn<sup>222</sup>) y thoron (<sup>86</sup>Rn<sup>220</sup>)<sup>1</sup>. Ambos isótopos son creados como productos de decaimiento en series radiactivas naturales, el radón por decaimiento del Ra<sup>226</sup> (serie radioactiva del  $U^{238}$ ) y el thoron por decaimiento del Ra<sup>224</sup> (serie radioactiva del Th<sup>232</sup>). El radón y el thoron son producidos de manera continua en la corteza terrestre, debido a que existe uranio y thorio en la mayoría de los tipos de roca. Una vez producidos ambos isótopos, se trasladan a través de los intersticios de las rocas, ingresando al agua y al aire.

Por efecto de la dilución en la gran masa de aire, el radón y sus productos de decaimiento se encuentran en la atmósfera en bajas concentraciones, sin embargo su concentración puede alcanzar niveles significativos en ambientes cerrados o con ventilación deficiente. A causa de su corta vida media no ocurre lo mismo con el thoron, cuyas concentraciones en la atmósfera se mantienen usualmente bajas.

El radón y el thoron no se adhieren a aerosoles presentes en el aire (polvo del ambiente) debido a que poseen la estructura electrónica propia de los gases nobles. Por el contrario, los productos de decaimiento de ambos gases, al poseer una alta afinidad química, se adhieren fácilmente a los aerosoles (el valor típico de la fracción adherida se encuentra entre el 75 % y el 99 %)<sup>2</sup>. En las tablas I y II se detallan algunos datos relevantes de los radioisótopos de las cadenas de decaimiento del radón y thoron.

En este trabajo, propuesto originalmente como experiencia de laboratorio por G. N. Whyte y H. W. Taylor<sup>3</sup>, se mide la radioactividad de aerosoles recolectados mediante el filtrado de aire, en dependencias del Departamento de Física de la Universidad Nacional de San Luis. Se realiza luego un análisis del esquema del decaimiento de la actividad de las muestras (filtros de recolección), contrastando los resultados con el sistema de ecuaciones diferenciales que describen las actividades de los distintos radioisótopos de la cadena de decaimiento del radón. Finalmente, se evalúa la experiencia como método para estimar la concentración de radón en el ambiente.

Tabla I. Propiedades de los radioisótopos descendientes del radón.

Isótopo	$\lambda$ a	Vida Media	Emisión
<sup>222</sup> Rn	$1,26 \times 10^{-4}$	3,82 d.	α
${}^{218}Po(RnA)$	$2,27 \times 10^{-1}$	3,05 min.	$\alpha$
$^{214}$ Pb (RnB)	$2{,}58\times10^{-2}$	26,8 min.	$\beta$
$^{214}Bi(RnC)$	$3,52 \times 10^{-2}$	19,7 min.	$\beta$
<sup>214</sup> Po $(RnC')$	$2,54 \times 10^5$	$1,64 \times 10^{-4}$ s.	$\alpha$
${}^{210}{ m Pb}(RnD)$	$6,8  imes 10^{-8}$	19,4 a.	$\beta$

<sup>a</sup> Constante de decaimiento [min<sup>-1</sup>]

## **II. DESCRIPCION DE LA EXPERIENCIA**

En la experiencia se midió la actividad de los aerosoles recolectados en un filtro. El filtrado de aire se realizó en el interior de una dependencia del Departamento de Física destinada a la enseñanza, siguiendo los siguientes pasos:

a) Se cerró la habitación, previamente ventilada, durante un tiempo  $T_c$ . La habitación se ubica en el segundo nivel de un edificio de dos pisos.

b) Se realizó el proceso de filtrado de aire durante el tiempo  $T_s$ , utilizando como sistema de filtrado la adaptación de una bomba de vacío Edwards. Como filtro se utilizó papel de servilletas, con un tamaño de poro no especificado. El caudal de la bomba con el filtro fue medido al comienzo y al final del proceso.

c) Concluido el proceso de filtrado, se midió la actividad de los aerosoles recolectados mediante un contador Geiger-Müller, colocando papel de aluminio entre el filtro y el contador, con el objetivo de medir exclusivamente la actividad de emisores  $\beta$  (ver Tabla I y II). La medición se realizó enteramente dentro de un escudo de plomo, lo que redujo sensiblemente la actividad de fondo (se verifica una reducción de 60 a 13 cuentas por minuto en el valor medio de la actividad de fondo). En el montaje utilizado, el tamaño del filtro es menor que la ventana de mica del contador Geiger-Müller, por lo que el contador mide la mitad de desintegraciones  $\beta$  que ocurren en el filtro. Si el filtro tiene mayor tamaño que la ventana o no puede pegarse a la misma, serían necesarios cálculos adicionales que incorporen la geometría específica del montaje utilizado para obtener el valor de la actividad del filtro a partir del valor medido.

