



**TÉCNICAS SIMPLES DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA PARA A
MONITORAÇÃO DE RADÔNIO NO AR E NA ÁGUA**

Célia M. Napolitano, Maria H. de Oliveira Sampa e Elias Paletos

INFORMAÇÃO IEA 063
IEA - Inf - 063

NOVEMBRO/1978

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach – Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Beretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulô Ribeiro Pieroni

**TÉCNICAS SIMPLÉS DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA PARA A
MONITORAÇÃO DE RADÔNIO NO AR E NA ÁGUA**

Célia M. Napolitano, Maria H. de Oliveira Sampa e Elias Paletios

**CENTRO DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA E DOSIMETRIA
CPRD - APMA 004**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
SÃO PAULO - BRASIL**

Série INFORMAÇÃO IEA

INIS Categories and Descriptors

B30

Radon

Air

Water

Scintillation counters

Radiation monitoring

Radiation protection

— Note: A redação, ortografia e conceitos são de responsabilidade dos autores.

TÉCNICAS SIMPLES DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA PARA A MONITORAÇÃO DE RADÔNIO NO AR E NA ÁGUA

Celia M. Napolitano, Maria H. de Oliveira Sampa e Elias Palacios

RESUMO

apresentadas técnicas simples para a determinação "in situ" da concentração de radônio no ar e na água, mediante uma câmara de cintilação. A câmara foi construída utilizando-se um erlenmeyer comercial "Pirax", de 125 ml, cuja parede interna foi revestida com uma camada uniforme de sulfeto de zinco ativado com prata, mantendo a parte inferior transparente. Para a monitoração de ar, as câmaras são abertas no local e o ar é introduzido por simples agitação. Em seguida, a câmara é fechada e uma vez atingido o equilíbrio radioativo entre o radônio e seus filhos de meia vida curta, faz-se a medição dentro de uma câmara escura, utilizando uma fotomultiplicadora, acoplada a um sistema de contagem. Para a monitoração da água, a amostra é colocada dentro de um recipiente plástico e fechado da forma estanque com uma câmara de cintilação durante 5 horas. Depois, é feita a contagem do gás contido na câmara de cintilação, e a concentração de radônio na água é calculada a partir dos dados observados na fase gasosa. Os limites de detecção das técnicas apresentadas são de 7 pCi/l e 1,5 pCi/l para a monitoração de ar e água respectivamente.

1 - INTRODUÇÃO

Os trabalhadores de uma mina de urânio encontram-se expostos tanto aos perigos inerentes à exploração mineira como aos riscos radiosanitários. Estes riscos são causados pela radiação proveniente dos elementos integrantes das cadeias de decaimento do urânio natural.

O radônio descendente do urânio, e seus produtos filhos de meia vida curta, são os elementos que do ponto de vista radiosanitário, apresentam o maior risco para o trabalhador mineiro (Figura 1). O radônio é um gás inerte produzido no interior da rocha que por difusão alcança o ar da jazida.

O radônio emite em sua desintegração até o ^{210}Pb , três partículas alfa e duas partículas beta e alcança o equilíbrio secular com seus produtos filhos de meia vida curta: ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi e ^{214}Po após três horas. A técnica de monitoração mais utilizada para controlar a dose recebida pelos trabalhadores ocupacionalmente expostos baseia-se na detecção da energia das partículas alfa emitidas por uma amostra de gás, quando o radônio se encontra em equilíbrio secular com seus filhos de meia vida curta. Para isso, utiliza-se uma câmara de cintilação recoberta com sulfeto de zinco ativado com prata (ZnS:Ag) onde se introduz a amostra, e a medição é feita mediante uma fotomultiplicadora acoplada a um sistema de contagem^(2,3,4,5,6,7,8).

As técnicas mais utilizadas para a determinação do teor de radônio em amostras de água consistem em provocar primeiro a emanação do gás dissolvido na amostra por meio do borbulhamento de ar, argônio ou hélio e depois transferi-lo para a câmara de cintilação^(4,7,9,10). Na técnica apresentada neste trabalho, a emanação de radônio para a fase gasosa é feita só por difusão do gás dissolvido na água.

