



**AUTORES / AUTHORS**  
**PALAVRAS CHAVES / KEY WORDS**  
 RADÔNIO ATMOSFÉRICO;  
 PRODUÇÃO LOCAL (ILHA REI GEORGE);  
 CALIBRAÇÃO; COLETA ELETROSTÁTICA

**AUTORIZADA POR / AUTHORIZED BY**  
*Ralf Gielow*  
 Ralf Gielow  
 Pres. Cons. Pós-Graduação

**AUTOR RESPONSÁVEL / RESPONSIBLE AUTHOR**  
*Heitor E. da Silva*  
 Heitor E. da Silva

**DISTRIBUIÇÃO / DISTRIBUTION**  
 INTERNA / INTERNAL  
 EXTERNA / EXTERNAL  
 RESTRITA / RESTRICTED

**REVISADA POR / REVISED BY**  
*Enio Bueno Pereira*  
 Enio Bueno Pereira

**CDU / UDC**  
 534.4-852-36

**DATA / DATE**  
 ABRIL, 1990

|                             |  |
|-----------------------------|--|
| <b>TÍTULO / TITLE</b>       | <b>PUBLICAÇÃO Nº / PUBLICATION NO</b><br>INPE-5070-TDL/409                 |
|                             | ESTUDO DAS CONCENTRAÇÕES DE RADÔNIO NA ANTÁRTICA: INSTRUMENTAÇÃO E ANÁLISE |
| <b>AUTORES / AUTHORSHIP</b> | Heitor Evangelista da Silva  |

**ORIGEM / ORIGIN**  
 PG/DGE

**PROJETO / PROJECT**  
 CEA

**Nº DE PAG. / NO OF PAGES**  
 294

**ULTIMA PAG. / LAST PAGE**  
 F.7

**VERSÃO / VERSION**

**Nº DE MAPAS / NO OF MAPS**

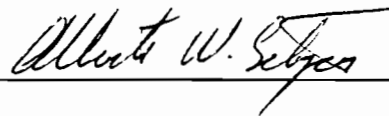
**RESUMO - NOTAS / ABSTRACT - NOTES**

Medidas ininterruptas de gases radioativos naturais são desenvolvidas na Estação Antártica Comandante Ferraz (62°05'S, 58°23'O) para um estudo da influência continental (América do Sul) sobre a península Antártica, empregando-se como traçador atmosférico o Rn<sup>222</sup>. A instrumentação empregada na medida é baseada num processo de precipitação eletrostática de isótopos de polônio na forma de íons cuja eficiência de coleta é da ordem de 50 - 57%, empregando-se um potencial de 17 kV, ótimo para a detecção dos núclídeos aplicado no interior de uma câmara hemisférica projetada de forma a maximizar seu rendimento geométrico. A atividade radioativa observada na ilha Rei George exibiu, nos períodos março - novembro nos anos de 1986 e 1987, comportamento médio diferenciado caracterizado por um decréscimo de aproximadamente 50% no mesmo período: (2,6 ± 1,8) · 10<sup>-2</sup> Bq.m<sup>-3</sup> em 1986 e (1,4 ± 0,8) · 10<sup>-2</sup> Bq.m<sup>-3</sup>. Variações correspondentes de intensidade do vento e aerossol continental também foram observadas. Periodicidades características encontradas nas concentrações de Rn<sup>222</sup> são mais acentuadas para 25 e 30 dias. Nenhuma tendência sazonal foi observada e as intensidades transientes máximas indicaram boa correlação com os curtos períodos de degelo. O fluxo médio dos isótopos, Rn<sup>220</sup> a Rn<sup>222</sup> calculados a partir da amostragem de 20 pontos de afloramento local (Ilha Rei George) indicam uma contribuição relativa de 250 átomos m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> para o isótopo 220 e 7500 átomos m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> para o isótopo 222.

**OBSERVAÇÕES / REMARKS**  
 Dissertação de Mestrado em Ciência Espacial, aprovada em 27 de novembro de 1989.

Aprovada pela Banca Examinadora  
em cumprimento a requisito exigido  
para a obtenção do Título de Mestre  
em Ciência Espacial

Dr. Alberto Waingort Setzer



Presidente

Dr. Enio Bueno Pereira



Orientador

Dr. Carlos Viana Speller



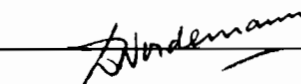
Membro da Banca  
-convidado-

Dr. Volker W.J.H.Kirchhoff



Membro da Banca

Dr. Daniel J.R. Nordemann



Membro da Banca

Candidato: Heitor Evangelista da Silva

São José dos Campos, 27 de novembro de 1989

ao meu irmão ...

## AGRADECIMENTOS

Aos meus pais ("Seu" João e "Dona" Conceição) e meus irmãos Ulisses, Djalma e Vera Lúcia pelo incentivo em todas as horas escuras.

Aos meus amigos de infância frequentadores da rua Buique que sempre estiveram ao meu lado de longe torcendo.

À "Com", pelo carinho dispensado nos atos mais simples do dia a dia.

A CIRM (Comissão Interministerial para Recursos do Mar)/PROANTAR/Subprojeto 9586, que tornou possível à realização desse trabalho através de seu apoio financeiro, logístico e do recurso humano empregado em todas as viagens à Antártica.

Ao INPE (Instituto de Pesquisas Espaciais)/Secretaria de Ciência e Tecnologia, pela formação acadêmica básica e fundamental.

Ao IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria) - RJ/CNEN, particularmente à C. Austerlitz Campos.

Ao meu orientador, Ênio Bueno Pereira, pela disponibilidade e paciência em passar seus conhecimentos.

A todo o pessoal do laboratório de Geofísica, especialmente Marcelo Sampaio e Sylvio Mantelli Neto pela amizade e apoio técnico.

A Alcides Camargo Ribeiro, <i>, - Instituto de Física da USP - pelo apoio no laboratório de Ciências da Atmosfera (Antártica) e pela amizade que resgatamos.

A bibliotecária Suelena (INPE) pela paciência e carinho oferecidos gratuitamente.

A "Rô" por ter "decifrado" os meus rascunhos.

A Júlio Guimarães Ferreira - Laboratório Associado de Plasma, INPE - por ter importantes sugestões de trabalho.

A Norberto O. Horn Filho e Néelson Luis Sambaqui Gruber  
Pelos esclarecimentos na área de Geologia e pelo companherismo nos trabalhos e no convívio na Antártica.

Caruso e Kadú (UERJ) e Adolfo (CBPF) por terem me conduzido até a pesquisa.

À todos os bolsistas e funcionários do INPE que me acompanharam todos os dias de perto e aos demais membros da banca de mestrado.

Aos meus companheiros de república por terem segurado as "barras".

À Bia e Clarinha pelo silêncio que aprendi.

À Badú, um garoto de rua.

### ABSTRACT

Continuous measurements of the natural radioactive gas  $^{222}\text{Rn}$  are made at the Brazilian Antarctic station "Comandante Ferraz" (62° S, 58° W) to study the continental influence of air masses over the Antarctic peninsula. The technique employed in the measurements is based on the process of electrostatic collection of the ionized Polonium isotopes (the Radon decay products). The efficiency of collection is of the order of 50% to 57% for an applied electric potential of 17 kV. The collection chamber has a hemispheric shape in order to optimize the collection yield. The observed radioactivity at the Ferraz station for the period March to November 1986 and 1987 exhibited different behaviors. The year 1986 showed an average radioactivity of  $(2.6 \pm 1.8) \times 10^{-2} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , while in 1987 a 50% decrease in the concentration was observed with a value of  $(1.44 \pm 0.8) \times 10^{-2} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Associated variations of wind velocity and continental aerosol loads were also observed. Periodicities in the radon time series displayed more intense peaks at 25 to 30 day periods. No seasonal trend was observed. Transient increases of radon correlated with short deicing periods. The average flux of  $\text{Rn}$  were calculated from a sampling network consisting of 20 points spread over the exposed regoliths and outcrops of the King George island, with values of  $250 \text{ atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  for the  $^{220}\text{Rn}$  and  $7500 \text{ atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  for the  $^{222}\text{Rn}$  isotope.

## SUMÁRIO

|   | <u>Pág.</u> |
|---|-------------|
| LISTA DE FIGURAS.....   | xiii        |
| LISTA DE TABELAS.....   | xvii        |
| <u>CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO.....</u>   | 1           |
| <u>CAPÍTULO 2 - FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA.....</u>  | 5           |
| 2.1 - O radônio na atmosfera.....   | 5           |
| 2.2 - Sobre os processos físico-químicos que envolvem os produtos de decaimento do Rn atmosférico.....  | 9           |
| 2.3- Processos de transporte.....   | 17          |
| <u>CAPÍTULO 3 - INSTRUMENTAÇÃO.....</u>   | 23          |
| 3.1 - Desenvolvimento e aperfeiçoamento do sistema de medida de Rn atmosférico.....   | 36          |
| 3.1.1 - Região útil de precipitação.....  | 36          |
| 3.1.2 - Potencial eletrostático no interior do hemisfério de precipitação.....  | 40          |
| 3.1.3 - Potencial da casca hemisférica.....   | 41          |
| 3.1.4 - Potencial da base circular do hemisfério.....   | 44          |
| 3.1.5 - Análise do decaimento de radioisótopos no interior da câmara de precipitação eletrostática.....   | 51          |
| 3.2 - Estimativa da taxa de contagem associada à partículas alfa produzidas pelo decaimento do Rn <sup>222</sup> no interior do hemisfério de precipitação eletrostática..... | 56          |
| 3.2.1 - Determinação do valor limite para a perda de energia.....   | 59          |
| 3.2.2 - Conclusão.....  | 70          |
| 3.3 - Simulação da variação da atividade de Po <sup>218</sup> e Po <sup>214</sup> no interior da câmara de precipitação eletrostática.....                                    | 71          |
| 3.4 - Calibração dinâmica.....  | 81          |
| 3.4.1 - Descrição do experimento.....   | 84          |
| 3.4.2 - Relação funcional: contagem/atividade radioativa (Rn <sup>222</sup> )..   | 108         |
| 3.5 - Calibração "estática".....  | 112         |

|   |     |
|---|-----|
| 3.6 - Eficiência de coleta de íons de $(\text{Po}^{218})^+$ em função da variação de umidade relativa.....  | 116 |
| 3.6.1 - Descrição do experimento com umidade variável.....  | 116 |
| 3.6.2 - Descrição das etapas do experimento.....  | 117 |
| 3.6.3 - Resultados e conclusões.....  | 118 |
| 3.6.4 - Precipitação de íons radioativos em função da variação de campo elétrico no interior da câmara eletrostática.....   | 120 |
| 3.6.5 - Difusão e processo de perda de íons $^{218}\text{Po}^+$ por reações químicas de neutralização.....  | 123 |
| 3.6.6 - Conclusões.....   | 129 |
| 3.7 - Evidência da redução da taxa de contagem, durante monitoramento de $\text{Rn}^{222}/\text{Rn}^{220}$ atmosférico quanto a análise de ar seco e ar naturalmente umidificado..... | 130 |
| <u>CAPÍTULO 4 - INSTALAÇÕES E TÉCNICAS DE MEDIDAS NA ESTAÇÃO ANTÁRTICA COMANDANTE FERRAZ.....</u>   | 135 |
| <u>CAPÍTULO 5 - RESULTADOS EXPERIMENTAIS DAS MEDIDAS DE RADÔNIO ATMOSFÉRICO NA ESTAÇÃO ANTÁRTICA COMANDANTE FERRAZ.....</u>   | 141 |
| 5.1 - Discussão sobre as medidas de $\text{Rn}^{222}$ atmosférico e suas correlações com parâmetros de transporte e produção local.....   | 152 |
| 5.1.1 - Apresentação de dados.....  | 152 |
| 5.1.2 - Discussão dos resultados.....   | 159 |
| 5.1.2.1 - Evidências do fenômeno de transporte .....  | 159 |
| 5.1.2.2 - Resultado dos periodogramas para 1986 e 1987.....   | 165 |
| 5.2 - Influência local da produção de $\text{Rn}^{220}$ e $\text{Rn}^{222}$ sobre o "background" de radioatividade atmosférica na Ilha Rei George...                                  | 169 |
| 5.2.1 - Introdução.....   | 169 |
| 5.2.2 - Associação dos pontos de medida com a caracterização e o esboço geológico das regiões aflorantes; Ilha Rei George.  | 170 |
| 5.2.3 - Metodologia de trabalho.....  | 173 |
| 5.2.4 - Estimativa do fluxo e da concentração superficial de $\text{Rn}^{220}$ e $\text{Rn}^{222}$ na Ilha Rei George.....  | 183 |
| 5.2.5 - Constantes numéricas.....   | 186 |
| <u>CAPÍTULO 6 - CONCLUSÕES.....</u>   | 197 |
| REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....   | 203 |



- APÊNDICE A - EQUAÇÕES PARA O DECAIMENTO DE RADIOSIÓTOPOS EM SISTEMAS FECHADOS
- APÊNDICE B - EQUAÇÕES PARA O EQUILÍBRIO DO SISTEMA DESCRITO PELA FIGURA DE CALIBRAÇÃO
- APÊNDICE C - CRITÉRIO DE CHAUVENET PARA REJEIÇÃO DE CONTAGENS "SUSPEITAS"
- APÊNDICE D - DESCRIÇÃO ANALÍTICA DA CALIBRAÇÃO DO SISTEMA DE COLETA ELETROSTÁTICA EM FUNÇÃO DO NÚMERO DE ÁTOMOS DE  $Po^{218}$  PRODUZIDOS NO INTERIOR DO SISTEMA
- APÊNDICE E - TAXA ESCAPE/PRODUÇÃO ( $\epsilon$ )
- APÊNDICE F - ESPECTROMETRIA GAMA DE FONTE-PADRÃO

LISTA DE FIGURAS

|   | <u>Pág.</u> |
|---|-------------|
| 2.1 - Decaimento radioativo dos nuclídeos nas séries "4n+2" e "4n" a partir da fase gasosa até a produção do elemento estável.....  | 7           |
| 2.2 - Quadro geral dos compostos atmosféricos envolvidos nas reações químicas com os isótopos de polônio e suas distribuições a nível troposférico-estratosférico.....  | 12          |
| 2.3 - Circuito que indica a produção de radônio e seu ciclo na atmosfera: Emissão da superfície → produção de íons → recombinação → precipitação.....   | 15          |
| 3.1 - Esquema que mostra em diagrama de blocos a última versão do sistema de detecção de radônio atmosférico (1989) através da técnica de precipitação eletrostática: 1. sistema de admissão de ar; 2. câmara de precipitação; 3. eletrônica de seleção e tratamento de sinal e 4. sistema de aquisição de dados..... | 24          |
| 3.2 - Espectro de energia dos radioisótopos $Po^{218}$ , $Po^{216}$ , $Po^{214}$ e $Po^{212}$ medidos no interior da câmara de precipitação eletrostática preenchida com ar atmosférico.....  | 27          |
| 3.3 - Produção de pulso e seção reta de um detector semicondutor e seu circuito elétrico equivalente.....   | 30          |
| 3.4 - Sistema de monitoramento de $Rn^{222}$ atmosférico.....   | 34          |
| 3.5 - Sinopse da passagem do sinal através do SCE.....  | 35          |
| 3.6 - Posição do detector no interior do hemisfério de precipitação.....  | 37          |
| 3.7 - Solução da equação de Laplace para o potencial de precipitação associado à geometria hemisférica.....   | 45          |
| 3.8 - Soma algébrica das soluções das equações de Laplace para o hemisfério + disco circular da base submetidos ao mesmo potencial + $V_0$ .....  | 50          |
| 3.9 - Espectro de intensidade relativa para os nuclídeos formados no interior da câmara operando no "modo estático".....  | 52          |

|  |     |
|--|-----|
| 3.10 - Distribuição de contagens para o decaimento do $Rn^{220}$ e $Rn^{222}$ no interior da câmara mostrando as regiões de influência dos gases de curta e longa meias-vidas.....   | 53  |
| 3.11 - Perda de energia de partícula alfa indicada pela altura do sinal.....   | 63  |
| 3.12 - Aproximação para a seção reta da região de máxima probabilidade onde uma partícula alfa emitida no detector pelo $Rn^{222}$ é contada como um evento associado a este nuclídeo.   | 65  |
| 3.13 - Perda de energia de partícula alfa em função da ionização específica produzida no meio.....   | 66  |
| 3.14 - Reciclagem de $Rn^{222}$ através do precipitador.....   | 72  |
| 3.15 - Simulação da resposta do sistema de coleta eletrostática a partir da introdução de uma fonte constante de $Rn^{222}$ .....  | 77  |
| 3.16 - Simulação para o intervalo de tempo de resposta ao equilíbrio para o nuclídeo $Po^{214}$ .....  | 80  |
| 3.17 - Esquema do circuito de calibração dinâmica do sistema de coleta de íons: . subsistema A: sistema de injeção do gás de araste ( $N_2$ ) e sistema umidificador; . subsistema B: sistema de produção do gás radioativo, coleta de íons e eletrônica associada ao tratamento e aquisição de pulso nuclear..... | 82  |
| 3.18 - Diagrama para a determinação da curva de calibração.....  | 98  |
| 3.19 - Curvas de calibração para o equilíbrio secular $A^{Rn222} = A^{Po218} = A^{Po214}$ .....  | 110 |
| 3.20 - Exemplo típico da variação da atividade do $Po^{218}$ no interior do sistema de calibração para três fluxos de diluição conhecidos.....   | 111 |
| 3.21 - Resultado do efeito da umidade sobre a taxa de precipitação de íons radioativos.....  | 122 |
| 3.22 - Quadro dos possíveis processos de perda de íon $^{218}Po^+$ .....   | 125 |
| 3.23 - Formação de "clusters" em ambiente saturado.....  | 126 |
| 3.24 - Sistema de monitoramento de radônio atmosférico adaptado para medidas de ar seco e umedecido composto por uma dupla linha de retardo.....   | 132 |

|  |     |
|--|-----|
| 3.25 - Espectro obtido para os produtos de decaimento do $Rn^{220}$ e $Rn^{222}$ em ambiente seco.....   | 133 |
| 3.26 - Espectro obtido para os produtos de decaimento do $Rn^{220}$ e $Rn^{222}$ para ar atmosférico saturado com vapor d'água a 90%.....                              | 134 |
| 4.1 - Península Antártica (em negrito) e a posição da ilha Rei George onde localiza-se a Estação Antártica Comandante Ferraz.....                                      | 136 |
| 4.2 - a) Lab. Ciências da Atmosfera: b) Est. Antártica Com. Ferraz.....  | 137 |
| 5.1 - Média móvel de 7 pontos para aquisição diária ( $Rn^{222}$ - $T_{ar}$ ) em período de inverno na Estação Antártica Comandante Ferraz.....                        | 142 |
| 5.2 - Média móvel de 7 pontos para aquisição diária ( $Rn^{222}$ - $T_{ar}$ ) em período de inverno na Estação Antártica Comandante Ferraz.....                        | 143 |
| 5.3 - Média móvel de 7 pontos para aquisição diária ( $Rn^{222}$ - Intensidade do vento) em período de inverno na Estação Antártica Comandante Ferraz.....             | 144 |
| 5.4 - Média móvel de 7 pontos para aquisição diária ( $Rn^{222}$ - Intensidade do vento) período de inverno na Estação Antártica Comandante Ferraz.....                | 145 |
| 5.5 - Periodicidade de 25 dias observada para a concentração atmosférica de $Rn^{222}$ medido na ilha Rei George em períodos de inverno.....                           | 148 |
| 5.6 - Periodicidade de 30 dias observada para a concentração atmosférica de $Rn^{222}$ medido na ilha Rei George em período de inverno.....                            | 149 |
| 5.7 - Curva de correlação e níveis de confiança da correlação: $T_{ar} \times T_{solo}$ .....  | 151 |
| 5.8 - Posições geográficas das estações que operam em regiões subantárticas e no continente antártico onde é empregado o uso do radônio como traçador atmosférico..... | 154 |
| 5.9 - Histograma de frequência para contagem diária associada ao decaimento radioativo do $Rn^{222}$ em período de inverno.....  | 156 |

|  |     |
|--|-----|
| 5.10 - Padrão médio da cobertura de neve.....  | 160 |
| 5.11 - Aumento da atividade radioativa local em função do dege-<br>lo e do aumento da cobertura superficial de gelo e neve.. | 162 |
| 5.12 - Esboço geológico da ilha Rei George e localização dos<br>pontos de medida para espectrometria gama de superfície..    | 171 |
| 5.13 - Espectro obtido diretamente do solo pelo emprego de espec-<br>trômetro gama.....                                      | 175 |