Tabla II. Propiedades de los radioisótopos descendientes del thoron.

Isótopo	$\lambda^{\rm a}$	Vida Media	Emisión
<sup>220</sup> Rn	0,81	51,1 s.	α
${}^{216}Po(ThA)$	263	$1,58 \times 10^{-1}s.$	$\alpha$
${}^{212}{ m Pb}(ThB)$	$1,08 \times 10^{-3}$	10,64 h.	$\beta$
$^{212}$ Bi $(ThC)$	$3,52 \times 10^{-2}$	19,7 min.	$\beta$
<sup>212</sup> Po $(TnC')$	$1,\!37  imes 10^8$	$3{,}04\times10^{-7}~{\rm s}$	$\alpha$
$^{208}\mathbf{Tl}\left( RnC^{\prime\prime}\right)$	0,224	3,10 min.	$\beta$

<sup>a</sup> Constante de decaimiento [min<sup>-1</sup>]

## III. MODELADO Y SIMULACIÓN

Las ecuaciones diferenciales que describen la evolución de la concentración de actividad  $C_i \ [Bq \ m^{-3}]$  del radón y sus descendientes en un ambiente cerrado (ec. 1, 2, 3 y 4) y las ecuaciones diferenciales que describen la actividad de cada uno de los aerosoles ambientales recolectados en el filtro  $F_i \ [Bq]$  (ec. 5, 6 y 7) forman el siguiente sistema de ecuaciones diferenciales acoplado:

$$\frac{dC_{Rn}(t)}{dt} = \frac{E_x S}{V} - \lambda_{Rn} C_{Rn}(t) \tag{1}$$

$$\frac{dC_A(t)}{dt} = \lambda_A C_{Rn}(t) - \left(\lambda_A + \frac{k}{V}\right) C_A(t) \tag{2}$$

$$\frac{dC_B(t)}{dt} = \lambda_B C_A(t) - \left(\lambda_B + \frac{k}{V}\right) C_B(t) \tag{3}$$

$$\frac{dC_C(t)}{dt} = \lambda_C C_B(t) - \left(\lambda_C + \frac{k}{V}\right) C_C(t) \tag{4}$$

$$\frac{dF_A(t)}{dt} = -\lambda_A F_A(t) + kC_A(t) \tag{5}$$

$$\frac{dF_B(t)}{dt} = \lambda_B F_A(t) - \lambda_B F_B(t) + kC_B(t)$$
(6)

$$\frac{dF_C(t)}{dt} = \lambda_C F_B(t) - \lambda_C F_C(t) + kC_C(t)$$
(7)

donde los subíndices A,B y C indican los radiosótopos RnA, RnB y RnC respectivamente,  $\lambda \ [min^{-1}]$  es la constante de decaimiento del radioisótopo,  $k \ [m^3 \ min^{-1}]$  el caudal de la bomba de filtrado,  $E_x \ [Bq \ m^{-2} \ min^{-1}]$  es el coeficiente de exhalación de radón (tasa de ingreso por unidad de superficie), S  $[m^2]$  es el área de las superficies que limitan la habitación (techo, paredes, suelo) y  $V \ [m^3]$  su volumen.

Al realizar la descripción de la evolución de la actividad en el ambiente y el filtro mediante el sistema de ecuaciones (1-7) se realizan varias suposiciones, de las cuales se destacan: a) la tasa de exhalación  $E_x$  de radón por parte de las superficies que limitan el ambiente es constante y la razón de adherencia del radón y progenie a estas superficies es despreciable; b) el radón se mezcla de manera instantánea y homogénea con el aire; c) el proceso de filtrado posee 100 % de eficiencia en la retención de aerosoles.