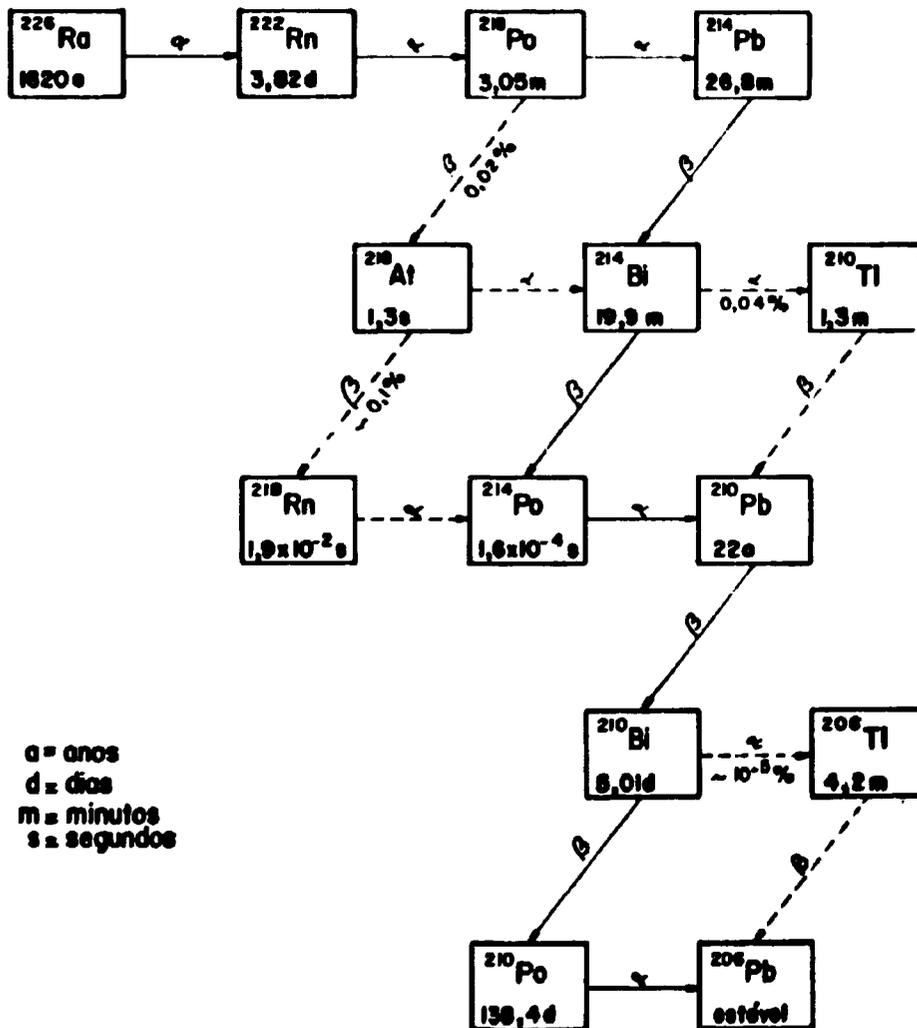


Figura 1 - Esquema da cadeia de decaimento do ^{226}Ra .

2 – CONSTRUÇÃO DA CÂMARA DE CINTILAÇÃO

A câmara de cintilação foi construída utilizando-se um erlenmeyer de 125 ml do tipo comercial, Pirex, cuja parede foi revestida com uma camada uniforme de sulfeto de zinco ativado com prata mantendo a parte inferior da câmara transparente (Figura 2).

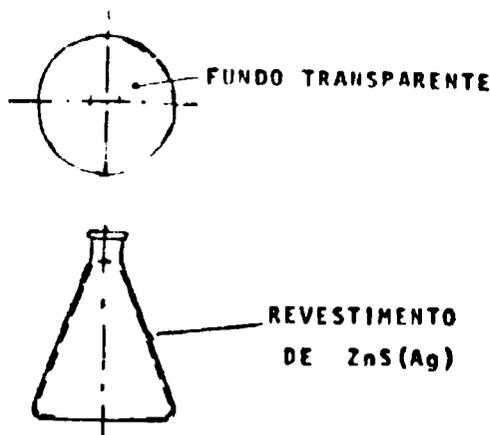


Figura 2 – Câmara de Cintilação.