LISTA DE TABELAS

|  | <u>Pág.</u> |
|--|-------------|
| 3.1 - Valores de $\omega_m$ .....  | 48          |
| 3.2 - Coeficientes constantes da Equação 3.23.....                           | 51          |
| 3.3 - Comprimento do percurso calculado em função da perda de energia.....   | 57          |
| 3.4 - Contagem observada x UR.....   | 131         |
| 5.1 - Fontes de calibração: canal x energia.....                             | 176         |
| 5.2 - Concentrações relativas de radioisótopos de padrões de calibração..... | 178         |
| 5.3 - Estações de medida - ilha Rei George, Antártica - Jan./Fev. 1989.....  | 182         |
| 5.4 - Compêndio de valores mais prováveis para $D_{220,222}$ .....           | 188         |
| 5.5 - Estimativa do fluxo de emissão para o radioisótopo 222....             | 190         |
| 5.6 - Estimativa do fluxo de emissão para o radioisótopo 220....             | 191         |

## CAPÍTULO 1

### INTRODUÇÃO

Muito da potencialidade do uso do radônio atmosférico como traçador radioativo de massas de ar nos deslocamentos horizontais e convectivos permanece inexplorado. Seu monitoramento em períodos de grandes atividades vulcânicas (como registro de produção para a atmosférica de  $Pb^{210}$  - Lambert, 1982), em regiões propícias a abalos sísmicos (como registro de previsão de terremotos - Smith et al., 1980), em minas de urânio e fosfato e ambientes residenciais (como indicador de proteção radiológica - Posterndörfer et al., 1980), na ciência espacial (no estudo da difusão de gases em superfícies planetárias) e das propriedades físicas e químicas de seus produtos de decaimento (no estudo da produção de íons nos baixos níveis, eletricidade atmosférica - Roffman, 1972 - e formação de partículas higroscópicas) representa um quadro geral do uso do radônio e seus isótopos na pesquisa básica e aplicada em diversas áreas do conhecimento.

Particularmente, o emprego de elementos radioativos naturais como traçadores atmosféricos tem demonstrado ser uma técnica eficiente no estudo da dinâmica das massas de ar nos baixos níveis (em regiões abaixo da tropopausa). Dentro deste contexto suas medidas em estações remotas é um indicativo dos transportes em grande e meso-escalas no globo cujo interesse é atual e envolve o estudo de outros gases minoritários de modo geral.

Este trabalho trata portanto de dois objetivos: Primeiramente do desenvolvimento de uma técnica baseada na precipitação eletrostática de íons para a detecção de radioisótopos produzidos pelo decaimento dos gases  $Rn^{220}$  e  $Rn^{222}$  liberados pela crosta terrestre, oriundos das séries radioativas do  $U^{238}$  e  $Th^{232}$  respectivamente.

O desenvolvimento dessa técnica experimental estará relacionado com o estudo das propriedades físicas dos íons e dos gases medidos no interior de uma câmara eletrostática.

A abordagem instrumental não trata especificamente da eletrônica envolvida no sistema de detecção e tratamento de pulso nuclear mas na otimização, aperfeiçoamento e calibração de uma instrumentação que proporcione a melhor relação sinal-ruído para seu uso em medidas de baixas concentrações de radioatividade como observados na Antártica e nos perfis verticais atmosféricos.

O segundo objetivo é mostrar os primeiros resultados da utilização dessa técnica de monitoramento de radônio atmosférico na península Antártica (ilha Rei George) durante os invernos de 1986 e 1987, suas correlações com parâmetros de transporte empregados em meteorologia dinâmica e sinótica, temperatura do solo e níveis de cobertura de gelo e neve, mostrando a influência da produção local dos gases como também a influência continental da América do Sul sobre a região da península.

Serão apresentados valores de concentração local e as variações observadas em escala sazonal. As discussões abrangem predominantemente uma visão qualitativa dos resultados devido as restrições impostas pelo uso de apenas uma estação remota para a medida de radônio no leste do continente antártico.

Os resultados obtidos indicam que as concentrações registradas na Estação Antártica Comandante Ferraz ( $62^{\circ}05'S$ ,  $58^{\circ}24'W$ ) apresentam valores médios anuais compatíveis em ordem de grandeza com outros valores determinados em estações francesas no oceano Índico nas vizinhanças das regiões subantárticas. Periodicidades de 25 a 30 dias encontradas a partir das concentrações anuais registradas na estação brasileira apresentam forte concordância com a periodicidade de 28 dias observadas por Lambert et al. no final da década de 1960 nas ilhas subantárticas onde operam as estações francesas.

Abordar-se-á em seqüência o problema da concentração de radônio produzido in loco principalmente durante



o verão onde o afloramento de rochas e sedimentação alcança cerca de 1% da área total da ilha. O aumento da área efetiva de produção dos gases radioativos faz com que esta contribuição se superponha às concentrações decorrentes do transporte em larga escala. Para uma primeira avaliação do fluxo de radônio produzido no período de maior degelo na ilha, definiu-se 20 pontos para o estudo de espectrometria gama na superfície de áreas degeladas para a determinação das concentrações de urânio e tório locais. Esses resultados associados a um simples modelo para a difusão de gases no solo e na atmosfera determinam o fluxo médio esperado.

Finalizando, são colocadas propostas resultantes do desenvolvimento da técnica empregada e dos resultados obtidos visando objetivamente uma melhor resposta quanto à sensibilidade da instrumentação e detecção dos radioisótopos medidos e do uso dos traçadores atmosféricos como indicadores de fenômenos associados ao transporte de gases minoritários nos baixos níveis da atmosfera.

## CAPÍTULO 2

### FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

#### 2.1 - O RADÔNIO NA ATMOSFERA

Será apresentado nesse trabalho uma técnica de monitoramento do gás radioativo Rn utilizado como traçador atmosférico. Os elementos básicos desse estudo estão relacionados ao conhecimento das propriedades desse gás e de seus processos de difusão solo-atmosfera como também seu transporte a nível global na troposfera. A combinação entre a meia-vida do Rn<sup>222</sup> de aproximadamente 3,82 e o fato desse radioisótopo ser produzido na superfície dos continentes, pois o U<sup>238</sup> é comumente encontrado na crosta terrestre faz com que o seu emprego como traçador atmosférico seja de relevância no estudo sobre a difusão de gases nas regiões abaixo da tropopausa, nos movimentos das massas de ar a nível global desde que a escala de tempo de transporte seja compatível com a meia-vida do gás traçador e também na distribuição vertical de componentes gasosos minoritários.

A distribuição espaço-temporal do Rn<sup>222</sup> e de seus isótopos Rn<sup>220</sup> e Rn<sup>219</sup> é dominada pelo parâmetro temporal que define a meia-vida do radioisótopo dos processos difusivos destes no meio atmosférico, além dos próprios agentes naturais presentes na atmosfera responsáveis pela sua remoção limitando seu tempo de residência e governando seu comportamento dinâmico.

A consequência desse aspecto físico faz com que o Rn<sup>220</sup>, cuja meia-vida é de 55,60s, tenha seu transporte restrito especialmente significativamente apenas na determinação da influência de variáveis meteorológicas nos processos de difusão de gases a partir do solo. O Rn<sup>219</sup> por ser também um radioisótopo de curta meia-vida, aproximadamente 3,96s, tem seu papel como elemento traço ignorado além de ter como precedente em sua série radioativa o U<sup>235</sup> cuja abundância (0,02 ppm na crosta terrestre) é comparativamente reduzida em relação ao U<sup>238</sup> (2,70 ppm) e o Th<sup>232</sup> (8,50 ppm).

A Fig. 2.1 mostra as duas séries radioativas naturais ( $\text{Th}^{232}$  e  $\text{U}^{238}$ ), no período pós-fase gasosa, de maior interesse nesse trabalho e os lugares ocupados pelos isótopos do radônio:  $\text{Rn}^{220}$  e  $\text{Rn}^{222}$  (isótopo mais estável) em cada uma das séries.

O ciclo do  $\text{Rn}^{222}$  na atmosfera é relativamente simples uma vez que seus processos de perda são quase que exclusivamente por decaimento radioativo.

O radônio é um gás nobre, possui valência nula, e por esse motivo não se combina quimicamente com nenhum outro átomo livre, existindo somente na forma de molécula monoatômica, é um gás minoritário na atmosfera onde sua razão de mistura comparada com a do nitrogênio molecular ( $\text{N}_2$ ) na troposfera, em ambiente seco, é na ordem de  $7,68 \cdot 10^{-20}$  (Lewis et al., 1987) possui núcleo instável e decai radioativamente emitindo uma partícula alfa (átomo de hélio duplamente ionizado) de 5,49 MeV com probabilidade superior à 99% ou pela emissão de radiação gama de 0,51 MeV com probabilidade na ordem de 0,07% (decaimento ramificado) para o radioisótopo 222.

Seu perfil vertical tem a forma aproximada de um decaimento exponencial, numa atmosfera padrão, apresentando um valor típico de 3 km para sua escala de altura em regiões continentais.

Ao se desintegrar na atmosfera, o  $\text{Rn}^{222}$  dá origem a dois isótopos emissores de partícula alfa ( $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$ ) cuja existência é apenas transitória na região de produção uma vez que são metais pesados de curta meia-vida e não ostentam as mesmas propriedades físico-químicas de seu precursor. Possuem caráter iônico e em condições atmosféricas normais de 12% destes são neutros e 88% são portadores de carga positiva (cátions+1), seu caráter interativo com outros particulados é função da concentração local de íons, aerossóis e impurezas presentes no ar, podendo formar "clusters" com outros íons livres na atmosfera, núcleos de condensação, serem removidos por campos elétricos gerados em tempestades durante descargas elétricas atmosféricas, recombinares-se eletronicamente, formarem óxidos a partir das reações com  $\text{O}_2$  e  $\text{NO}_2$ , ou ainda permanecerem agregados à metais na superfície da Terra. O transporte de carga na

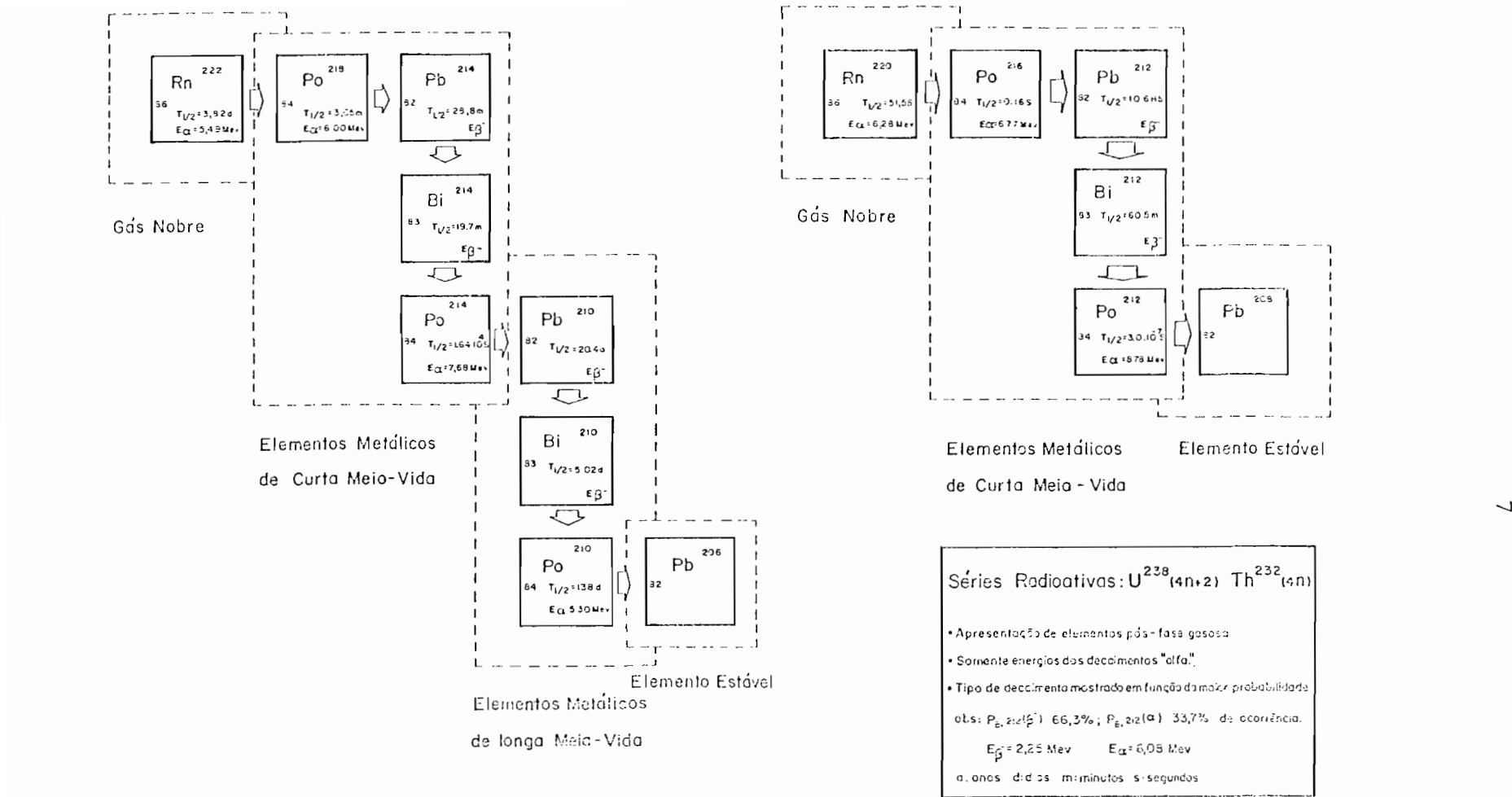


Fig. 2.1 - Decaimento radioativo dos nuclídeos nas séries " $4n+2$ " e " $4n$ " a partir da fase gasosa até a produção do elemento estável.

FONTE: Baseado em Kaplan (1963).

A seqüência mostra as meias-vidas envolvidas no decaimento e o tipo de desintegração.

presença de campos elétricos atmosféricos intensos se constitui num dos importantes processos de migração de íons nos baixos níveis. Dentro desse ponto de vista, o estudo das variações dos produtos de decaimento do  $\text{Rn}^{222}$  de curta meia-vida desempenham relevante papel no estudo da eletricidade atmosférica devido seu processo migratório nas adjacências das correntes elétricas atmosféricas. A redução local dos íons nesses eventos sugere que um movimento ascendente ou descendente esteja diretamente associado com a intensidade e polarização do campo elétrico definindo a direção de migração desses íons. Nessas migrações muitos íons radioativos neutralizam-se ou recombinaem-se. A concentração de  $\text{Rn}^{222}$  atmosférico, por outro lado, mantém-se inalterada.

Existem portanto, complicações teóricas e experimentais na formulação de um modelo autoconsistente para a descrição do perfil de concentração desses radionuclídeos devido principalmente à dificuldade de manipulação de seus agentes de produção e perda, muito porque não existe um estado estacionário de equilíbrio para esses íons a nível global na atmosfera. Quantitativamente, cerca de 10% dos produtos do  $\text{Rn}^{222}$ , em condições de equilíbrio radioativo secular, estão associados à pequenos íons, e presumivelmente os 90% restantes existem na forma de grandes íons ligados de modo irreversível à aerossóis. Estes 90% de portadores de atividade radioativa atmosférica de origem natural constituem-se em particulados cujos raios variam de  $5 \cdot 10^{-2} - 5 \cdot 10^{-1} \mu$  tipicamente encontrados em massas de ar do tipo continental. Assim os produtos de decaimento do  $\text{Rn}^{222}$  são encontrados basicamente em três formas:

1. Na forma de pequenos íons positivos.
2. Na forma de grandes íons positivos e negativos.
3. Na forma de átomos ou agregados à aerossóis neutralizados eletricamente.

Resumindo, a variação no tempo da atividade relativa aos produtos de decaimento na forma de metais radioativos depende basicamente da taxa de emissão do  $\text{Rn}^{222}$  das diferentes formações dos solos e das rochas, das meias-vidas características dos radioisótopos envolvidos no

decaimento do gás de origem e da taxa de remoção desses elementos por qualquer agente presente na atmosfera que exerça influência global ou localizada em relação à região de produção. Isto implica que seu transporte horizontal e remoção por "washout" ou "rainout" segue o mesmo comportamento relativo aos aerossóis. Íons radioativos em dimensões submicroscópicas ou mesmo átomos isolados de radônio não são precipitados pela ação direta de gotículas de água (washout). Contudo, a remoção dos íons agregados aos aerossóis de dimensões maiores ou aqueles solúveis em água (higroscópicos) pode ser significativa estando também associada a processos de formação de nuvens. A remoção é caracterizada por um mecanismo de "precipitação seca" onde as espécies (íons, agregados) são depositadas livremente nas superfícies dos continentes e dos oceanos e que são mecanismos mais eficientes nos níveis próximos à superfície e "precipitação úmida" onde as espécies são incorporadas em elementos de precipitação (chuva, aerossóis) e depois depositados na superfície. A princípio, a presença desses íons radioativos cuja expectativa média de vida é conhecida, agregados aos aerossóis, fornecerá subsídios para a determinação do tempo de residência desses particulados e seus mecanismos de transporte na atmosfera.

## 2.2 - SOBRE OS PROCESSOS FÍSICO-QUÍMICOS QUE ENVOLVEM OS PRODUTOS DE DECAIMENTO DO Rn ATMOSFÉRICO

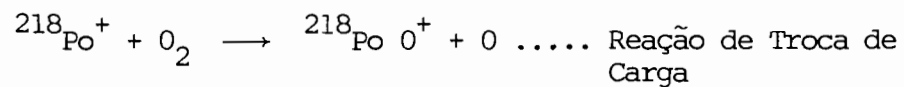
Recombinação, troca de carga, "attachment" são apenas alguns dos processos de neutralização e formação de aglomerados iônicos. Como difusão turbulenta e reação química são processos competitivos na atmosfera, a distribuição vertical desses íons quanto a concentração, e suas meias-vidas definirão a importância relativa de cada processo.

A região de formação dos íons de polônio é predominantemente abaixo da tropopausa, portanto numa atmosfera tipicamente neutra com baixíssima concentração numérica de íons disponíveis para recombinação e para perda ou transferência de carga. O tipo mais provável de neutralização desses íons se dá de forma indireta a partir da formação de óxidos ou através da formação de "clusters" hidratados.