La integración numérica del sistema de ecuaciones (1-4) se muestra en la Fig. 1, con el detalle indicando el efecto del encendido de la bomba de filtrado. Los valores de los parámetros utilizados fueron  $S = 142 m^2$ y  $V = 105 m^3$  (medidas de la habitación); k = 0 si  $0 < t < T_c$  y  $k = 0,101 m^3 min^{-1}$  si  $T_c < t < T_c + T_s$ , este último valor de k es el caudal medido de la bomba. El coeficiente de exhalación se fijó en el menor valor característico de los materiales presentes en la habitación<sup>4</sup>,  $E_X = 0,7 \ mBq \ min^{-1} \ m^{-2}$ . El valor de los intervalos  $T_c$  y  $T_s$  es 6 días y 1 hora, respectivamente. El valor de  $T_s$  es el utilizado en la mayor parte de las experiencias realizadas. Se observa en la figura que la concentración de actividad sigue una curva de saturación, con toda la cadena de radionuclidos en equilibrio secular. Es de notar que durante el filtrado, que se muestra en el detalle, no se modifican de manera importante los valores de la concentración de actividad de los radioisótopos en el ambiente, manteniéndose como excelente aproximación el equilibrio secular  $(C_C/C_B = 0, 98$  luego de una hora de filtrado).



Figura 1. Integración numérica del sistema de ecs (1-4). Detalle: Inicio del filtrado en t=0 h. Las concentraciones de los distintos radionuclidos se muestran desde  $5Bq/m^3$  hasta 5,  $3Bq/m^3$ . El equilibrio secular se mantiene durante el filtrado.

#### IV. RESULTADOS

En la Fig. 2 se muestra la actividad del filtro  $(F_{obs})$  en función del tiempo, fijando t = 0 en  $T_s$ . Se observa que la actividad sigue dos comportamientos diferentes, aproximadamente lineales en una gráfica semi-logarítmica. Esto se debe a la marcada diferencia entre las constantes de decaimiento de los emisores  $\beta$  descendientes del radón y thoron (ver Tablas I y II). Inicialmente la disminución de actividad en el filtro ocurre casi exclusivamente por el decaimiento de los elementos RnB y RnC (luego de 300 min. su concentración aproximadamente se reduce por un factor 2000), posteriormente la disminución de la actividad se debe al decaimiento de los elementos ThB y ThC.

La regresión lineal de  $F_{obs}$  vs. t, realizada para t > 300min. permite aislar la contribución a la actividad del filtro de los radioisótopos ThB y ThC, obtener la actividad inicial de los mismos y la constante de decaimiento del ThB. Para la medida mostrada en la Fig. 2, mediante la regresión lineal se obtiene  $\lambda_{ThB} = 1, 10 \pm 0, 15 \times 10^{-3} min^{-1}$ , valor acorde al informado en la literatura (ver tabla II). Substrayendo los valores de la actividad de ThB y ThC predichos por la regresión lineal a los valores de la actividad medida ( $F_{obs}$ ), se obtiene la contribución a la actividad del filtro que realizan los elementos RnB y RnC (ver Fig. 2).

A partir de la experiencia no es posible obtener en forma directa la contribución a la actividad del filtro del RnB, esto permitiría realizar una estimación de la concentración de actividad del radón existente en el ambiente. Sin embargo, se puede estimar la concentración de radón, si se supone que durante el proceso de filtrado, el radón y sus descendientes mantienen constante su concentración en el ambiente y que es válida la condición de



600

t (min)

800

1000

1200

400

200

3x10

10

10

Cuentas cada 5 minutos

equilibrio secular. Esto permite desacoplar las ecs. 5, 6 y 7 del resto del sistema de ecuaciones (1-7) y obtener la siguiente solución para la actividad de RnB en el filtro:

$$F_B(t) = kC_{Rn} \left( 2(1 - e^{-\lambda_B t}) + \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \left( e^{-\lambda_B t} - e^{-\lambda_A t} \right) \right),$$
(8)

donde se ha remplazado  $C_A$ ,  $C_B$ , y  $C_C$  por  $C_{Rn}$  haciendo uso de la condición de equilibrio secular. No considerando la contribución de la actividad de fondo y de la actividad de los radioisótopos ThB y ThC, la actividad en el filtro efectivamente medida  $F_{obs}$  a  $t = T_s$ , puede expresarse como:

$$F_{obs}(T_s) = \frac{1}{2} \left( e_B + e_C R(T_s) \right) F_B(T_s) \tag{9}$$

donde  $e_B$  y  $e_C$  son los valores del coeficiente de eficiencia con que el contador Geiger mide la actividad del radioisótopo RnB y RnC, respectivamente.  $R(T_s)$  es la fracción  $R(T_s) \equiv F_C(T_S)/F_B(T_S)$ . El factor 1/2 que aparece en la expresión, se debe a que efectivamente se miden la mitad de los decaimientos ocurridos en el filtro. En todos los cálculos, el valor del coeficiente de eficiencia se obtuvo mediante la expresión empírica proporcionada por Evans<sup>5</sup>.