Numa primeira operação, o erlenmeyer foi recoberto interiormente com uma fina camada de graxa de silicone. Para isso dissolveram-se 250 g de graxa de silicone em 1 litro de tetracloreto de carbono, agitando a solução por 3 horas. Uma alíquota dessa solução foi introduzida na câmara, molhando toda a sua superfície interna. Em seguida, para escorrer o excesso, inverteu-se a câmara e manteve-se nessa posição durante 24 horas para permitir a evaporação de todo o solvente. A seguir, a parte inferior foi limpada mediante um chumaço de algodão fixado na extremidade de um bestão de vidro.

A segunda operação consistiu em introduzir o $ZnS:Ag$ (aproximadamente 10 g) e girar suavemente a câmara até que toda a superfície interna fosse uniformemente recoberta. O excesso da substância cintiladora foi retirado e o fundo da câmara foi limpado de forma análoga à operação anterior, mantendo transparente um círculo de 5 cm de diâmetro.

3 – CALIBRAÇÃO DO SISTEMA DE MEDIÇÃO

O sistema de detecção e contagem utilizado está constituído por um detector de cintilação, acoplado a um contador e a um medidor de taxa de contagem, com analisador monocanal do tipo "Ludlum Measurements Inc Model 2200" (Figura 3).

O detector de cintilação está formado pela câmara de cintilação e o tubo fotomultiplicador, acoplados opticamente através da janela transparente da câmara; o qual encontra-se numa câmara escura.

Neste caso trabalhou-se de forma que todas as partículas alfa fossem contadas, independentemente de sua energia.

O ruído de fundo das câmaras de cintilação, medido no sistema descrito, variou de 0,37 cpm a 0,88 cpm com um valor médio em torno de 0,67 cpm.

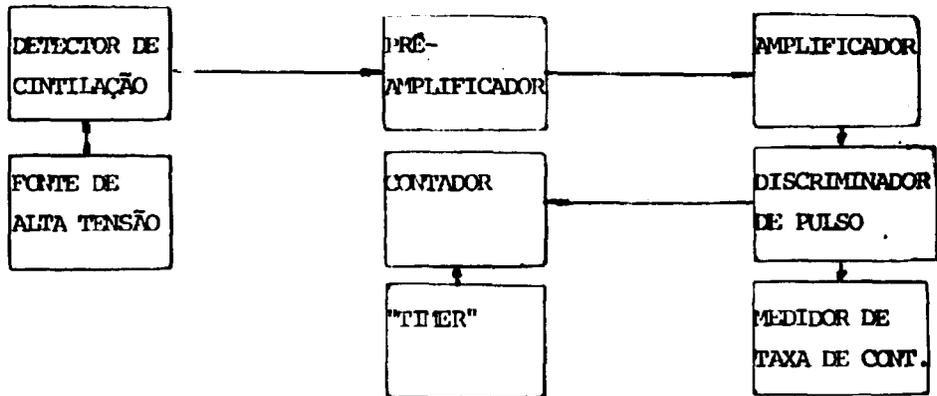


Figura 3 – Sistema de Detecção e Contagem.

A eficiência de detecção de partículas alfa foi determinada pela relação entre a taxa de contagem da câmara no sistema detector e o número de desintegrações da amostra. Para isso, colocou-se num recipiente de polietileno 1000 ml de água subterrânea com alto teor de radônio fechando-o de forma estanque com uma câmara de cintilação (Figura 5).

Previamente foi tirada uma alíquota de 10 ml de água e analisada durante 10 minutos no contador de cintilação líquido, LKB-WALLAC 81000, utilizando instagel como solução cintiladora.

O conjunto câmara-amostra de água foi deixado nesta posição durante 24 horas aproximadamente e em seguida, a câmara foi fechada e contada durante 10 minutos.