**Processo de formação e recombinação:** No instante imediatamente após a emissão de uma partícula alfa pelo núcleo do  $\text{Rn}^{222}$  existe um excesso de dois elétrons em torno de um núcleo residual recém-formado: o  $\text{Po}^{218}$ . Esse excesso o torna durante uma fração de segundos um ânion (-2). A partícula alfa emitida, por sua vez, tem energia suficiente para gerar perturbações na nuvem eletrônica do átomo de  $\text{Po}^{218}$ , autoionizando-o e fazendo com que este presumivelmente perca quase que simultaneamente à emissão alfa, dois ou mais elétrons de sua envoltória. A energia de recuo do núcleo é na ordem de 101 KeV. Parte da energia envolvida no processo de decaimento é convertida em energia de movimento do par núcleo residual-partícula alfa, outra parte é dissipada no meio como energia térmica e outras formas ionizando e excitando átomos e moléculas no percurso da produção do par. Novos elétrons são então produzidos e capturados pelo íon no meio de forma que o balanço de cargas ao final do recuo é de 88% de cátions (+1) e 12% de átomos neutros, em condições normais de temperatura. Durante o percurso de recuo, calcula-se que cerca de  $10^{12}$  colisões ocorram até que toda a energia do íon seja transferida ao meio. O comprimento médio característico para o recuo no ar é na ordem de 50  $\mu\text{m}$ . Resultados semelhantes, nos mesmos valores percentuais, são também encontrados para os produtos de decaimento do  $\text{Rn}^{220}$  (Hopke, 1981). Em condições normais em meio ambiente, ao nível do mar, observa-se uma ionização específica que varia entre  $10^3 - 7 \cdot 10^3$  pares de íons produzidos por milímetro de trajetória correspondente ao deslocamento de uma partícula alfa espontaneamente emitida no ar pelo decaimento radioativo do  $\text{Rn}^{222}$ . A produção desses íons ( $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$  na série do  $\text{U}^{238}$  como também  $\text{Po}^{216}$  e  $\text{Po}^{214}$  na série do  $\text{Th}^{232}$ ) desempenha importante papel na formação de núcleos de condensação e de outros aglomerados iônicos em regiões da baixa atmosfera. A neutralização dos íons positivos  $^{218}\text{Po}^+$  poderá ocorrer em duas naturezas:

- i. **Recombinação Iônica:** Recombinação dos íons  $^{218}\text{Po}^+$  com outros íons negativos podendo ainda ser subdividida em duas categorias:

- i(1): A recombinação poderá ocorrer diretamente com a presença de um íon negativo livre na atmosfera.
- i(2): A recombinação se processa através da captura de um elétron a partir de um gás cujo potencial de ionização é menor comparado com o potencial de ionização do óxido formado pelo íon de polônio através da reação:



- ii. **Recombinação Eletrônica:** Recombinação dos íons  ${}^{218}\text{Po}^+$  com elétrons. Este tipo de reação é pouco provável devido à não-existência de uma concentração relevante de "elétrons livres" disponíveis abaixo de 50 km para a recombinação de metais pesados cuja dinâmica se desenvolve basicamente na troposfera. Elétrons ou átomos ionizados podem existir nos baixos níveis em intervalos de tempo muito curtos, de nanosegundos à microsegundos, antes de participarem de reações de neutralização.

A possível formação do óxido de polônio, cujo potencial de ionização varia entre 10 e 11 (eV) possibilita a extração de elétrons de moléculas existentes na atmosfera como NO (9,25 eV) ou  $\text{NO}_2$  (9,79 eV), uma vez que o íon  ${}^{218}\text{Po}^+$  isolado tem baixo potencial de ionização (8,43 eV). A Fig. 2.2 mostra algumas reações típicas de produção e aniquilamento desses compostos como também de  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$  e  $\text{H}_2\text{O}$ , estruturas mais abundantes envolvidas direta ou indiretamente nas reações que envolvem os óxidos nitrogenados.



Compêndio dos Compostos Atmosfêricos indicados como mais prováveis produtos de decaimento do  $Rn^{222}$ : Propriedades e Distrib.

| Tipo de molécula                   | Percent por Vol-ar seco   | Potencial de ionização (ev) |  |
|------------------------------------|---|-----------------------------|--|
| NO<br>ÓXIDO NITRICO                | Razão de Mistura:<br>- base de ar: $4 \cdot 10^{12}$ (base seca)<br>- ALTURA < 600m: $10^{12}$                        | 9,25                        | <p>Altitude (km): 90, 80, 70, 60, 50, 40, 30, 15</p> <p>Reações químicas:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li><math>NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2</math></li> <li><math>NO + NO \rightarrow N_2O_2</math></li> <li><math>NO + O_2 \rightarrow NO_2 + O</math></li> <li><math>NO + NO_2 + H_2O \rightarrow 2HNO_2</math></li> <li><math>NH_3 + O_2 \text{ (atmósfera)} \rightarrow NO_2</math></li> <li><math>NO</math></li> </ul> |
| NO <sub>2</sub><br>DÍOXIDO DE NIT. | - Variável<br>- Razão de mistura: $5 \cdot 10^{10} - 2 \cdot 10^8$  | 9,79                        |  |
| H <sub>2</sub> O<br>VOL. DE ÁGUA   | Variável<br>- Razão de mistura na troposfera: $10^{-2} - 10^{-5}$<br>(valor típico na base de ar: $3 \cdot 10^{-2}$ ) | 12,56                       |  |
| N <sub>2</sub><br>NIT. MOLECULAR   | -78,084   | 15,58                       |  |
| O <sub>2</sub><br>OXI. MOLECULAR   | -20,948   | 12,10                       |  |

R.M. Razão de Mistura

Fig. 2.2 - Quadro geral dos compostos atmosfêricos envolvidos nas reações químicas com os isótopos de polônio e suas distribuições a nível troposférico-estratosférico.

Wilkening (1961) mostra que a vida-média efetiva dos núclídeos do  $\text{Po}^{218}$  na forma de íons pode ser expressa como:

$$T_{\text{Po}^{218}} = \frac{1}{\lambda_{\text{Po}^{218}} + \xi n^- + \zeta N}$$

onde:  $\xi n^-$  é a probabilidade de perda, por recombinação do íon  $^{218}\text{Po}^+$  com pequenos íons negativos ( $\xi$ : coeficiente de recombinação).

$\zeta N$  é a probabilidade de perda por "attachment" do íon com núcleos de condensação onde "N" é a concentração de núcleos de condensação por  $\text{m}^3$  e " $\zeta$ " é o coeficiente de "attachment".

Valores típicos de  $\xi n^-$  e  $\zeta N$  determinados em laboratório mostram que:

$$\xi n^- \sim 0.77 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

$$\zeta N \sim 100 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

$\therefore$

$$\xi n^- < \lambda_{\text{Po}^{218}} < \zeta N$$

A formação de complexos iônicos ou de átomos neutralizados resultantes da interação do  $^{218}\text{Po}^+$  com o meio ambiente pode ocorrer antes ou depois do "attachment" com aerossóis, Fig. 2.3.

Quanto ao vapor d'água, este é quimicamente ativo, seu tempo de residência na atmosfera é estimado na ordem de 10 dias e desempenha importante papel nas reações químicas a nível mesosférico-troposférico. Em particular nas camadas próximas ao solo seu papel dominante está relacionado com a formação de ligações fortes envolvendo íons positivos e negativos devido seu elevado valor de momento de dipolo elétrico ( $\sim 6,2 \cdot 10^{-30}$  C.m). Portanto, algumas moléculas de água

tenderão a aglomerar-se aos íons de polônio como também a outros íons existentes nas suas vizinhanças de forma a criar em torno dos íons "clusters" microscópicos (CLR) com diâmetros em torno de 18 - 30 Å. A dimensão média e a estrutura do "cluster" dependerá da densidade, pressão, temperatura de vapor e da natureza das interações intermoleculares numa forma complexa.

Hopke e Stukel (1981) acrescentam que a água não interage diretamente com os íons  $^{218}\text{Po}^+$  devido seu potencial de ionização (12.56 eV); no entanto, esta poderia capturar elétrons dos pares elétron-íon produzidos ao longo do caminho descrito pela partícula alfa resultante do decaimento do  $\text{Rn}^{222}$ . Neste caso a neutralização dos íons dependeria exclusivamente do número de elétrons aprisionados pelas moléculas de água e que seriam usados na recombinação dos íons de polônio, ou seja a taxa de recombinação aumentaria com o aumento da quantidade de água suspensa no ar. A neutralização do íon  $^{218}\text{Po}^+$  na presença de molécula de água se desenvolve numa escala de tempo da ordem de milisegundos.

Porstendorfer e Mercer (1979) mostram uma correlação entre unidade relativa e coeficiente de difusão para os átomos de polônio na forma de íons ou neutralizados.

Valores característicos para o coeficiente de difusão turbulenta (D) encontrados são:

$$\cdot \text{Po}^{218}_{(\text{neutralizados})}: D \sim 7,9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$$

$$\cdot (\text{Po}^{218})^+: D \sim 3,9 \cdot 10^{-6} \cdot \text{s}^{-1}$$

A mobilidade desses íons é comparada com a mobilidade de pequenos íons atmosféricos (raio  $\leq 7,0 \cdot 10^{-3} \mu$ ) cujo valor absoluto decresce com o aumento de unidade relativa devido ao incremento do diâmetro do "clusters" até a formação de uma estrutura estável.

Neutralização de íons  $^{218}\text{Po}^+$  através de compostos existente no meio ambiente

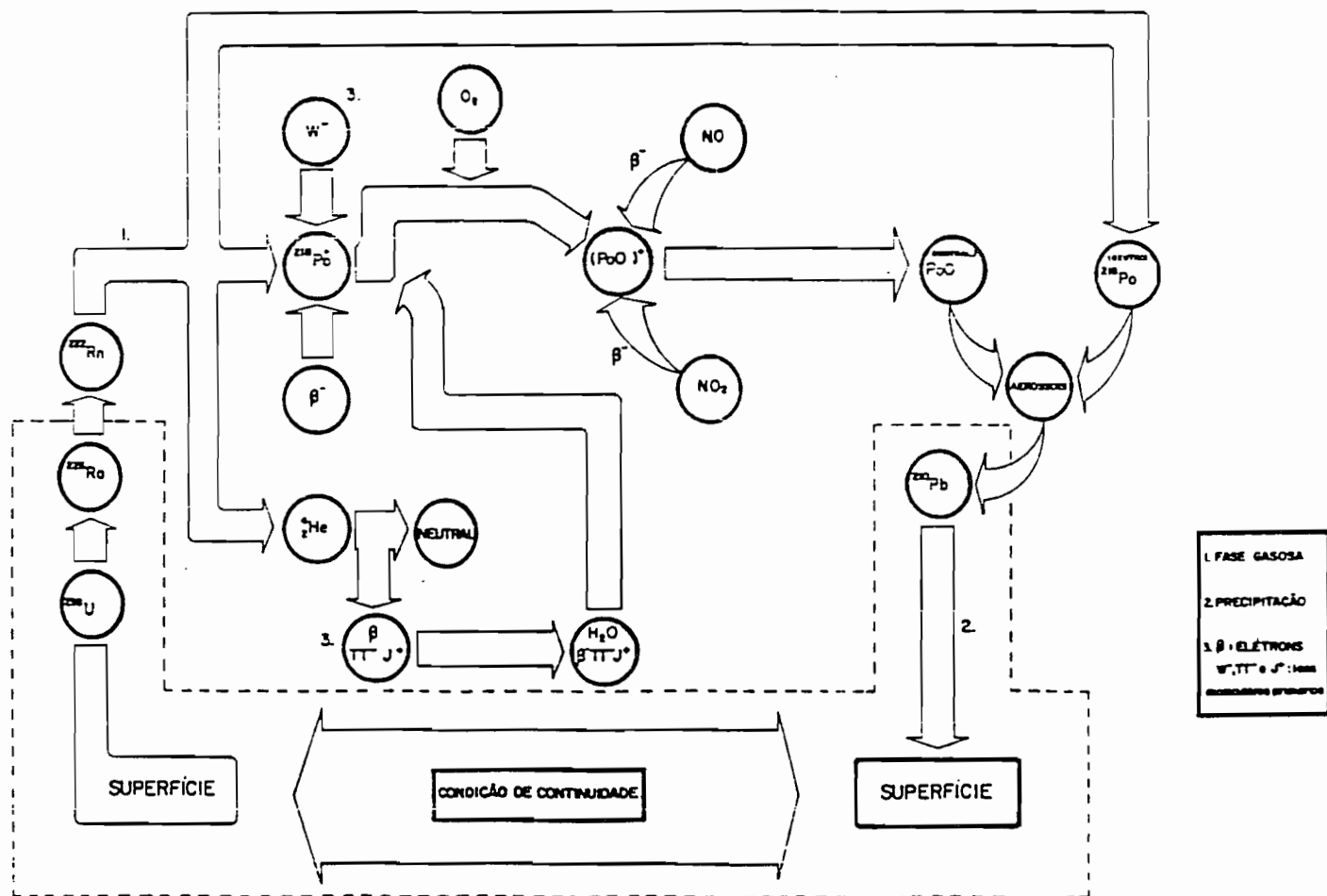


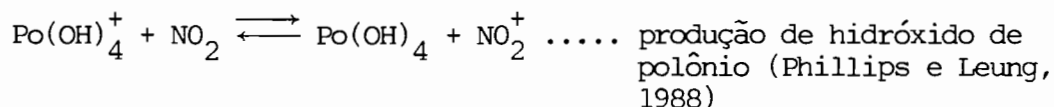
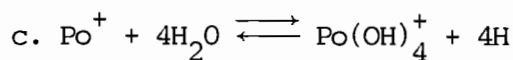
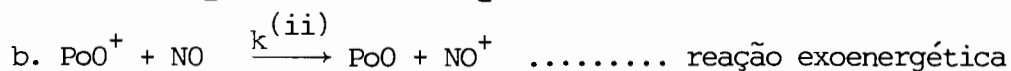
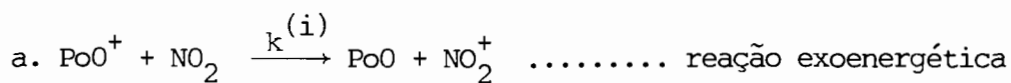
Fig. 2.3 - Circuito que ilustra a produção de radônio e seu ciclo na atmosfera: Emissão da superfície → produção de íons → recombinação → precipitação.

A fase pós-gasosa mostra a produção de  $^{218}\text{Po}^+$  e sua neutralização através da molécula de  $\text{H}_2\text{O}$ , a formação de óxido  $(\text{PoO})^+$  e suas reações com as moléculas de  $\text{NO}$  e  $\text{NO}_2$  e posterior precipitação na forma de aerossól.

Definindo-se  $T^{\text{Po}}$  como o intervalo de tempo característico para que o íon  $^{218}\text{Po}^+$  inicie um processo químico de neutralização ou troca de carga, tendo como base de comparação o valor da meia-vida do  $\text{Po}^{218}$ , tem-se:

|  |   |   |   |   |   |
|--|---|---|---|---|---|
| $T^{\text{Po}}$<br>recombinação<br>pequenos íons | < | $T^{\text{Po}}$<br>produção<br>"Clusters" | ≈ | $T^{\text{Po}}$<br>neutralização              | < |
|  |   | < $T^{\text{Po}}$<br>"attachment"         |   | < $T^{\text{Po}}$<br>decaimento<br>radioativo |   |

As reações químicas mais prováveis e, teoricamente, responsáveis pela formação do óxido de polônio e sua neutralização poderão ser resumidas como indicado nas reações:



Átomos de Po podem formar compostos com estados de oxidação: -2, +2, +3 (provalmente), +4 (estado de oxidação mais estável) e +6.  $\text{PoO}_4^{2-}$ ,  $\text{PoO}_3^{2-}$ ,  $\text{Po}^{4+}$  e  $\text{Po}^{2+}$  são íons formados através do Po em solução.

### 2.3 - PROCESSOS DE TRANSPORTE

A descrição dos processos de transporte de  $\text{Rn}^{222}$  será introduzida nessa seção de forma elementar e abrangerá exclusivamente dois aspectos distintos no contexto geral do assunto. Primeiramente será abordado o transporte à nível de superfície, isto é, difusão micro e macroscópica solo-atmosfera. Numa etapa posterior, o transporte será descrito quanto seu caráter global.

#### **Transporte no solo e na interface solo-atmosfera:**

Todos os isótopos do radônio são regularmente liberados da superfície dos continentes e dos oceanos, numa escala reduzida, (cerca de 100 vezes inferior a média de produção continental) e cuja origem deriva do  $\text{Ra}^{226}$  dissolvido na água. A taxa média de emissão continental de  $\text{Rn}^{222}$  é estimada em  $7,10 \cdot 10^3$  átomos/ $\text{m}^2 \cdot \text{s}$  e  $7,20 \cdot 10^3$  átomos/ $\text{m}^2 \cdot \text{s}$  para os hemisférios norte e sul respectivamente, o que corresponde a um valor anual de  $1,70 \cdot 10^9$  Ci/ano (Lambert et al., 1982), 98% do fluxo total produzido permanece em constante circulação na baixa, média e alta troposfera. Os 2% restantes serão responsáveis, juntamente com a produção vulcânica, pelo depósito estratosférico de  $\text{Pb}^{210}$ ,  $\text{Bi}^{210}$  e  $\text{Po}^{210}$ . Intensidades máximas localizadas de concentração atmosférica podem ser verificadas durante erupções vulcânicas de forma que a produção do gás decorrente dessas atividades sobrepõe-se ao "background" local de produção. O equilíbrio só é novamente restabelecido após a diluição completa do radônio no meio associada aos fenômenos de remoção e transporte.

O mecanismo de escape do  $\text{Rn}^{222}$  de solos, rochas e minerais para a atmosfera é fortemente influenciado pelas características do solo e pelas condições atmosféricas presentes: porosidade, teor de urânio, umidade, difusão molecular e gradiente geotérmico são os agentes associados à estrutura física e composição dos solos fundamentais no conhecimento da taxa de liberação do gás, que juntos às quantidades físicas atmosféricas como a difusão turbulenta, convecção e o arrasto horizontal no ar descrevem seu transporte em todos os níveis.

O Rn é relativamente imóvel no interior dos minerais das rochas; sua mobilidade é limitada a apenas algumas constantes de suas redes cristalinas.

Fleischer (1987) mostra partindo do grau de porosidade do solo que os átomos de radônio poderão migrar de seu interior através dos filamentos capilares existentes entre os pequenos grãos (com diâmetros na ordem de micrometros) que o compõe. O recuo sofrido pelos átomos de  $\text{Ra}^{226}$ , no ato da emissão de partículas alfa, pode conduzir o  $\text{Rn}^{222}$  para o interior de um espaço intersticial (ou simplesmente filamento de ar) localizado entre grãos adjacentes o qual poderia posteriormente ser removido por condução de água caso o solo esteja úmido o suficiente ou por correntes de ar no solo. Uma segunda alternativa resulta num mecanismo indireto de liberação do gás de forma que o recuo do  $\text{Ra}^{226}$  o conduziria para o interior de um outro microgrão, assim o  $\text{Rn}^{222}$  produzido não seria liberado por não estar numa região disponível para seu transporte. No entanto, é criado ao longo da trajetória de recuo do  $\text{Ra}^{226}$  um filamento que mesmo não sendo desobstruído é facilmente removido com escoamento de água no meio, criando um filamento que torna possível o escape do  $\text{Rn}^{222}$ .