Utilizando la ec. 9, la ec. 8 permite escribir la siguiente expresión para la concentración de radón  $C_{Rn}$  en el ambiente:

$$C_{Rn} = \frac{2F_{obs}(T_s)}{\epsilon_B + \epsilon_C R(T_S)} \times \frac{1}{2k(1 - e^{-\lambda_B T_S}) - (\lambda_B/(\lambda_B - \lambda_A))(e^{-\lambda_B T_S} - e^{-\lambda_A T_S})}$$
(10)

La Fig. 3 muestra la concentración  $C_{Rn}$  para distintos valores de  $T_c$  (tiempo durante el cual la habitación permanece cerrada). Los valores indicados con ( $\circ$ ) fueron obtenidos utilizando la expresión 10 y el valor experimental de  $F_{obs}(T_s)$ . Mediante la linea continua se representa el valor de  $C_{Rn}(T_c)$  obtenido mediante el ajuste con la solución analítica de la ec. (1), siendo  $E_x$  el parámetro de ajuste. El valor de  $R(T_s)$  se obtuvo utilizando una expresión teórica obtenida integrando el sistema (ecs. 1-7)<sup>3</sup>.

Se observa que la estimación de la concentración de radón  $C_{Rn}(T_c)$ , obtenida a partir de los valores medidos de la actividad del filtro, no está de acuerdo con los valores teóricos. El motivo de tal diferencia se encuentra en la pérdida de validez de alguna de las aproximaciones utilizadas. La supuesta constancia del coeficiente de exhalación  $E_x$  aparece como la aproximación cuya validez es más débil en las condiciones de la experiencia, ya que este coeficiente depende de variables termodinámicas, i. e. de la temperatura y presión ambientales<sup>6</sup>. Esto podría explicar que los dos valores de  $C_{Rn}$  para  $T_C = 1$  día, medidos en verano, se aparten de la tendencia que parecen marcar el resto de los valores que fueron medidos durante el invierno.



<sup>\*</sup> jpderosas@gmail.com

- <sup>2</sup> J. Porstendorfer, Env. Int. **22**, 563 (1996).
- <sup>3</sup> G. N. Whyte y H. W. Taylor, Am. J. Phys. **30**, 120 (1962).
- <sup>4</sup> R. M. Anjos, J. Juri Ayub, S. A. Cid, R. Cardoso y T.

Figura 3. Concentración de radón (CRn) en función del tiempo de cierre de la habitación ( $\circ$ ) y ajuste mediante el modelo (-).

Otro supuesto que puede ser relevante para explicar la discrepancia, es la aceptación de la validez de la condición de equilibrio secular en la atmósfera filtrada, la pérdida de aerosoles en el ambiente por adherencia a las superficies ocurre con facilidad y esto altera el rango de validez de la condición de equilibrio secular<sup>2</sup>.

Sobre el cálculo de la concentración de radón  $C_{Rn}$  es importante remarcar que este valor depende de  $R(T_s)$ , calculado teóricamente en este trabajo, utilizando las suposiciones indicadas. El ajuste a partir de datos experimentales de este parámetro no da valores satisfactorios. La integración numérica de la actividad del filtro (ecs. 5,6 y 7) muestra que las curvas de decaimiento obtenidas para distintos valores de  $R(T_s)$  son esencialmente iguales (no mostradas aquí), por lo que la validez de algunos de los supuestos no se pueden corroborar con el equipo utilizado.

### V. CONCLUSIONES

Este experimento posee gran utilidad en los laboratorios de cursos básicos de Física Nuclear, ya que permite la apreciación en la práctica de muchos nociones teóricas del tema, como por ejemplo el análisis de cadenas de decaimiento con más de dos elementos y el concepto de equilibrio secular. Se obtienen resultados acordes con la descripción teórica del fenómeno y resultados numéricos acordes con los informados en la literatura (constante de decaimiento del ThB). Además la experiencia aparece como un método conveniente para obtener radioisótopos de corta vida media mediante un procedimiento accesible.

La utilidad del experimento para determinar la concentración de radón es limitada, dado que la estimación depende críticamente de varias suposiciones que no se pueden corroborar experimentalmente, dadas las condiciones y equipo utilizado en la experiencia.

Lacerda, J. Env. Rad. **102**, 1055 (2011).

- <sup>5</sup> R. D. Evans, *The Atomic Nucleus*. Krieger Pub. Co. (1982).
- $^6\,$  G. M. Mudd, Rev. Environ. Sci. Biotechnol. 7, 325 (2008).

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Statement on Radon, publicación de la International Commission on Radiological Protection (2009).