Simultaneamente com a retirada da câmara, tirou-se outra alíquota de 10 ml da amostra para contagem no contador de cintilação líquido.

A eficiência (E_f) da câmara foi calculada pela seguinte expressão:

$$E_f = \frac{N \cdot e^{\lambda \Delta t_s}}{(A_0 - A \cdot e^{\lambda \Delta t^1}) \cdot b}$$

onde:

N = taxa de contagem na câmara de cintilação (cpm);

λ = constante de decaimento do radônio (min^{-1});

Δt = intervalo de tempo entre o momento de introdução da água no frasco e a contagem na câmara (min);

Δt^1 = intervalo de tempo entre as contagens das alíquotas de água no contador de cintilação líquido (min);

A_0 = atividade na água no momento de ser introduzida no frasco de polietileno (dpm);

A = atividade na água depois de transcorrido o tempo Δt^1 (dpm);

a = relação entre o volume de ar do sistema e o volume da câmara (1,64);

b = número de partículas alfa emitidas por cada desintegração de um átomo de radônio (3).

A maior eficiência de detecção de partículas alfa obtida com a expressão anterior foi de $23,4 \pm 3,4\%$.

Os erlenmeyers utilizados na construção das câmaras são do tipo comercial "Pirex", com tolerâncias de fabricação tanto em planeza como em homogeneidade e espessura da parede do fundo, que podem variar significativamente a transmitância de uma câmara para outra. Com a finalidade de poder comparar os resultados de diferentes câmaras foi necessário determinar a eficiência relativa de cada uma. Para isso colocaram-se as câmaras numa atmosfera homogênea de radônio durante 48 horas, e após esse período foram fechadas simultaneamente e contadas durante 10 minutos.

A câmara com maior taxa de contagem (N_p) foi considerada como padrão, tendo portanto eficiência relativa igual a 1. As eficiências relativas (Er_i) das várias câmaras foram determinadas pela seguinte equação:

$$Er_i = \frac{Nc_i}{Np}$$

onde Nc_i é a taxa de contagem da câmara i.

Na Tabela I apresentam-se os valores de ruído de fundo e eficiência relativa de doze câmaras construídas segundo procedimento já explicado.

Tabela I

Ruído de Fundo e Eficiência Relativa das Câmaras

Câmara de Cintilação Nº	Ruído de Fundo (cpm)	Eficiência Relativa
1	0,60 ± 0,17	0,83 ± 0,13
2	0,40 ± 0,04	0,52 ± 0,09
3	0,70 ± 0,12	0,78 ± 0,13
4	0,60 ± 0,17	0,67 ± 0,11
5	0,84 ± 0,13	0,62 ± 0,10
6	0,55 ± 0,07	0,96 ± 0,15
7	0,55 ± 0,12	0,70 ± 0,11
8	0,63 ± 0,07	0,69 ± 0,11
9	0,83 ± 0,09	0,70 ± 0,12
10	0,83 ± 0,13	0,68 ± 0,11
11	0,37 ± 0,05	0,90 ± 0,14
12	0,68 ± 0,06	1,00 ± 0,16

4 – MONITORAÇÃO DE RADÔNIO NO AR

O método consiste em coletar dentro da câmara uma amostra representativa do ar no ambiente que se deseja monitorar e fazer a contagem após atingido o equilíbrio radioativo do radônio com seus filhos de meia vida curta.

A amostragem do ar é feita por agitação da câmara (durante pelo menos um minuto) a fim de lograr a renovação completa do ar contido originalmente no seu interior. Uma vez coletada a amostra tampa-se a câmara e, alcançado o equilíbrio radioativo (aproximadamente 3 horas), é feita a contagem.