Difusão e transporte por meio de fluidos são fatores significativos no deslocamento do radônio e seus produtos de decaimento nos solos. De um modo geral, difusão é um mecanismo mais eficiente no domínio dos canais intergranulares, pequenos poros e microfaturas. Em grandes poros, o transporte em meio fluido torna-se predominante.

Tanner (1980) mostra que para a difusão unidimensional de isótopos de radônio, num meio onde a distribuição de poros é uniforme, a concentração desses isótopos decresce exponencialmente na direção de migração destes. Nesse modelo tanto os parâmetros de difusão como de transporte são considerados.

O mecanismo de difusão do radônio na região limítrofe solo-atmosfera é complexo e pode ser subdividido em duas categorias:

**a. Difusão Molecular**

DEFINIÇÃO: Difusão molecular é gerada por gradiente de concentração oriundos da não homogenização da distribuição espacial de moléculas. A difusão molecular satisfaz a lei de Fick, ou seja, a difusão se dá na direção em que a concentração decresce. Este tipo de difusão juntamente com o escoamento viscoso em microfilamentos ou microfaturas, caracterizam os processos microscópicos.

Subcategorias:

- a.1. A primeira denomina-se "difusão de Knudsen" caracterizada quando o livre caminho médio molecular é grande comparado com o diâmetro dos filamentos capilares do meio.
- a.2. A segunda denominada "difusão molecular" propriamente dita ocorre quando o livre caminho médio molecular, distância média percorrida por uma molécula entre colisões sucessivas, é pequeno comparado com o diâmetro dos poros no meio.
- a.3. O terceiro tipo de difusão é normalmente caracterizada quando o transporte se dá por meio de escoamentos laminares através de filamentos devido à gradientes de pressão no meio. É conhecido como "escoamento de Poiseuille".

**b. Escoamento macroscópico através de fissuras e canais**

Arraste de  $\text{Rn}^{222}$  por correntes de convecção térmica é também considerado como possível mecanismo de transporte de  $\text{Rn}^{222}$  e particularmente aplicado para transportes em grandes distâncias verticais na crosta terrestre, induzido principalmente por fenômenos de superfí-



cie superpondo-se ao gradiente geotérmico natural do solo (Pereira e Hamza, 1982).

A concentração de  $Rn^{222}$  nas mediações acima do solo é especificada pela razão entre o coeficiente de difusão molecular, que depende da estrutura física do solo, e pelo coeficiente de difusão turbulenta, associado ao transporte turbulento e advecção vertical do gás na atmosfera, como também pela razão produção-decaimento do mesmo, dentro de um modelo simplificado de distribuição nos baixos níveis.

#### **Transporte em larga escala:**

O transporte em escala continental e oceânica de  $Rn^{222}$  depende essencialmente do padrão de circulação das massas de ar. Seu monitoramento em estações remotas onde a produção local é desprezível é um diagnóstico da circulação atmosféricas média nessas escalas. A precipitação, o período de trânsito juntamente com a eficiência de mistura vertical são os principais agentes responsáveis pela diluição do gás na atmosfera.

Uma diferença básica deve ser estabelecida quanto ao transporte de  $Rn^{222}$  e seus produtos de decaimento: tanto o  $Rn^{222}$  como seus descendentes estão igualmente sujeitos à advecção vertical, aos processos turbulentos na homosfera, aos deslocamentos horizontais produzidos pelos ventos e de um modo geral por todos os fenômenos de conservação de massa que se desenvolvem na atmosfera. Os fenômenos químicos e eletrodinâmicos ao invés daqueles de origem meteorológica atuam somente sobre os descendentes do  $Rn^{222}$ , ou seja, estes últimos sofrem dupla influência, em termos de transporte. Primeiro relativa à ação dos "ventos neutros" e segundo pelas correntes produzidas pelas, já citadas, descargas elétricas atmosféricas.

A escala sinótica oferece todos os requisitos básicos para ser escolhida como uma escala ideal para a análise da dinâmica do  $Rn^{222}$  na atmosfera, uma vez que algumas das magnitudes típicas para deslocamentos de massa ar nessa escala são:

1. Escala de comprimento:  $10^6$  m
2. Escala de tempo:  $10^5$  s
3. Velocidade horizontal:  $10 \text{ m.s}^{-1}$
4. Velocidade vertical:  $10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$
5. Escala de altura:  $10^4$  m (Holton, 1979).

Assim, pode-se correlacionar esses valores de escala com a meia-vida do elemento traçador (3,82 dias) com a distância média dos continentes à estação de medida, com as velocidades típicas de arrasto do gás em diferentes períodos do ano como também seu grau de mistura vertical e observar que as escalas são, de modo geral, compatíveis.

Tratando a dinâmica do  $\text{Rn}^{222}$  atmosférico no contexto da circulação geral, seu movimento deverá ser considerado como um escoamento médio no tempo onde as médias temporais devem ser feitas para períodos suficientemente longos para que as variações rápidas associadas aos sistemas isolados de tempo (fenômenos locais) sejam removidos e suficientemente curto para mostrar as variações de escalas sinóticas e sazonais.

O balanço de radiação diferencial entre o equador e os pólos altera profundamente a dinâmica de circulação das massas de ar na atmosfera terrestre, de forma que esta atua no sentido de manter o equilíbrio de suas partes. O principal agente responsável pelo padrão de circulação é a própria rotação da Terra. As células de Hadley, Ferrel e polar, as instabilidades no escoamento zonal, o surgimento dos ciclones e anticiclones são alguns dos mecanismos impostos pelo gradiente térmico e pela rotação para a manutenção do atual quadro de distribuição de energia do planeta.

O fato observado nas medidas do radônio atmosférico no continente antártico onde os picos de concentração nos períodos de inverno estão quase sempre associados a aumentos de temperatura local poderá ser visto como uma consequência do transporte de calor e massa

para os pólos, uma vez que o gradiente térmico entre os pólos e o equador é mais intenso no inverno do que em qualquer outro período do ano ou sugere também a grande influência local da produção de gases radioativos nos curtos intervalos de degelo.

Portanto, transporte em larga escala e produção in situ de  $Rn^{222}$  são dois parâmetros que devem ser tratados lado à lado. A passagem de ciclones no estreito de Drake, parece ser o maior indicativo do transporte continental do  $Rn^{222}$  para a região norte da península Antártica devido à influência desses sistemas nas trocas de ar entre regiões com gradientes de temperatura o que representa o objeto de estudo desse trabalho.

## CAPÍTULO 3

### INSTRUMENTAÇÃO

#### - DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE DETECÇÃO DE RADÔNIO ATMOSFÉRICO\*

O sistema de detecção de radônio atmosférico foi projetado para atender medidas em baixos níveis de concentração ambiental de  $\text{Rn}^{222}$ . Possui alta resolução e eficiência compatível com outros sistemas que utilizam a coleta eletrostática para a captura de íons radioativos. Seu projeto foi desenvolvido de modo a facilitar seu transporte e instalação minimizando suas dimensões geométricas. O sistema desempenha, por conseguinte, todos os critérios básicos para seu uso em regiões remotas.

A Fig. 3.1 mostra em diagrama de blocos o esquema simplificado do sistema de detecção de  $\text{Rn}^{222}$  atmosférico como também os componentes do sistema de aquisição de dados e discriminação de pulsos. A figura ilustra a configuração do sistema tal como é disposto nas medidas do  $\text{Rn}^{222}$ .

O sistema de medida é do tipo aberto, ou seja, uma parcela do ar atmosférico percorre um sistema de coleta eletrostática num sentido irreversível onde somente o gás é analisado no seu interior.

O sistema de detecção é constituído de 4 estágios:

1. Sistema de entrada de ar
2. Precipitador eletrostático
3. Eletrônica de pulso
4. Sistema de aquisição de dados

---

\* Descrição do sistema baseado em publicação de Pereira et al. (1984).

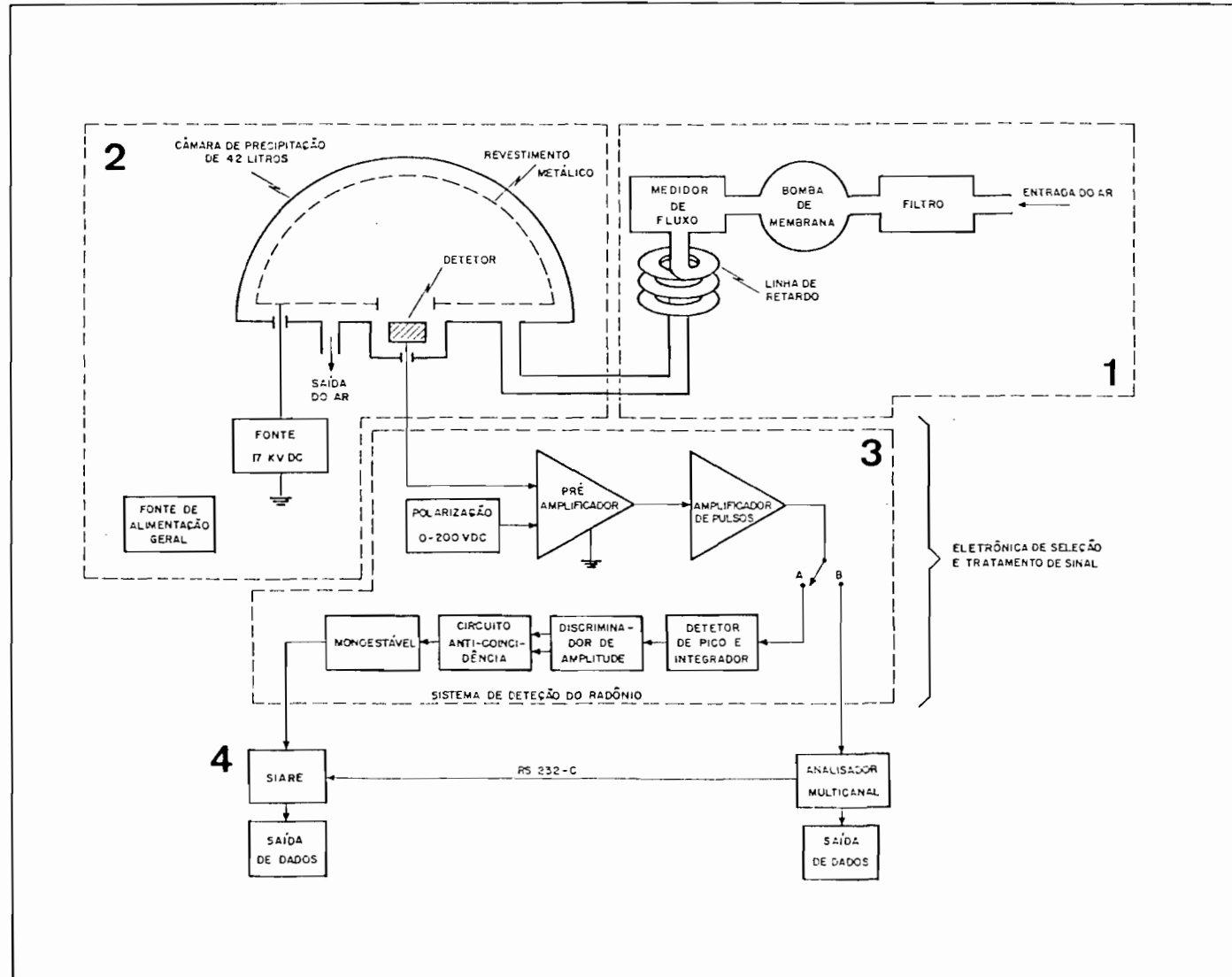


Fig. 3.1 - Esquema que mostra em diagrama de blocos a última versão do sistema de detecção de radônio atmosférico (1989) através da técnica de precipitação eletrostática: 1. sistema de admissão de ar; 2, câmara de precipitação; 3. eletrônica de seleção e tratamento de sinal e 4. Sistema de aquisição de dados.

1. **Sistema de entrada de ar:** É um circuito de bombeamento e circulação de ar atmosférico disposto na entrada de um hemisfério de precipitação. Seus elementos são: um filtro tipo "millipore" de porosidade  $0,47 \mu\text{m}$  disposto no ponto de admissão de ar do sistema e que permite analisar a atividade do depósito ativo de  $\text{Rn}^{222}$  e a composição dos aerossóis na sua superfície pelo emprego de espectrometria alfa e ativação neutrônica; uma bomba de membrana (aspirador - compressor de ar) bombeia ar atmosférico para o interior do hemisfério; um medidor de fluxo que controla a passagem de ar para o interior do hemisfério de precipitação. O fluxo de operação é constante e normalmente igual à  $0,3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ; uma linha de retardo cuja finalidade é aumentar o tempo de resistência do ar no interior do circuito de entrada de ar antes que este penetre no sistema de coleta eletrostática. A linha de retardo se faz necessária desde que se deseje eliminar os elementos de curta meia-vida como, por exemplo,  $\text{Rn}^{220}$  da série radioativa do  $\text{Th}^{232}$  de origem local. Esse isótopo do  $\text{Rn}^{222}$  decai por emissão alfa e tem como produto o  $\text{Po}^{216}$  que por sua vez decai emitindo partícula alfa com energia de  $6,77 \text{ MeV}$ . A Fig. 3.2 mostra um espectro característico obtido pela presença de  $\text{Rn}^{222}$  e  $\text{Rn}^{220}$  no hemisfério de precipitação com a presença da linha de retardo. No espectro energia/atividade radioativa, o pico associado ao  $\text{Po}^{216}$  se situa entre os picos referentes aos isótopos  $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$ , núclídeos usados na determinação da atividade do gás  $\text{Rn}^{222}$ . A faixa de energia no espectro que corresponde a análise dos isótopos, é o intervalo  $4,4 - 8,2 \text{ MeV}$ . Consequentemente o  $\text{Po}^{216}$  por pertencer a essa região espectral contribui para o aumento da contagem total observada naquela região. No entanto, a meia-vida do  $\text{Rn}^{220}$  é curta comparada ao  $\text{Rn}^{222}$ ,  $51,5 \text{ s}$ , muito pequena para que o isótopo possa ser usado como traçador atmosférico nos movimentos das massas de ar, sua origem é puramente local e que poderá ser eliminado da câmara aumentando-se o tempo de resistência da parcela de ar no sistema de entrada de ar.

A linha de retardo tem comprimento calculado em função do fluxo de ar aspirado e o diâmetro do tubo que conduz o ar, de forma, que

todo  $Rn^{222}$  e  $Po^{216}$  ( $T_{1/2}^{Po^{216}} = 0,16$  s) decaiam no sistema de entrada antes mesmo de penetrarem no hemisfério de precipitação eletrostática, assim somente o  $Rn^{222}$  seja analisado.

Somente no caso de um monitoramento "produção local x conteúdo de transporte" a linha de retardo deve se ausentar da disposição do circuito.

**2. Precipitador eletrostático:** - Função Básica: Acelerar íons positivos radialmente em direção à região ativa do detector. Seus principais componentes são um hemisfério de precipitação (câmara de captura de íons positivos) confeccionado em acrílico leitoso, reforçado com fibra de vidro com volume interno de  $0,042$  m<sup>3</sup>. Suas paredes internas são revestidas com tinta condutora onde o potencial de precipitação é aplicado. No interior desse sistema aplica-se uma tensão de precipitação de aproximadamente 17 K Volts para que os íons produzidos in loco sejam acelerados na câmara.

Íons são depositados sobre a superfície do detector, durante o período de permanência da parcela de ar no interior do hemisfério.

O ar que entra na câmara é continuamente renovado por um compressor - aspirador, sua resolução temporal depende apenas do tempo de integração do sistema contador - temporizador. A resolução temporal do instrumento é definida como o menor tempo de integração compatível com o tempo de resposta do sistema a transientes de concentração.

A tensão necessária à precipitação dos íons sobre o detector é aplicada sobre o revestimento interno do hemisfério de precipitação e também em sua base circular de forma que nas proximidades do detector (cuja estrutura externa é mantida sob o potencial de terra) a configuração das linhas de campo elétrico seja aproximadamente radial.

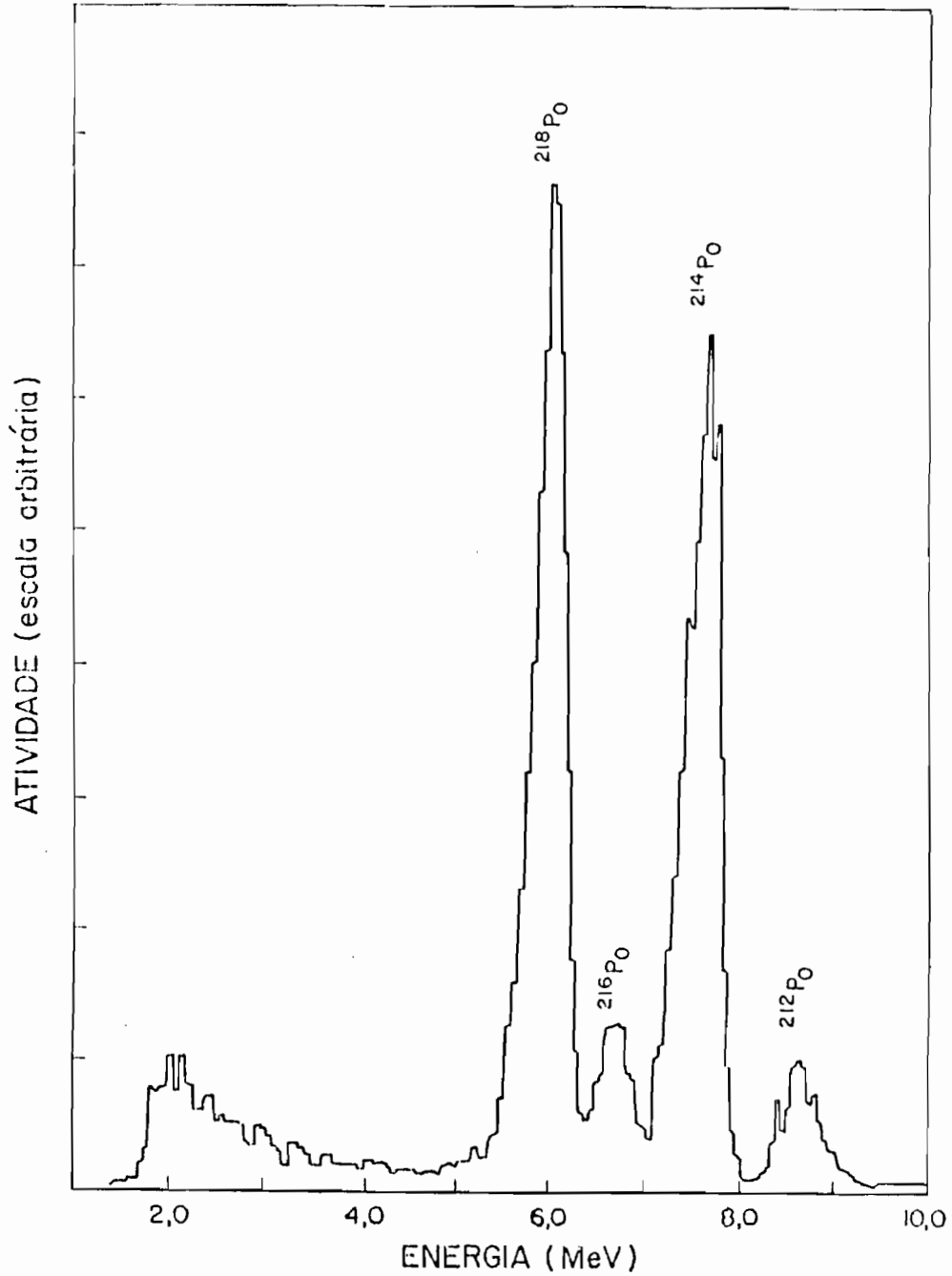


Fig. 3.2 - Espectro de energia dos radioisótopos  $\text{Po}^{218}$ ,  $\text{Po}^{216}$ ,  $\text{Po}^{214}$  e  $\text{Po}^{212}$  medidos no interior da câmara de precipitação eletrostática preenchida com ar atmosférico.