A concentração de radônio no ar é calculada pela expressão:

$$Car = \frac{N \cdot e^{\lambda t}}{2,22 \cdot Er_i \cdot Ef \cdot V \cdot b} \quad (\text{pCi/l}) \quad (1)$$

onde:

N = taxa de contagem na câmara (cpm);

λ = constante de decaimento do Rn (min^{-1});

t = intervalo de tempo entre a coleta da amostra e a contagem (min);

Er_i = eficiência relativa da câmara i ;

Ef = eficiência de detecção da câmara padrão ($Ef = 0,234$ cpm/dpm);

V = volume da câmara ($V = 0,141$);

$2,22$ = fator de conversão entre dpm e pCi (dpm/pCi);

b = número de partículas alfa emitidas por cada átomo de Rn que se desintegra ($b = 3$);

O limite de detecção do método, para um grau de confiança de 95% é de 7 pCi/l.

5 – MONITORAÇÃO DE RADÔNIO NA ÁGUA

Como ocorre com os demais gases inativos, o Rn, quando em contato com um líquido, difunde-se nele. Reciprocamente, se o Rn está dissolvido num líquido e este entra em contato com outro gás, parte do gás dissolvido se desprende, difundindo-se na fase aquosa.

A lei de Henry estabelece que, a uma dada temperatura e pressão, existe uma relação constante entre as concentrações de equilíbrio no líquido (Ca) e na fase gasosa (Car). Esta relação é chamada de coeficiente de solubilidade (α_t) e depende da natureza do gás e do líquido:

$$\alpha_t = Ca/car \quad (2)$$

A Figura 4 mostra a variação do coeficiente de solubilidade em função da temperatura, para o gás Rn em água à pressão atmosférica⁽¹¹⁾.

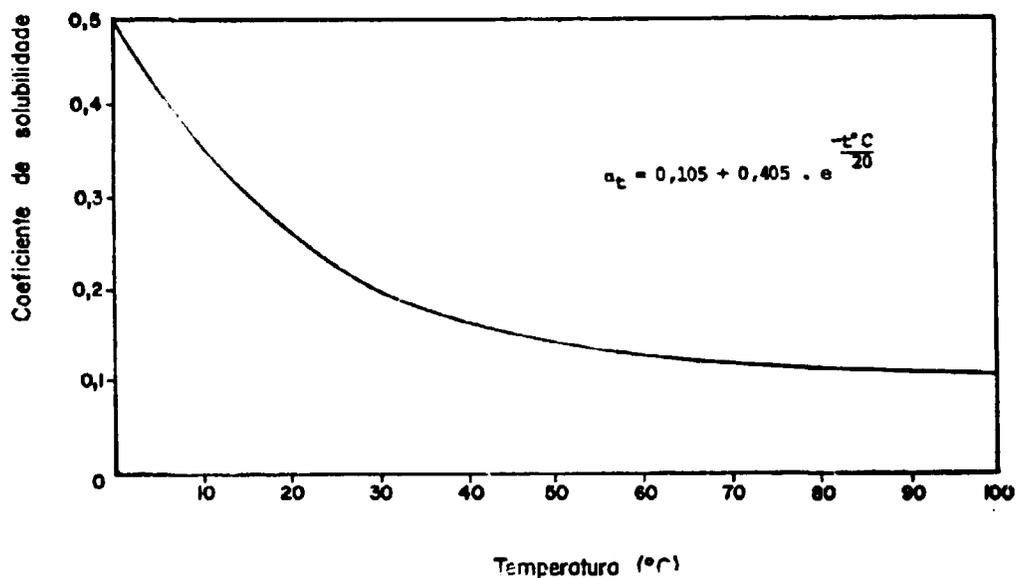


Figura 4 – Gráfico do coeficiente de solubilidade do Rn na água em função da temperatura, para a pressão atmosférica.

No método desenvolvido neste trabalho o recipiente que contém a amostra de água é fechado de forma estanque mediante uma câmara de cintilação (Figura 5).

Para obter uma temperatura homogênea e constante o conjunto é introduzido em um banho de água, dentro de uma caixa de isopor.

A concentração de Rn no ar do sistema alcança um valor máximo, depois de transcorrido um certo tempo. Este tempo foi determinado por medições sucessivas da taxa de contagem.