O uso da linha de retardo desintensifica as intensidades dos radioisótopos derivados do  $\text{Rn}^{220}$  de curta meia-vida.



3. **Eletrônica de Pulso:** É a instrumentação necessária para a detecção e tratamento do pulso nuclear. Suas principais partes são: um detector semicondutor que usa a criação de pares elétron - lacuna numa junção de diodo de silício do tipo n-p modelo BR-033-600-100.

Características gerais:

- . O detector é submetido a uma tensão dada pela relação:

$$V_{\text{detector}} = V_{\text{polarização reversa}} - R_{\text{interna}} \cdot i_{\text{medida}} \quad (3.1)$$

- . Possui película superficial de alumínio que cobre somente a região ativa e cuja espessura é de 1850 Å.
- . Gera um pulso elétrico que precisa passar por um pré-amplificador sensível à carga com grande estabilidade e baixíssimo ruído.

A Fig. 3.3 ilustra na parte esquerda superior a seção re- ta de um detector do tipo barreira de superfície, com suas partes defi- nidas como:

- I. Anel isolante com faces superior e inferior metalizadas.
- H. Área sensível do detector revestida com fina camada de ouro ou alumínio
- S. Disco circular de silício
- C. Envoltório metalizado
- M. Conector BNC

A parte esquerda inferior da figura mostra o esquema do "equivalente elétrico" para o detector:

Circuito de polarização do detector

- .  $R_L$ : Resistência interna (28 M $\Omega$ ) .  $C_L$ : Capacitor de desacoplamento
- .  $V_b$ : Tensão de Polarização
- . Det: Detector

O circuito como um todo é o equivalente para o detector (que opera como um gerador de corrente ideal)

- .  $i'$ : Corrente gerada pela criação de pares elétron - lacuna
- .  $R_d$ : Resistência intrínseca associada ao detector
- .  $C_d$ : Capacitância intrínseca associada ao detector

O pré-amplificador sensível à carga tem as funções básicas:

- . Amplificar o pulso criado devido à produção de pares elétron - lacuna
- . Integrar o sinal de entrada permitindo a medida da carga livre gerada no diodo semiconductor
- . Tem sua tensão de saída proporcional à carga de entrada

A fonte de polarização do detector tem sua tensão de saída ajustada para a tensão de operação deste de acordo com suas características próprias.

A fonte de alimentação geral é responsável pela alimentação dos seguintes circuitos:

- . Circuitos do pré-amplificador

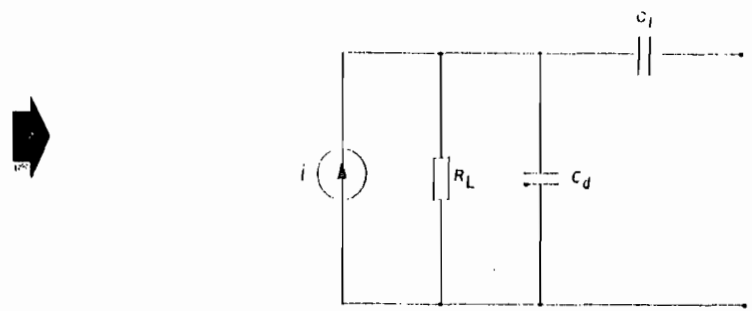
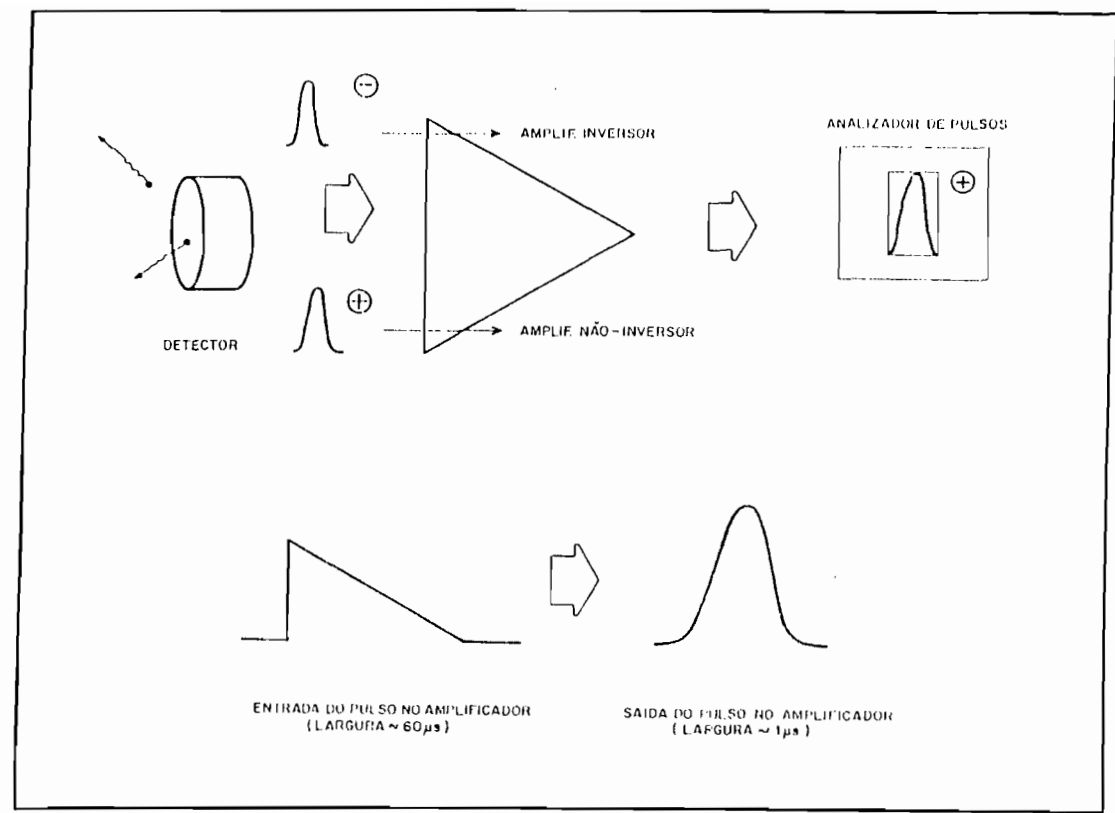
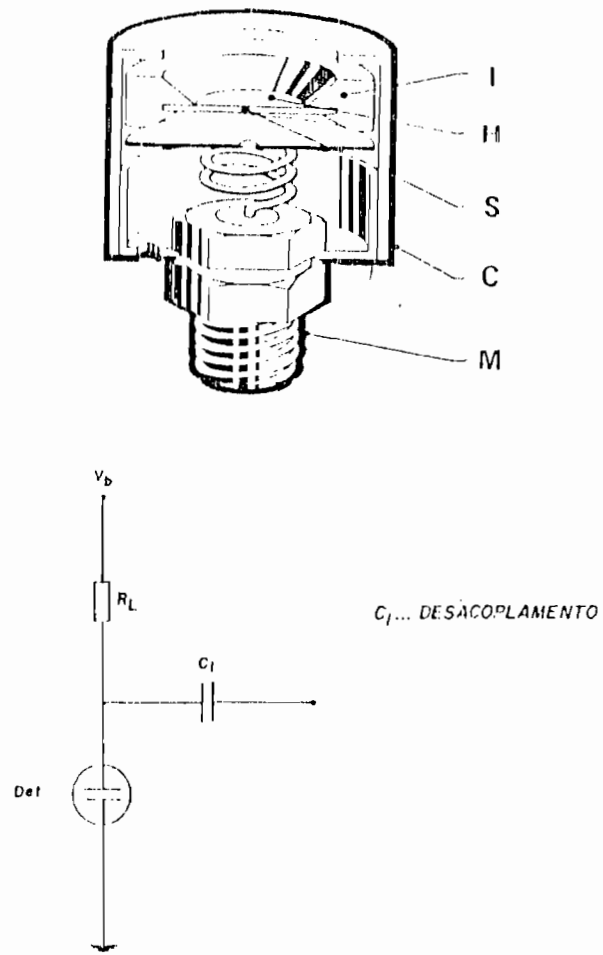


Fig. 3.3 - Produção de pulso e seção reta de um detector semiconductor e seu circuito elétrico equivalente.

- . Circuitos do amplificador (formação e seleção de pulsos)
- . Fonte de polarização
- . Alta tensão (precipitador eletrostático)

Um amplificador de pulso é disposto em série com o pré-amplificador apresentando as seguintes características:

- Amplificar o sinal de entrada, pois o sinal de saída do pré-amplificador tem baixa amplitude, insuficiente para ser submetido a um analisador de pulsos (analisador multicanal).
- Transformar o pulso amplificado num pulso com formato semi-gaussiano para uma melhor relação sinal/ruído.

O amplificador propriamente dito poderá apresentar duas naturezas distintas:

- . Amplificador - inversor
- . Amplificador - não inversor

A escolha dependerá unicamente do tipo de detector (tipo "p" ou tipo "n").

A exigência que torna necessária a utilização do amplificador adequado decorre do fato do analisador de pulsos só aceitar pulsos positivos. Por outro lado, dependendo do tipo de detector e da polarização aplicada, pode-se ter pulsos positivos ou negativos produzidos na entrada do amplificador. Assim um amplificador - inversor será necessário uma vez introduzindo-se pulsos negativos provenientes do detector. Caso contrário usa-se um amplificador - não inversor que mantém a polaridade do pulso, fazendo com que este possa ser analisado e discriminado de acordo com sua amplitude.

Um integrador e detector de pico efetua integração de trem de pulsos, associados à eventuais ruídos espúrios provavelmente originados de fuga de alta tensão ou da rede de energia. O pulso é rejeitado quando a amplitude do sinal ruidoso ultrapassa os níveis de discriminação inferior e superior estabelecidos para a detecção do pulso.

Um discriminador de amplitude seleciona a faixa de energia relativa a emissão de determinados núclídeos. Uma vez que a altura do pulso é proporcional à energia. A faixa de energia de interesse pode ser discriminada. A "janela" de discriminação está associada a faixa de tensão na qual se ajusta o integrador - detector de pico.

Um circuito anti-coincidência evita que o sinal, cuja amplitude é maior que o limite superior do valor de tensão relativa ao nível de discriminação superior, seja considerado e o circuito monoestável, disposto na saída do circuito anti-coincidência, recebe o pulso já selecionado e gera um sinal de forma e largura compatíveis com os circuitos contadores do SIARE (Sistema de Aquisição e Recuperação de Espectro).

A Fig. 3.4 ilustra tridimensionalmente todos os blocos que estão associados ao sistema de detecção de  $\text{Rn}^{222}$  atmosférico.

1. Detector semicondutor do tipo barreira de superfície ( $600 \text{ mm}^2$  de área ativa)
2. Hemisfério (câmara) de precipitação
3. Revestimento metálico interno
4. Fonte de alimentação geral
5. Amplificador
6. Fonte de alta tensão

7. Pré-amplificador
8. Fonte de polarização
9. Acesso à entrada de ar
10. Conector de alta tensão

4. **Sistema de aquisição de dados:** O sinal segue o chaveamento "A" ou "B" da Fig. 3.1. O caminho "A" dá acesso, ao SIARE onde a gravação dos dados é armazenada em fita magnética digital e/ou impressão de contagens (números de eventos) por canal da região selecionada do espectro. O caminho "B" conduz a um analisador multicanal cuja aquisição é um espectro energia-canal relativo ao gás ( $Rn^{222}$ ) analisado no interior do hemisfério de precipitação.

Uma síntese do processo detecção-análise de sinal é mostrado nos diagramas de bloco da Fig. 3.5.

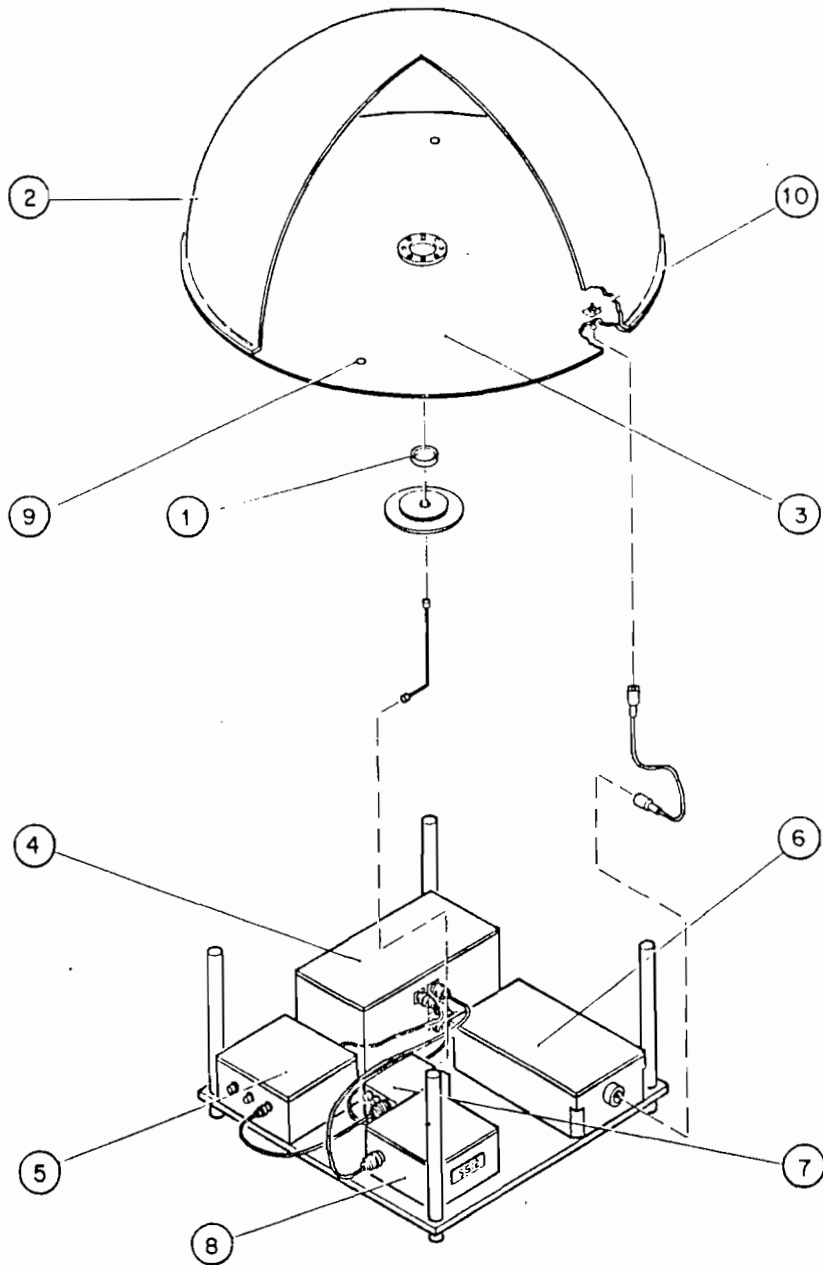
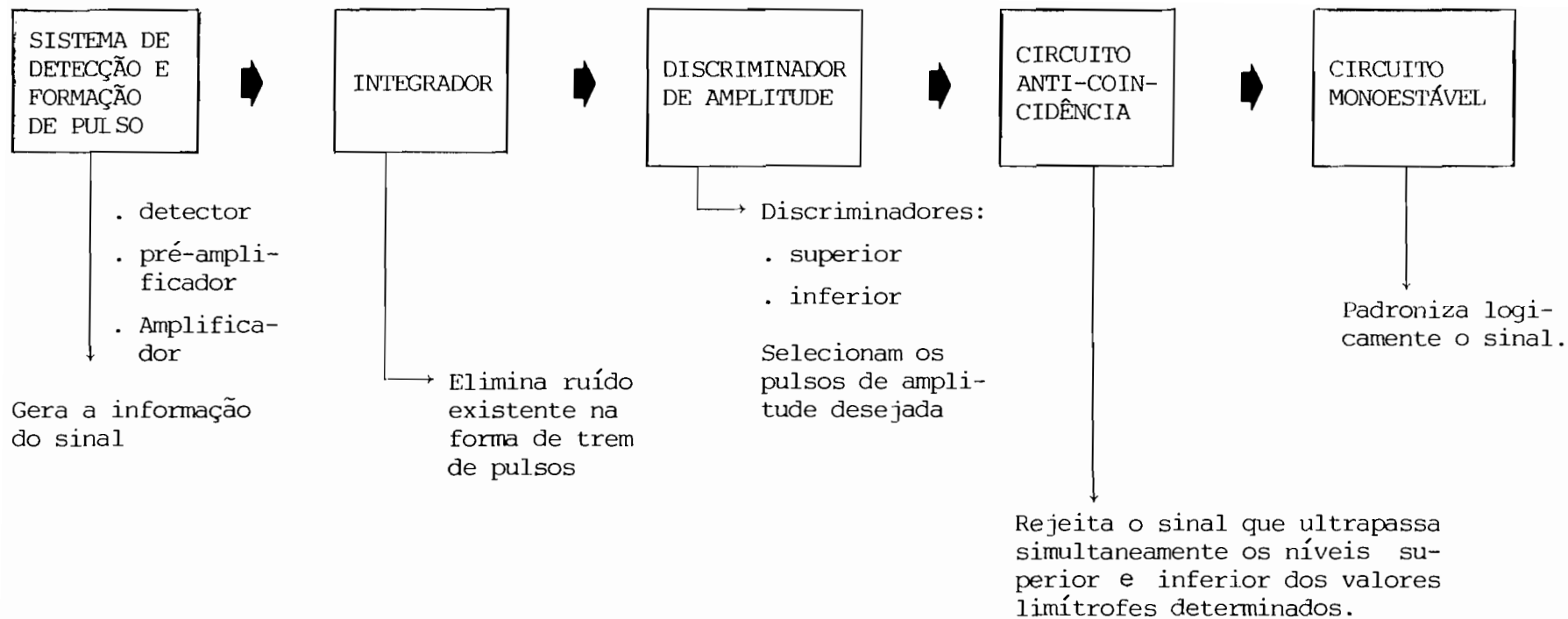


Fig. 3.4 - Sistema de monitoramento de  $Rn^{222}$  atmosférico.



**NOTA:** Uma vez padronizado o pulso, através do circuito monoestável, este entra num contador-temporizador reciclado. Os dados assim são coletados na forma de número de eventos durante cada intervalo de tempo.

Etapa final: Registro dos Dados.

Fig. 3.5 - Sinopse da passagem do sinal através do SCE.



### 3.1 - DESENVOLVIMENTO E APERFEIÇOAMENTO DO SISTEMA DE MEDIDA DE Rn ATMOS-FÉRICO

O aperfeiçoamento do sistema descrito nesta seção representa a elaboração experimental do conteúdo deste trabalho.