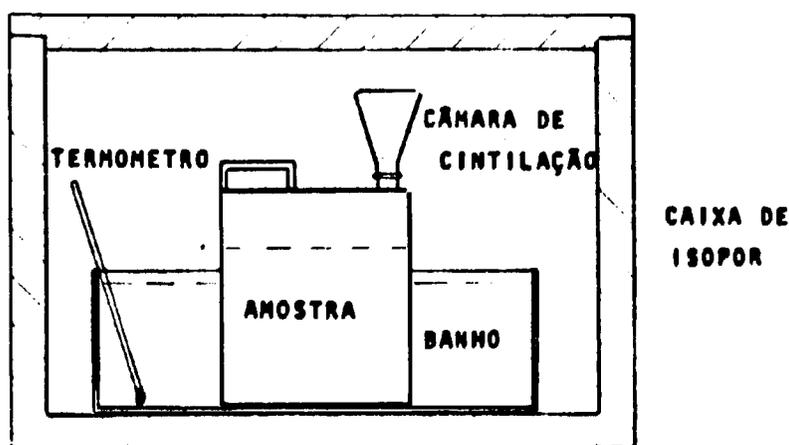


Figura 5 – Sistema de detecção do teor de Rn na água.

Fizeram-se leituras de 1 minuto cada 10 minutos durante 3 horas e cada 2 minutos nas próximas 4 horas. Observou-se que após 5 horas, para concentrações de radônio na água da ordem de 100° pCi/l, alcança-se concentração máxima e que, a partir desse momento, a atividade na câmara decresce com a meia vida do radônio.

Para a determinação da concentração de radônio na água por este método utiliza-se 1 litro de amostra e mantém-se o conjunto fechado durante um tempo de 5 horas.

A atividade total (A) de Rn no sistema é:

$$A = Ca.Va + Car.Var \quad (3)$$

onde Va e Var são os volumes de água e ar respectivamente.

A concentração original de radônio na amostra é:

$$C = \frac{A}{Va} \quad (4)$$

Combinando as equações (2) e (3) com a equação (4), obtém-se:

$$C = \frac{Car (\alpha_1 \cdot Va + Var)}{Va}$$

Esta equação permite calcular a concentração de radônio na água a partir dos dados observados na fase gasosa. O valor de Car é calculado segundo a equação (1).

As concentrações de Rn em amostras de águas subterrâneas provenientes de diferentes fontes do Estado de São Paulo, foram determinadas por este método e pelo contador de cintilação líquido usando instagel como solução cintiladora. Os resultados obtidos por ambos os métodos levam a valores de concentração que diferem entre si em menos de 5%.

O limite de detecção alcançado por este método, para um grau de confiança de 95%, é de 1,5 pCi por litro de água.

6 - CONCLUSÕES

As câmaras de cintilação utilizadas apresentam a grande vantagem de serem construídas com erlenmeyers comerciais, de fácil obtenção no mercado, e ao mesmo tempo possuir um baixo ruído de fundo, como mostra a Tabela I. Sua eficiência de contagem de 23,4%, é considerada aceitável para os fins de proteção radiológica. Estas câmaras podem ser comparadas com as câmaras de cintilação Nardeaux, do tipo comercial, que segundo as especificações de catálogo, apresentam uma eficiência de aproximadamente 30%.

Além disso, a técnica utilizada para a fixação de ZnS:Ag na parede interna da câmara é simples, permitindo a recuperação do frasco quando o ruído de fundo aumenta significativamente, como consequência da contaminação por emissores alfa de meia vida longa. Esta contaminação pode ser evitada se a amostragem de ar é feita mediante uma pequena bomba de circulação de ar com um filtro de alta eficiência.

A concentração de Rn no ar em equilíbrio com seus filhos de meia vida curta, que dá origem ao limite de dose nos trabalhadores, foi fixado pela International Commission on Radiological Protection (ICRP)⁽¹²⁾, em 60000 pCi.h/l, que resulta para 2000 h de trabalho por ano numa concentração de 30 pCi/l. O limite de detecção alcançado (7 pCi/l) é quatro vezes menor que o nível máximo permissível. Como no ar de uma jazida, o radônio nunca se encontra em condições de equilíbrio radioativo, a concentração de radônio equivalente ao limite de concentração é, na maioria das vezes, maior de 100 pCi/l; o que permite concluir que as câmaras construídas são adequadas para a monitoração de radônio no ar.

O método para determinar a concentração de radônio na água é muito simples permitindo obter resultados confiáveis com erros aceitáveis para os fins de monitoração.

O tempo de 5 horas para atingir o equilíbrio entre as concentrações no ar e na água não representa um inconveniente maior, levando-se em consideração que em qualquer das técnicas comumente utilizadas, é necessário esperar no mínimo 3 horas para alcançar o equilíbrio radioativo entre radônio e seus filhos de meia vida curta.

O baixo limite de detecção deste método (1,5 pCi/l de água) faz com que possa ser utilizado tanto para a monitoração de radônio do ponto de vista radiossanitário (cuja concentração máxima permissível para um consumo diário de 2,2 litros de água é de 9000 pCi/l⁽¹¹⁾) como para monitoração ambiental relacionada com pesquisas geofísicas.

ABSTRACT

Simple techniques for "in situ" radon concentration measurements in air and water using a scintillation chamber are discussed. The chamber was constructed with a commercial "Pyrex" erlenmeyer flask by uniformly coating with powdered ZnS:Ag all the flask's internal surface, except its base. For air monitoring, the sample is introduced into the scintillation chamber and when the radioactive equilibrium between radon and its daughters of short half life is reached, the chamber is placed into a light-tight box that has a photomultiplier connected to a counting system. For water monitoring, the sample is placed in a plastic bottle and the bottle connected with a scintillation chamber for 5 hours. Afterwards, the gas of the chamber is counted and the radon concentration in water is determined through the counting rate observed in the gaseous phase. The detection limits of these techniques in air and water monitoring were 7 pCi/l and 1,5 pCi/l.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ANDERSSON, I. Ö. & NILSSON, I. Exposure following ingestion of water containing radon – 222. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Assessment of Radioactivity in man*. Vienna, 1964. p.317-26.
2. DAMON, P. E. & HYDE, H. I. Scintillation tube for the measurement of radioactive gases. *Rev. scient. Instrum.*, 23(12):766, Dec. 1952.
3. DILLA, M. A. Van & TAYSUN, D. H. Scintillation counter for assay of radon gas. *Nuclearonics*, 13(2):68-9, Feb. 1955.
4. EVANS, R. D. Technique for the determination of the radioactive content of liquids. *Rev. scient. Instrum.*, 4:216-22, Apr. 1933.
5. HIGGINS JR., F. B. et alii. Methods for determining radon-222 and radium-226. *J. Am. Wat. Ass.*, 53:63-74, Jan. 1961.
6. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Manual on Radiological safety in uranium and thorium mines and mills*. Vienna, 1976 (Safety series, 43).

7. KOBAL, I. & KRISTAN, J. Determination of ^{222}Rn concentration in hot spring waters using scintillation chamber. *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 10(5) 291-5, 1972.
8. LUCAS, H. F. Improved low-level alpha-Scintillation counter for radon. *Rev. scient. Instrum.*, 28(9):680-3, Sep. 1977.
9. LUCAS JR., H. F. A fast and accurate survey technique for both radon-222 and radium-226 in: ADAMS, J. A. J., ed. *The natural radiation environment*. Chicago, Ill., University of Chicago, 1964. p.315-29.
10. POHL, E. & POHL-RULING, J. Determination of environmental or occupational ^{222}Rn in air and water and ^{226}Ra in water with feasible and rapid methods of sampling and measurement. *Health Phys.*, 31(4) 343-8, Oct. 1976.
11. PRADO, L. C. *A radioatividade das fontes hydrominerais*. São Paulo, Escola Profissionaes Salesianas, 1938. (Separata do annuario da Escola Polytechnica para o anno de 1937.
12. RADIATION protection in uranium and other mines. *Annals ICRP*, 1(1) 1977.



INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal, 11049 – Pinheiros
CEP 05508
01000 – São Paulo – SP

Telefone: 211-6011
Endereço Telegráfico – IEATOMICA
Telex – 011-23592 IENA BR