Os dois primeiros itens dessa seção descrevem a dependência do rendimento geométrico e da eficiência de coleta eletrostática em função:

- 1 - Forma Geométrica Hemisfério-Detector
- 2 - Configuração do Potencial de Precipitação

#### 3.1.1 - REGIÃO ÚTIL DE PRECIPITAÇÃO

$Rn^{220}$  e  $Rn^{222}$  produzem isótopos de polônio na forma de íons positivos que sob a presença de um campo elétrico aproximadamente radial no interior da câmara migram para o centro geométrico da base do hemisfério onde está posicionado o detector de partículas semiconductor. No entanto, nem todos os íons acelerados no sentido do detector atingem sua área ativa, permanecendo retidos nas bordas laterais. Assim, é criada em função da geometria hemisfério-detector uma região efetiva de captura (RC) dos íons e outra imprópria para sua medida direta, Fig. 3.6.

A existência de uma região imprópria na câmara eletrostática é o resultado do emprego de uma superfície condutora que abrange somente o interior da calota hemisférica. A configuração radial para as linhas de campo no hemisfério é obtida aterrando-se a base da câmara. Assim, todo e qualquer íon produzido na região imprópria permanecerá fora do alcance da região ativa do detector.

A consequência direta é a perda da eficiência de coleta do sistema associada ao "rendimento geométrico". Para uma distribuição uniforme de íons na câmara a razão  $Vol_{RC}/Vol_{hem} = N_{ion}^{RC}/N_{ion}^{hem}$  determina a fração de íons retidos nas bordas, desta forma calculando-se as dimensões da região de captura tem-se:

$$\text{Vol}_{RC} = \text{Vol}_{\text{Tronco de Cone Circular}} + \text{Vol}_{\text{Calota Esférica}}$$

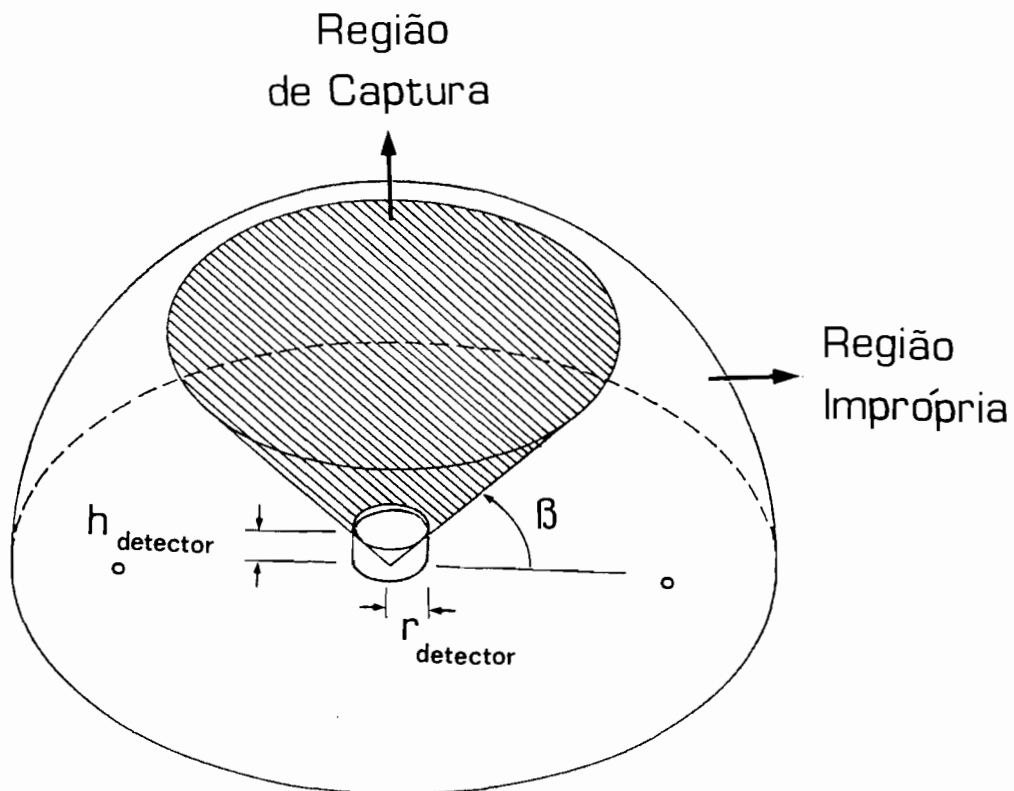


Fig. 3.6 - Posição do detector no interior do hemisfério de precipitação. As regiões de captura e imprópria definem a probabilidade de captura de íons.

$\text{Vol}_{\text{Tronco de Cone Circular}}$  : Região definida pelo tronco de cone onde a base menor é uma área circular cujo raio é o raio do detector e a base maior é a área definida pelo plano de interseção entre a geratriz do cone e o hemisfério de precipitação.

Vol<sub>Calota</sub> : Volume de calota onde o raio da base mede  $R_{\text{hemisfério}} \cdot \cos \beta$ .  
Esférica

$$\text{Vol}_{\text{RC}} = \frac{1}{3} \pi a (R_{\text{det}}^2 + R_{\text{det}} b + b^2) + \frac{1}{3} \pi h^2 (3R_{\text{hem}} - h) \quad (3.2)$$

$h_{\text{det}}$  : Altura do detector

$R_{\text{det}}$  : Raio do detector

$R_{\text{hem}}$  : Raio do hemisfério de precipitação

$$\beta = \text{arc tg } \frac{h_{\text{det}}}{R_{\text{det}}}$$

$$a : R_{\text{hem}} \cdot \text{sen } \beta - h_{\text{det}}$$

$$b : R_{\text{hem}} \cdot \cos \beta$$

$$h : R_{\text{hem}} - h_{\text{det}} - a = R_{\text{hem}} (1 - \text{sen } \beta)$$

$$\begin{aligned} \text{Vol}_{\text{RC}} = \frac{2}{3} \pi R_{\text{hem}}^3 \cdot & \left\{ 1 - \text{sen } \beta + \left( \frac{R_{\text{det}}}{\sqrt{2} \cdot R_{\text{hem}}} \right)^2 \cdot \left( \text{sen } \beta - \frac{h_{\text{det}}}{R_{\text{hem}}} \right) - \right. \\ & - \frac{h_{\text{det}} \cdot R_{\text{det}}}{2 R_{\text{hem}}^2} \cdot \cos \beta + \frac{1}{2 R_{\text{hem}}} \left( R_{\text{det}} \cdot \text{sen } \beta \cos \beta - \right. \\ & \left. \left. - h_{\text{det}} \cdot \cos^2 \beta \right) \right\} \quad (3.3) \end{aligned}$$

$$R_{\text{det}} = 1,38 \text{ cm}$$

$$h_{\text{det}} = 1,00 \text{ cm}$$

$$R_{\text{hem}} = 27 \text{ cm}$$

$$\frac{R_{\text{det}}^2}{R_{\text{hem}}^2} \sim 0,0026 ; \quad \frac{R_{\text{det}} \cdot h_{\text{det}}}{R_{\text{hem}}^2} \sim 0,0019 \quad \therefore$$

$$\frac{\text{Vol}_{\text{RP}}}{\text{Vol}_{\text{hem}}} \sim 1 - \text{sen} \left( \text{arc tg} \frac{h_{\text{det}}}{R_{\text{det}}} \right) \quad \therefore \quad (3.4)$$

$$\frac{\text{Vol}_{\text{RU}}}{\text{Vol}_{\text{hem}}} \sim 0,41 \quad (3.5)$$

Este resultado mostra que apenas 1 cm de elevação do detector sobre o plano da base da câmara introduz uma perda de aproximadamente 60% do volume total interno.

É possível, no entanto, estimar as dimensões da região de perda a partir da razão  $h_{\text{det}}/R_{\text{det}}$  (aproximação de primeira ordem) e otimizá-la para o sistema fazendo com que a eficiência seja máxima tornando a razão  $h_{\text{det}}/R_{\text{det}}$  tão pequena quanto se deseje.

### 3.1.2 - POTENCIAL ELETROSTÁTICO NO INTERIOR DO HEMISFÉRIO DE PRECIPITAÇÃO

No item anterior mostrou-se como a geometria do sistema de captura e detecção dos isótopos de polônio é afetada pela disposição interna do detector mantendo-se eletrizada apenas o revestimento interno do hemisfério.

No entanto, não é apenas um problema de configuração que limita as regiões de captura e imprópria para a captura.

Íons radioativos produzidos no interior da câmara hemisférica ao serem acelerados pela diferença de potencial interna seguem trajetórias definidas pela configuração das linhas de campo elétrico presentes na câmara. As superfícies equipotenciais perpendiculares a estas linhas de campo determinam, além do valor absoluto do potencial em cada ponto no interior da câmara, a trajetória percorrida pelos íons desde o seu ponto de produção (num ponto arbitrário no hemisfério) até sua colisão com a superfície ativa do detector.

Isto implica que adotando-se uma configuração adequada para o campo elétrico no interior da câmara, íons produzidos fora da região prevista para sua captura poderão ser detectados aumentando-se sensivelmente o rendimento geométrico do sistema.

Visando a melhoria da eficiência de captura dos íons na câmara é aplicado um potencial de precipitação em toda área plana circular ao redor do detector na base do hemisfério.

A obtenção de uma forma funcional para o potencial interno torna-se relevante também porque algumas das propriedades químicas e físicas dos íons envolvidos no processo de captura estão diretamente ligadas ao potencial aplicado.

O tempo e a eficiência de coleta de íons, a frequência de colisão com átomos e moléculas neutras, a energia eletrostática armazenada no campo elétrico interno e a mobilidade só podem ser determinadas conhecendo-se o potencial interno. Isto torna possível um estudo mais apurado das propriedades difusivas dos íons de polônio no interior da câmara, dos processos de recombinação dos íons e da produção e aniquilação de "clusters" nos experimentos quando vapor d'água satura o ambiente sendo submetidos a campos elétricos de grande intensidade empregados na precipitação eletrostática.

A câmara de precipitação tem sua base circular (disco com orifício central onde se situa o detector) e uma estrutura hemisférica ambos submetidos ao mesmo potencial ( $+V_0$ ). A linearidade das equações que descrevem o potencial junto à simetria do conjunto (cilíndrica para o disco e esférica para o hemisfério) permite sobrepor as duas contribuições na forma:

$$\Phi_{\text{câmara}} = \Phi^{(1)}(r, \theta) + \Phi^{(2)}(\rho, Z) \quad (3.6)$$

Solução por partes de  $\Phi_{\text{câmara}}$

### 3.1.3 - POTENCIAL DA CASCA HEMISFÉRICA

- Solução geral da equação de Laplace em coordenadas esféricas.

$$\Phi^{(1)}(r, \theta) = \sum_{\ell=0}^{\infty} \left[ A_{\ell} r^{\ell} + B_{\ell} \cdot r^{-(\ell+1)} \right] P_{\ell}(\cos \theta) \quad (3.7)$$

(Eliott, 1966).

$A_\ell$  e  $B_\ell$  são coeficientes determinados pelas condições de contorno do problema e  $P_\ell(\cos \theta)$  os polinômios de Legendre cuja forma compactada é a representação da fórmula de Rodrigues:

$$P_\ell(\xi) = \frac{1}{2^\ell \ell!} \frac{d^\ell}{d\xi^\ell} (\xi^2 - 1)^\ell \quad \text{com } \xi = \cos \theta$$

Condições de contorno:

O hemisfério de precipitação tem simetria azimutal não havendo cargas em  $r = 0$  (centro geométrico da base de sua estrutura), assim o potencial assumirá um valor finito naquele ponto e consequentemente o coeficiente  $B_\ell = 0 \quad \forall \ell$ .

O potencial na superfície, interna da casca hemisférica, definido pelo comprimento " $R_{\text{hem}}$ " tem a forma:

$$\Phi(R, \theta) = V(\theta) = \begin{cases} + V_0, & 0 \leq \theta \leq \frac{\pi}{2} \\ 0, & \frac{\pi}{2} < \theta \leq \pi \end{cases} \quad (3.8)$$

Assim,

$$V(\theta) = \sum_{\ell=0}^{\infty} A_\ell R^\ell P_\ell(\cos \theta) \quad (3.9)$$

O potencial é uma série de Legendre e os coeficientes  $A_\ell$  são funções integrais na forma

$$A_\ell = \frac{2\ell + 1}{2R^\ell} \cdot \int_0^{\pi/2} V(\theta) P_\ell(\cos \theta) \sin \theta \cdot d\theta . \quad (3.10)$$

Os limites de integração são impostos pela definição do potencial como descrito acima.

A integral calculada para os primeiros coeficientes  $A_\ell$ :

$$A_0 = \frac{1}{2} V_0$$

$$A_1 = \frac{1}{2} \cdot \frac{3V_0}{2R_{\text{hem}}}$$

$$A_2 = A_4 = A_6 = A_8 = \dots = A_n = 0 , \quad \forall n_{(\text{par})} \neq 0$$

$$A_3 = \frac{1}{2} \cdot \frac{7}{8} \frac{V_0}{R_{\text{hem}}^3} , \quad A_5 = \frac{1}{2} \cdot \frac{11}{16} \cdot \frac{V_0}{R_{\text{hem}}^5} , \dots$$

O potencial eletrostático para qualquer ponto no interior da câmara de precipitação devido a casca hemisférica será:

$$\phi^{(1)}(r, \theta) = \frac{V_0}{2} \left\{ 1 + \frac{3}{2} \cdot \left( \frac{r}{R_{\text{hem}}} \right) P_1(\cos \theta) - \frac{7}{8} \left( \frac{r}{R_{\text{hem}}} \right)^3 P_3(\cos \theta) + \dots \right\}$$



$$+ \frac{11}{16} \cdot \left( \frac{r}{R_{\text{hem}}} \right)^5 \left. P_5 (\cos \theta) + \dots \right\}^{(1)} \quad (3.11)$$

onde:

$$\begin{cases} 0 \leq r \leq R_{\text{hem}} = 27 \text{ cm} \\ 0 \leq \theta \leq \frac{\pi}{2} \end{cases}$$

#### 3.1.4 - POTENCIAL DA BASE CIRCULAR DO HEMISFÉRIO

- Solução geral da equação de Laplace em coordenadas cilíndricas.

$R_{\text{min}}$ : Raio do orifício onde é colocado o detector.

$R_{\text{máx}}$ : Raio da base do hemisfério.

$\Phi^{(2)}(\rho, z)$  = Potencial de disco ( $\rho = R_{\text{máx}}$ ) - Potencial de disco

com ( $\rho = R_{\text{min}}$ )

$\rho$ : Coordenada cilíndrica radial

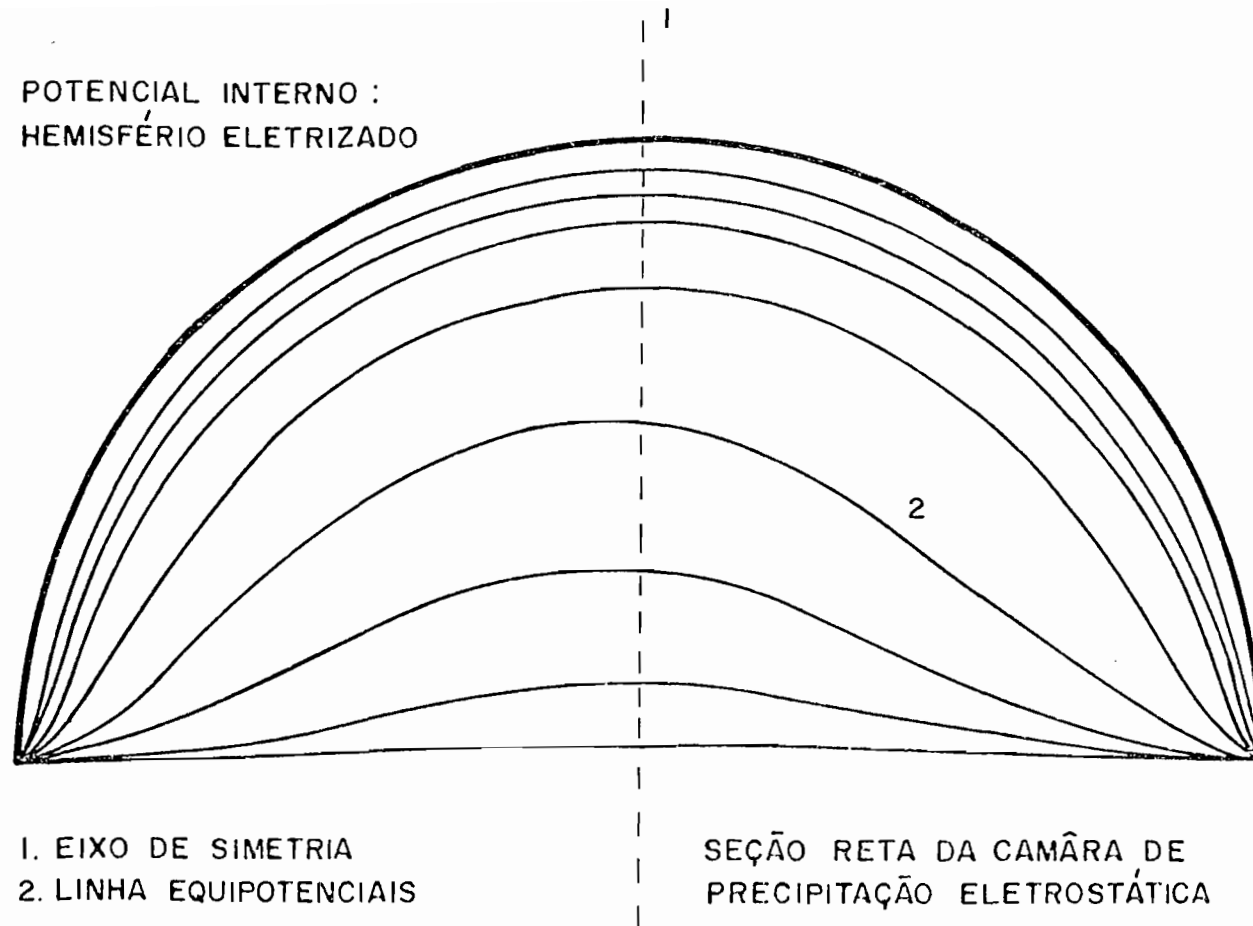
$z$ : Coordenada vertical

Cálculo para o disco com raio  $R_{\text{máx}}$

---

(1) A configuração das equipotenciais é mostrada na Fig. 3.7.

POTENCIAL INTERNO :  
HEMISFÉRIO ELETRIZADO



1. EIXO DE SIMETRIA  
2. LINHA EQUIPOTENCIAIS

SEÇÃO RETA DA CAMÃRA DE  
PRECIPITAÇÃO ELETROSTÁTICA

Fig. 3.7 - Solução da equação de Laplace para o potencial de precipitação associado à geometria hemisférica.

$$\text{Sol Geral: } \Phi^{(2)}(\rho, z) = \sum_{m=1}^{\infty} J_0(\Gamma_{om} \rho) B_m \cdot \cosh(\Gamma_{om} z) \quad (3.12)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} - \text{Simetria azimutal} \\ - J_0(\Gamma_{om} \rho): \text{Função de Bessel de primeira espécie de ordem zero} \end{array} \right.$$

definição do potencial para o problema:

$$\Phi(\rho, 0) = \begin{cases} V_0, & 0 \leq \rho < R_{\text{máx}} \\ 0, & R_{\text{máx}} \leq \rho < \infty \end{cases}$$

assim:

$$\int_0^{R_{\text{máx}}} V_0 \rho J_0(\Gamma_{om} \rho) d\rho = \int_0^{R_{\text{máx}}} \rho J_0^2(\Gamma_{om} \rho) B_m d\rho \quad (3.13)$$

Usando-se as relações:

$$\left\{ \begin{array}{l} \int (\Gamma\xi)^{n+1} \cdot J_n(\Gamma\xi) d(\Gamma\xi) = (\Gamma\xi)^{n+1} J_{n+1}(\Gamma\xi) \\ e \\ \int \xi J_n^2(\Gamma\xi) d\xi = \frac{\xi^2}{2} \left[ J_n'^2(\Gamma\xi) + \left( 1 + \frac{n^2}{\Gamma\xi^2} \right) J_n^2(\Gamma\xi) \right] \end{array} \right. \quad (3.14)$$

$$\frac{V_o}{\Gamma_{om}^2} \cdot \int_0^{R_{m\acute{a}x}} (\rho \Gamma_{om}) \cdot J_o(\Gamma_{om} \rho) d(\Gamma_{om} \rho) = B_m \cdot \int_0^{R_{m\acute{a}x}} \rho J_o^2(\Gamma_{om} \rho) d\rho \dots$$

$$\frac{V_o}{\Gamma_{om}^2} \cdot \left\{ (\rho \Gamma_{om}) J_1(\Gamma_{om} \rho) \Big|_0^{R_{m\acute{a}x}} \right\} = \frac{1}{2} \cdot B_m \cdot \left\{ \rho^2 \cdot \right.$$

$$\left. \cdot \left[ J_o'^2(\Gamma_{om} \xi) + J_o^2(\Gamma_{om} \xi) \right] \Big|_0^{R_{m\acute{a}x}} \right\} \quad (3.15)$$

Uma vez que  $\phi_{(\rho, 0)}^{(2)} = 0$  em  $\rho = R_{m\acute{a}x}$  os valores possíveis para as raízes  $\Gamma_{om}$  são tais que  $J_o(\Gamma_{om} R_{m\acute{a}x}) = 0$ . Lembrando também que  $J_o'(\Gamma\xi) = -J_1(\Gamma\xi)$ . Os valores de  $\Gamma_{om}$  são mostrados na Tabela 3.1.

$$\frac{V_o}{\Gamma_{om}} \cdot R_{m\acute{a}x} J_1(\Gamma_{om} R_{m\acute{a}x}) = \frac{1}{2} B_m R_{m\acute{a}x}^2 J_1^2(\Gamma_{om} R_{m\acute{a}x}) \dots \quad (3.16)$$

$$B_m = \frac{2V_o}{\Gamma_{om} \cdot R_{m\acute{a}x} \cdot J_1(\Gamma_{om} R_{m\acute{a}x})} \quad (3.17)$$

$$\phi_{m\acute{a}x}^{(2)}(\rho, z) = \frac{2V_o}{R_{m\acute{a}x}} \cdot \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_o(\Gamma_{om} \rho) \cosh \Gamma_{om} z}{\Gamma_{om} J_1(\Gamma_{om} R_{m\acute{a}x})} \quad (3.18)$$

analogamente, para o disco de raio =  $R_{min}$ :

$$\phi_{\min}^{(2)}(\rho, z) = \frac{2V_o}{R_{\min}} \cdot \sum_{k=1}^{\infty} \frac{J_o(\Gamma_{ok} \rho) \cdot \cosh \Gamma_{ok} z}{\Gamma_{ok} \cdot J_1(\Gamma_{ok} R_{\min})} \quad (3.19)$$

Assim,

$$\phi_{\text{disco com orifício}}^{\text{Total}}(\rho, z) = \phi_{\max}^{(2)}(\rho, z) - \phi_{\min}^{(2)}(\rho, z) \quad (3.20)$$

$$\phi_{\text{disco com orifício}}^{\text{Total}}(\rho, z) = 2V_o \cdot \left\{ \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_o(\Gamma_{om} \rho) \cdot \cosh \Gamma_{om} z}{\Gamma_{om} R_{\max} \cdot J_1(\Gamma_{om} R_{\max})} - \sum_{k=1}^{\infty} \frac{J_o(\Gamma_{ok} \rho) \cdot \cosh \Gamma_{ok} z}{\Gamma_{ok} R_{\min} \cdot J_1(\Gamma_{ok} R_{\min})} \right\} \quad (3.21)$$

$$\text{Raízes: } J_o(\Gamma_{om} R_{\max}) = 0 \quad J_o(\Gamma_{ok} R_{\min}) = 0 \quad (3.22)$$

TABELA 3.1 - VALORES DE  $\Gamma_{om}$

| m | $\Gamma_{om}$                          | k | $\Gamma_{ok}$                          |
|---|--|---|--|
| 1 | $\Gamma_{01} = \frac{2,405}{R_{\max}}$ | 1 | $\Gamma_{01} = \frac{2,405}{R_{\min}}$ |
| 2 | $\Gamma_{02} = \frac{5,520}{R_{\max}}$ | 2 | $\Gamma_{02} = \frac{5,520}{R_{\min}}$ |
| 3 | $\Gamma_{03} = \frac{8,654}{R_{\max}}$ | 3 | $\Gamma_{03} = \frac{8,654}{R_{\min}}$ |
| . | .                                      | . | .                                      |
| . | .                                      | . | .                                      |
| . | .                                      | . | .                                      |

O potencial total também poderá ser escrito na seguinte forma:

$$\Phi_{\text{Total}}^{\text{disco com orifício}} = (\rho, Z) = 2V_0 \cdot \quad (2)$$

$$\sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_0\left(k_{om} \frac{\rho}{R_{\text{máx}}}\right) \cdot \cosh\left(k_{om} \frac{Z}{R_{\text{máx}}}\right) - J_0\left(k_{om} \cdot \frac{\rho}{R_{\text{min}}}\right) \cdot \cosh\left(k_{om} \frac{Z}{R_{\text{min}}}\right)}{k_{om} \cdot J_1(k_{om})}$$

(3.23)

$k_{om}$  são as raízes de  $J_0(k_{om}) = 0$ , ou seja:

$$k_{01} = 2,405$$

$$k_{02} = 5,520$$

$$k_{03} = 8,654$$

·  
·  
·

$$R_{\text{máx}} = 27 \text{ cm} \quad R_{\text{min}} = 1,4 \text{ cm} \quad \rho \text{ e } Z \text{ as variáveis}$$

Os demais coeficientes dos termos da expansão são mostrados na Tabela 3.2.

(2) As contribuições somadas das Equações 3.11 e 3.23 são mostradas através das equipotenciais da Fig. 3.8.

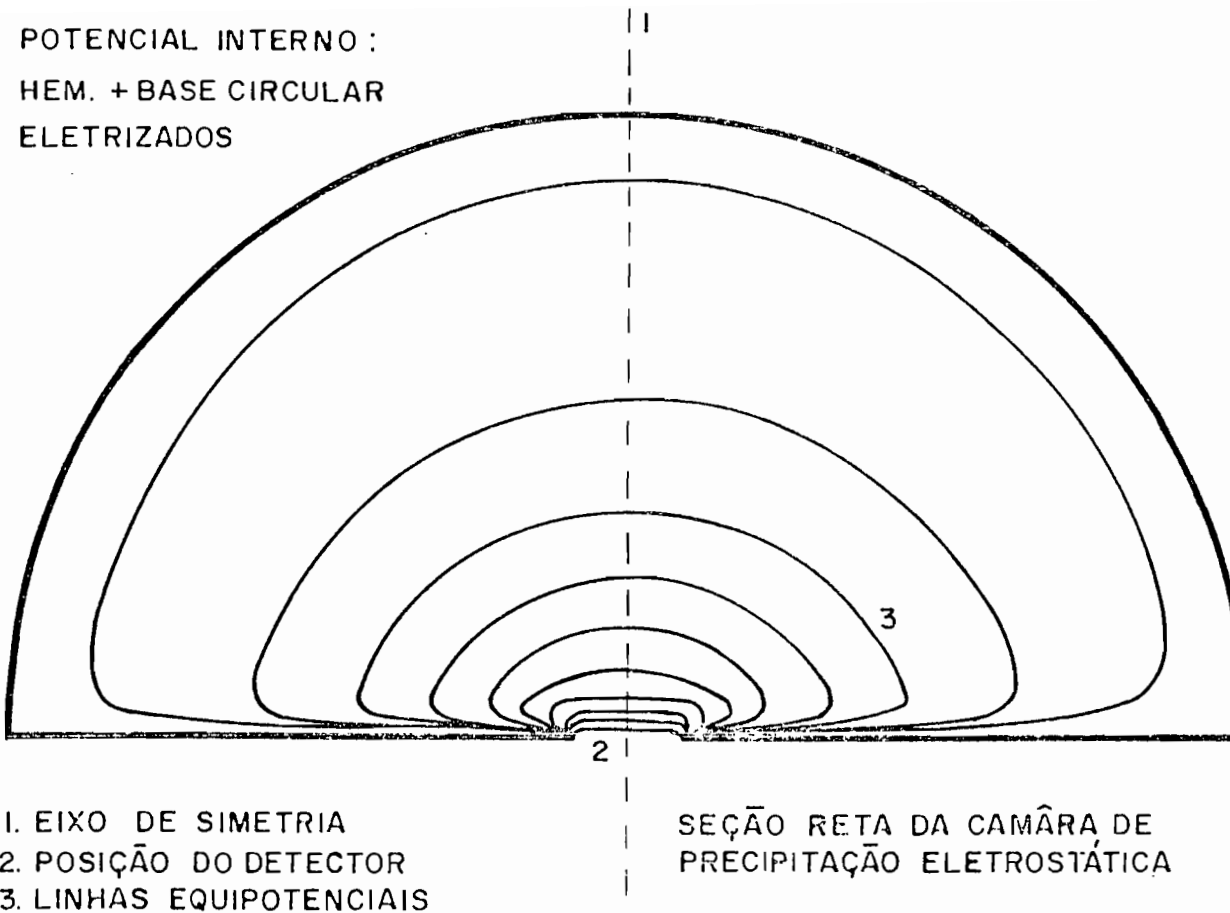


Fig. 3.8 - Soma algébrica das soluções das equações de Laplace para o hemisfério + disco circular da base submetidos ao mesmo potencial  $+V_0$ .

TABELA 3.2 - COEFICIENTES CONSTANTES DA EQUAÇÃO 3.23

| m | $J_1(k_{om}) \cdot k_{om}$ | Raízes de $J_0(k_{om}) = 0$ | $\frac{k_{om}}{R_{m\acute{a}x}}$ | $\frac{k_{om}}{R_{m\acute{m}n}}$ | $J_1(k_{om})$ |
|---|----------------------------|-----------------------------|----------------------------------|----------------------------------|---------------|
| 1 | 1,248                      | 2,405                       | 0,089                            | 1,718                            | 0,519         |
| 2 | -1,879                     | 5,520                       | 0,204                            | 3,943                            | -0,340        |
| 3 | 2,350                      | 8,654                       | 0,321                            | 6,181                            | 0,272         |
| 4 | -2,742                     | 11,792                      | 0,437                            | 8,423                            | -0,233        |
| 5 | 3,083                      | 14,931                      | 0,553                            | 10,665                           | 0,207         |
| 6 | -3,392                     | 18,071                      | 0,669                            | 12,908                           | -0,188        |
| 7 | 3,676                      | 21,212                      | 0,786                            | 15,151                           | 0,173         |
| . |                            |                             |                                  |                                  |               |
| . |                            |                             |                                  |                                  |               |
| . |                            |                             |                                  |                                  |               |

onde para cada valor de  $0 \leq Z \leq R_{hem}$ ,  $\rho$  variará no intervalo:

$$0 \leq \rho \leq (R_{hem}^2 - Z^2)^{\frac{1}{2}}$$

### 3.1.5 - ANÁLISE DO DECAIMENTO DE RADIOISÓTOPOS NO INTERIOR DA CÂMARA DE PRECIPITAÇÃO ELETROSTÁTICA

As Figs. 3.9 e 3.10 mostram o perfil de decaimento radioativo de uma parcela de ar atmosférico no interior da câmara de precipitação com o sistema de coleta eletrostática operando no modo estático, ou seja, a parcela de ar permanece na câmara sem que haja circulação desta para o meio exterior. Nesta análise os quatro isótopos do Po são medidos simultaneamente dentro da mesma janela do contador de pulsos.

A primeira figura ilustra a produção dos nuclídeos  $Po^{218}$ ,  $Po^{214}$  (produtos de decaimento do  $Rn^{222}$ ) e  $Po^{212}$  (produto de decaimento do  $Rn^{220}$ ) através das intensidades observadas no espectro alfa de decaimento dos isótopos.



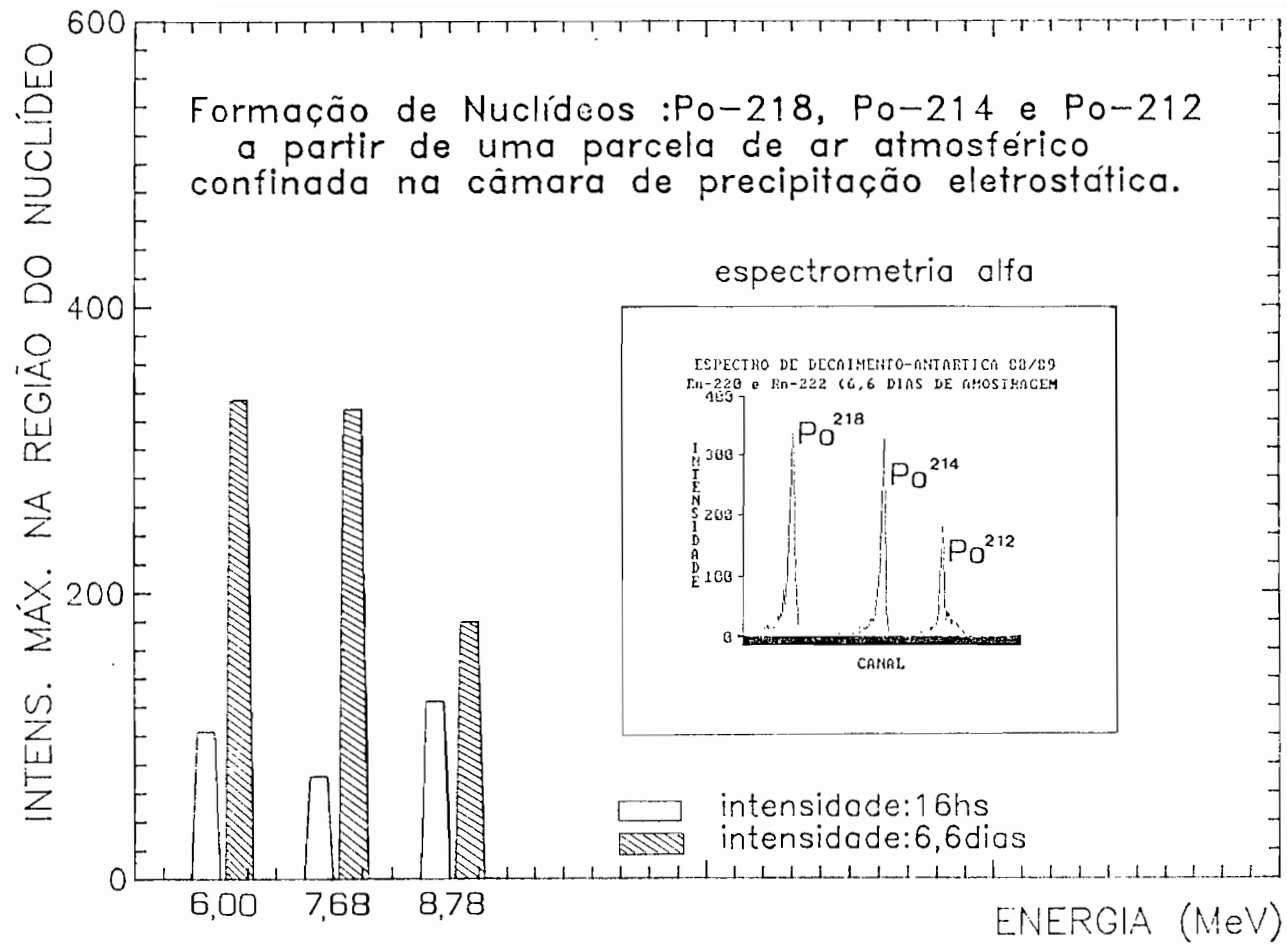


Fig. 3.9 - Espectro de intensidade relativa para os nuclídeos formados no interior da câmara operando no "modo estático".

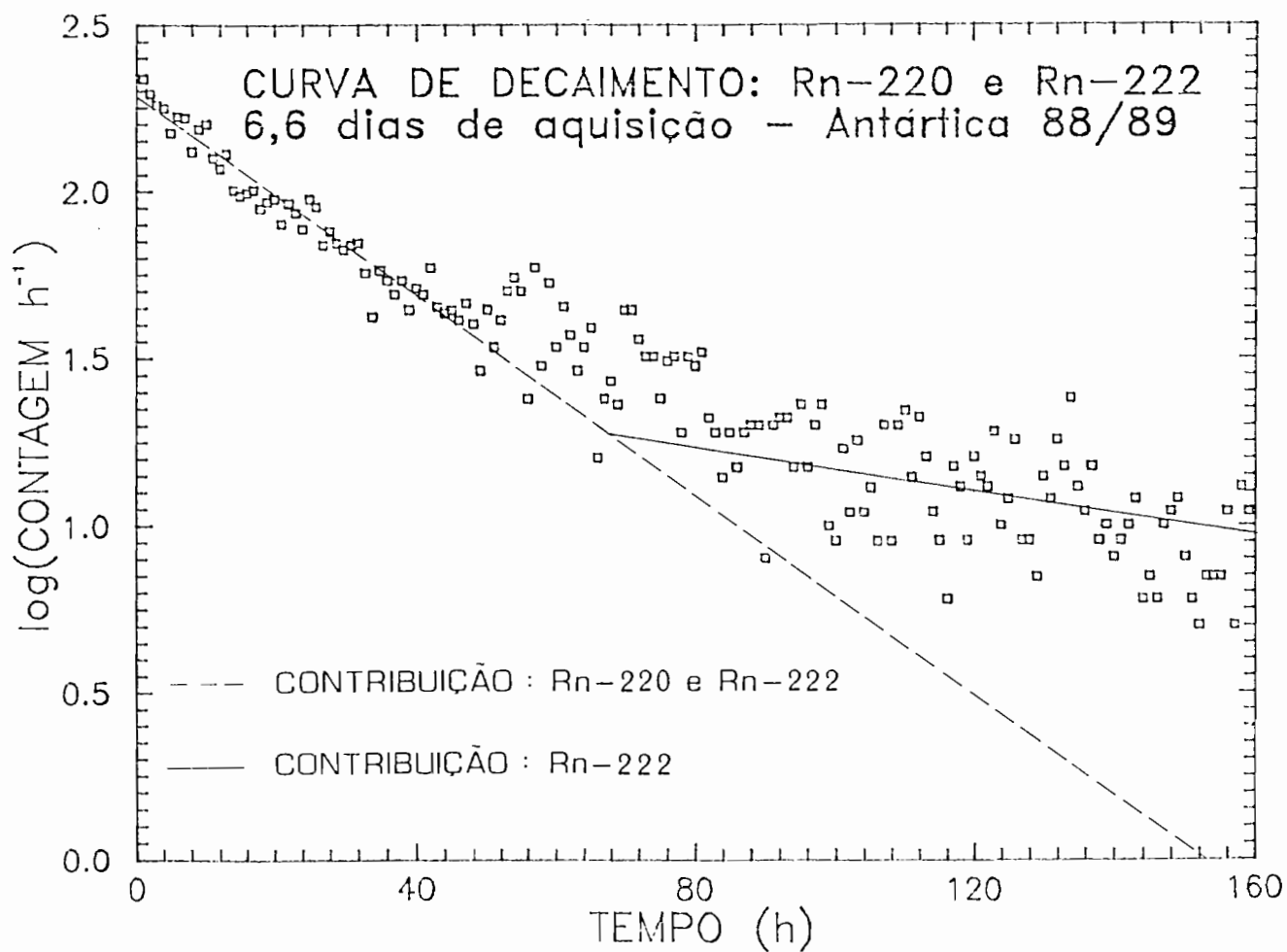


Fig. 3.10 - Distribuição de contagens para o decaimento do  $\text{Rn}^{220}$  e  $\text{Rn}^{222}$  no interior da câmara mostrando as regiões de influência dos gases de curta e longa meias-vidas.

Os histogramas mostram as intensidades relativas após 16 hs e 6,6 dias de análise do ar atmosférico na câmara.

O espectro de decaimento para 6,6 dias consecutivos não apresenta o pico relativo ao  $\text{Po}^{216}$  cuja energia de emissão (6,77 MeV) e se posiciona entre as energias dos isótopos  $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$ . A ausência do  $\text{Po}^{216}$  se dá devido sua curta meia-vida (0,16 s) na câmara. Mesmo sendo depositado na superfície ativa do detector, sua desintegração se processa mais rapidamente que o tempo necessário à estabilização do sistema eletrônico de detecção e tratamento do sinal produzido pela partícula alfa de seu decaimento.

A curva de decaimento conjugada para os isótopos  $\text{Rn}^{220}$  e  $\text{Rn}^{222}$  na forma de contagens (número de eventos) por tempo (hora) mostra a contribuição dos dois gases no intervalo de tempo total da amostragem da parcela de ar. A curva pontilhada mostra a contribuição dos isótopos  $\text{Rn}^{220}$  e  $\text{Rn}^{222}$  nas primeiras horas de análise. Os histogramas para as 16 hs iniciais indicam que a contribuição do  $\text{Po}^{212}$  (8,78 MeV) e consequentemente do  $\text{Rn}^{220}$  nas primeiras horas é relevante comparada com a contribuição do  $\text{Rn}^{222}$  (radioisótopo cuja meia-vida é de 3,82 dias). A configuração torna-se contrária para os intervalos de tempo maiores onde as intensidades dos isótopos  $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$  crescem progressivamente.

A curva cheia mostra a região onde a contribuição do  $\text{Rn}^{222}$  é consideravelmente maior sendo o  $\text{Rn}^{220}$  um radioisótopo de curta meia-vida. A comprovação experimental de que a reta cheia (curva de interpolação das contagens para intervalos maiores que 70 hs) representa a medida real do  $\text{Rn}^{222}$  na câmara é obtida através da determinação do coeficiente angular da curva.

A atividade radioativa no sistema fechado é determinada pela relação:

$$\log A^{\text{Rn}^{222}}(t) = \log A^{\text{Rn}^{222}}(t_0) - 0,434 \lambda_{\text{Rn}^{222}}(t - t_0) \quad (3.24)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_{\text{Rn}^{222}} = \frac{\log A^{\text{Rn}^{222}}(t_0) - \log A^{\text{Rn}^{222}}(t)}{0,434 (t - t_0)} \\ \lambda_{\text{Rn}^{222}} = \frac{0,693}{T_{\frac{1}{2}}^{\text{Rn}^{222}}} \end{array} \right. \quad (3.25)$$

- Para dois intervalos de tempo arbitrários:

$$T_{\frac{1}{2}}^{\text{Rn}^{222}} \sim 0,301 \cdot \frac{t_k - t_j}{\log A_j - \log A_k} \quad (3.26)$$

como contagem ( $C_k$ ) e atividade ( $A_k$ ) obedecem uma relação linear, tem-se:

$$T_{\frac{1}{2}}^{\text{Rn}^{222}} \sim 0,301 \cdot \frac{t_k - t_j}{\log C_j - \log C_k} \quad \therefore \quad T_{\frac{1}{2}}^{\text{Rn}^{222}} \Big|_{\text{experimental}} \sim 3,763 \text{ dias}$$

A diferença entre o valor encontrado (3,76 dias) e o valor esperado (3,82 dias) deve-se à presença residual do isótopo  $\text{Po}^{212}$  na superfície do detector.

Na série radioativa do  $\text{Th}^{232}$ , o  $\text{Pb}^{212}$  radionuclídeo que decai emitindo partícula  $\beta^-$  é criado após o  $\text{Po}^{216}$  mas anteriormente ao  $\text{Po}^{212}$ , sua meia-vida é de 10,6 h e portanto a produção de  $\text{Po}^{212}$  no sistema fechado é sistemática até que todo  $\text{Pb}^{212}$  decaia completamente na câmara.

### 3.2 - ESTIMATIVA DA TAXA DE CONTAGEM ASSOCIADA À PARTÍCULAS ALFA PRODUZIDAS PELO DECAIMENTO DO $\text{Rn}^{222}$ NO INTERIOR DO HEMISFÉRIO DE PRECIPITAÇÃO ELETROSTÁTICA

O alcance médio atingido pelas partículas alfa geradas na câmara pelo decaimento do  $\text{Rn}^{222}$  depende da densidade atmosférica "in loco" e das energias envolvidas no processo de emissão nuclear. Grande parte da energia cinética dessas partículas é perdida ao longo de seu percurso devido a formação de pares de íons no meio produzidos através de colisões inelásticas da partícula com moléculas e átomos livres de forma que a ionização específica é função do número de moléculas passíveis às colisões como também da maneira pela qual a colisão partícula-molécula neutra se processa. Em condições ideais em laboratório numa atmosfera mantida à 15°C sob uma pressão de 760 mm Hg a ionização específica produzida no percurso de uma partícula alfa aumenta monotonicamente com o aumento de sua distância ao núcleo fonte, apresenta aumento rápido próximo ao valor máximo de produção de pares de íons e decai rapidamente após atingir o valor de pico. Finalmente elétrons são capturados pelas partículas alfa formando átomos de hélio neutralizados no meio.

Valores característicos nas condições ambientes citadas acima mostram o alcance das partículas produzidas pelos nuclídeos:  $\text{Rn}^{222}$ ,  $\text{Po}^{218}$  e  $\text{Po}^{214}$ , como ilustra a Tabela 3.3.

TABELA 3.3 - COMPRIMENTO DO PERCURSO CALCULADO EM  
FUNÇÃO DA PERDA DE ENERGIA

| NUCLÍDEOS         | ENERGIA DE EMISSÃO<br>(MeV) | PERCURSO MÉDIO NO AR<br>(cm) |
|-------------------|-----------------------------|------------------------------|
| Rn <sup>222</sup> | 5,4861 ± 0,0070             | 4,051 ± 0,008                |
| Po <sup>218</sup> | 5,9982 ± 0,0008             | 4,657 ± 0,008                |
| Po <sup>214</sup> | 7,6804 ± 0,0009             | 6,907 ± 0,006                |

Levando-se em consideração as dimensões do hemisfério de precipitação cujo raio dista 27 cm do centro geométrico de sua base circular conclui-se que apenas uma fração de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  existentes no interior da câmara poderão ser detectados através de suas próprias partículas alfa emitidas.

Basicamente dois fatores contribuem para a queda de eficiência no sistema de coleta utilizando-se o gás como padrão de medida:

- I. Somente poderão atingir o detector aquelas partículas emitidas radialmente, no sentido do detector, no interior do ângulo sólido subentendido pela área ativa do mesmo.
- II. Somente as partículas emitidas numa fina película de ar próxima ao detector poderão ser detectadas com energias cujos valores correspondam ao valor aproximado da energia de emissão (característica do nuclídeo) sem que as perdas no meio sejam relevantes.

Essas duas limitações, a primeira imposta pela geometria do sistema de precipitação eletrostática e a segunda pela transferência de energia partícula alfa-molécula neutra determinam regiões de maiores e menores probabilidades de detecção das partículas alfa produzidas pelo  $\text{Rn}^{222}$  na câmara.

Assim, para uma estimativa da fração de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  existentes no interior do hemisfério cujas partículas alfa podem ser contadas com valor de energia típico desses nuclídeos é necessário levar em consideração a proximidade da emissão em relação ao detector e o fator geométrico definido em função das dimensões da câmara de precipitação e do detector utilizado.

O primeiro passo é estimar a proximidade máxima, a partir do detector, que as emissões devem ser efetuadas para que a perda de energia das partículas alfa seja suficientemente pequena em relação ao valor inicial da energia de emissão.

### 3.2.1-DETERMINAÇÃO DO VALOR LIMITE PARA A PERDA DE ENERGIA

Antes porém, é importante ressaltar a implicação instrumental que envolve a detecção de uma partícula carregada. O sistema eletrônico de tratamento e seleção de sinal (pulsos elétricos produzidos pela interação da partícula com o detector) discrimina energias, fora de uma faixa pré-estabelecida, que não correspondem ao valor aproximado de energia de emissão nuclear de um isótopo radioativo específico. Desta forma, é necessária a determinação do valor mínimo de energia transferida ao detector para que o pulso produzido configure dentro da faixa de energia (conhecida como janela de discriminação) e seja contado como um evento.

A carga total produzida no detector pela interação de uma partícula alfa é proporcional a energia da partícula incidente e é dada pela relação:

$$Q_{\text{produzida}} = \frac{E^{(\alpha)} \cdot q_{\beta^-} \cdot k}{E^{(\beta^-, b)}} \quad (3.27)$$

$$E_{\text{emissão}} = E_{\text{cinética}}^{(\alpha)} \left( 1 + \frac{m_{\alpha}}{m_{\text{núcleo residual}}} \right) \quad \therefore \quad (3.28)$$

$$E^{(\alpha)} = \frac{E_{\text{emissão}}}{1 + \frac{m_{\alpha}}{m_{\text{Po}218}}}, \quad (\text{conservação de energia e momentum linear}).$$



onde

$E_{\text{cinética}}^{(\alpha)} = E^{(\alpha)}$ : Energia da partícula alfa incidente.

$E^{(\beta^-, b)}$ : Energia necessária a produção de um par elétron-lacuna. Para um detector de silício a energia necessária para a produção do par é 3,62 eV (300°K) à 3,71 eV (77°K).

k: Constante de Conversão de escala (MeV para eV),  $10^6$ .

$q_{\beta^-}$ : Carga do elétron,  $1,6 \times 10^{-19}$  Coulombs.

$m_{\alpha}$ : Massa da partícula alfa.

$m_{\text{núcleo residual}} : m_{\text{Po}}^{218}$ .

No caso particular para a energia transferida por uma partícula alfa emitida pelo nuclídeo  $\text{Rn}^{222}$  sobre a superfície de um detector semiconductor de silício, sem perdas de energia, o número máximo de pares elétron-lacuna produzidos é:

$$\frac{E^{(\alpha)\text{Rn}^{222}}}{E^{(\beta^-, b)}} = \frac{5,49 \cdot 10^6 \text{ eV}}{3,71 \text{ eV}} \sim 1,48 \cdot 10^6 \text{ pares}$$

Na descrição do sistema eletrônico de seleção e tratamento de sinal associado ao precipitador eletrostático, foi introduzido a noção de discriminador de amplitude cuja função básica é de selecionar a faixa de energia para pulsos gerados na saída do amplificador. Assim para que um pulso de altura "h" seja contado como um evento correspondente à energia de decaimento do  $\text{Rn}^{222}$ , as alturas mínima e máxima para o pulso devem necessariamente estar compreendidas no intervalo definido pela janela de discriminação que efetua a seleção do sinal.

Desta forma estabelece-se um limite máximo de perda de energia da partícula alfa emitida pelo  $Rn^{222}$  no ar, a fim de que o sinal produzido tenha uma amplitude maior do que o limite mínimo de discriminação.

A altura máxima de um pulso elétrico produzido pela interação partícula alfa-detector é:

$$V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} = \frac{Q_{\text{produzida}}}{C_F} \eta^* \quad (\text{unidade: volt}) \quad (3.29)$$

$C_F$ : Valor da capacitância de realimentação (circuito do pré-amplificador)

$\eta^*$ : Ganho do Amplificador.

mas

$$Q_{\text{produzida}} = \frac{q_{\beta^-} k}{E(\beta^-, b)} \cdot \left( 1 + \frac{m_{\alpha}}{m_{Po} 218} \right)^{-1} \cdot E_{\text{emissão}} \quad \dots \quad (3.30)$$

$$V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} = \frac{q_{\beta^-} k \eta^*}{C_F E(\beta^-, b)} \cdot \left( 1 + \frac{m_{\alpha}}{m_{Po} 218} \right)^{-1} \cdot E_{\text{emissão}} \quad (3.31)$$

$\eta^{**}$

$E_o$

$$V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} = \eta^{**} E_0 = k_0 \text{ Volts (emissão sem perdas)} \quad \therefore \eta^{**} = \frac{k_0}{E_0}$$

(3.32)

### Janela de discriminação

. limite inferior:  $V_{\text{min}}^{\text{janela}} = 2,3 \text{ Volts}$

. limite superior:  $V_{\text{máx}}^{\text{janela}} = 3,0 \text{ Volts}$

### Amplitude de Pulso

. limite inferior:  $V_{\text{min}}^{\text{pulso}} = \eta^{**} E_1 = k_1$

. limite superior:  $V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} = \eta^{**} E_2 = k_2$

$E_{1,2}$ : Energia da partícula alfa atenuada no meio.

$$V_{\text{min}}^{\text{janela}} = V_{\text{min}}^{\text{pulso}} = \eta^{**} E_1 = 2,3 \quad \therefore \frac{E_1}{E_0} = \frac{2,3}{k_0}$$

$$V_{\text{máx}}^{\text{janela}} = V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} = \eta^{**} E_2 = 3,0 \quad \therefore \frac{E_2}{E_0} = \frac{3,0}{k_0}$$

$$V_{\text{min}}^{\text{janela}} < V_{\text{máx}}^{\text{pulso}} < V_{\text{máx}}^{\text{janela}} \quad \Rightarrow \quad \frac{2,3}{k_0} E_0 < \text{Banda de energia selecionada} < \frac{3,0}{k_0} E_0$$

(3.33)

Ajustando-se o ganho do amplificador de forma que  $k_0 = 2,6$  Volts para um pulso produzido por uma partícula alfa incidente de  $5,4861$  MeV ( $Rn^{222}$ ), o valor mínimo de energia para que o pulso esteja dentro dos limites da janela de discriminação é  $0,87 E_0$  como indicado na Fig. 3.11.

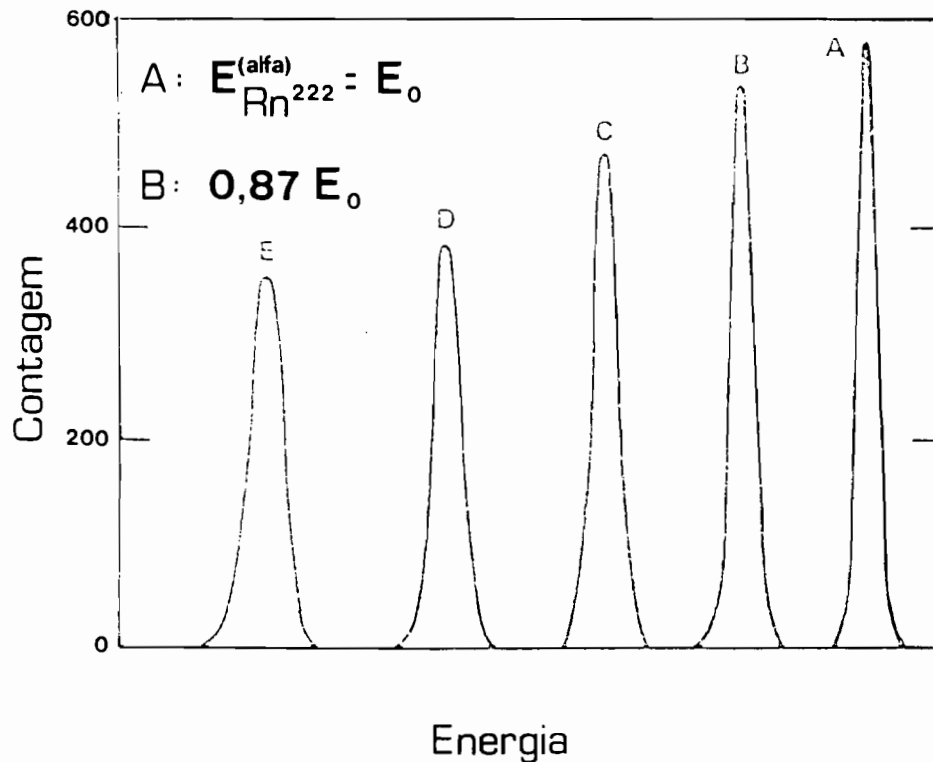


Fig. 3.11 - Perda de energia de partícula alfa indicada pela altura do sinal.

FONTE: Nuclear Instruments and Systems (1986/1987).

#### DESCRIÇÃO FÍSICA DO PROCESSO DE PERDA:

A fórmula de Bethe descreve a perda de energia para uma partícula carregada por unidade de comprimento em sua trajetória, pela expressão:

$$S = \frac{d}{dx} E = \frac{4\pi q_{\beta^-}^4 \cdot z^2}{m_{\beta^-} \cdot v^2} ZN \cdot \left\{ \ln \frac{2m_{\beta^-} v^2}{I} - \ln \left( 1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right\}$$

(3.34)

$zq_{\beta^-}$ : Carga da partícula

Z: Número atômico dos átomos que constituem o meio

I: Excitação média dos átomos do meio.

Para uma partícula alfa não relativística a equação tem a forma:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{16\pi q_{\beta^-}^4}{m_{\beta^-} V_{\alpha}^2} NZ \cdot \ln \left( \frac{2 m_{\beta^-} V_{\alpha}^2}{I} \right) \quad (3.35)$$

ou seja, a densidade do meio, o número de pares elétron-íon formados e a energia cinética da partícula alfa no meio modulam a perda de energia desta desde o momento da emissão até o alcance máximo atingido.

A curva de Bragg da Fig. 3.13 mostra a perda de energia a partir da ionização específica para a partícula alfa do nuclídeo  $\text{Rn}^{222}$ . A região hachurada representa o trecho do percurso onde a perda de energia é de aproximadamente 13% do seu valor inicial ( $0,87 E_0$ ). O comprimento de trajetória associado a essa perda é de 0,95 cm (Experiments in Nuclear Science, AN34/EGG, CRIC, 1981) que corresponderá a distância máxima núcleo emissor ( $\text{Rn}^{222}$ ) - área ativa do detector onde a emissão alfa deva ocorrer para que a partícula uma vez detectada produza um pulso elétrico cuja altura esteja associada a energia de decaimento do  $\text{Rn}^{222}$ .

Fica delimitado conseqüentemente uma região de máxima probabilidade para a detecção de partículas alfa provenientes do decaimento radioativo do  $\text{Rn}^{222}$  no interior do hemisfério de precipitação eletrostática. A Fig. 3.12 ilustrando um detector barreira de superfície mostra uma aproximação da "Região de Máxima Probabilidade (RMP)" nas adjacências da área ativa do detector.

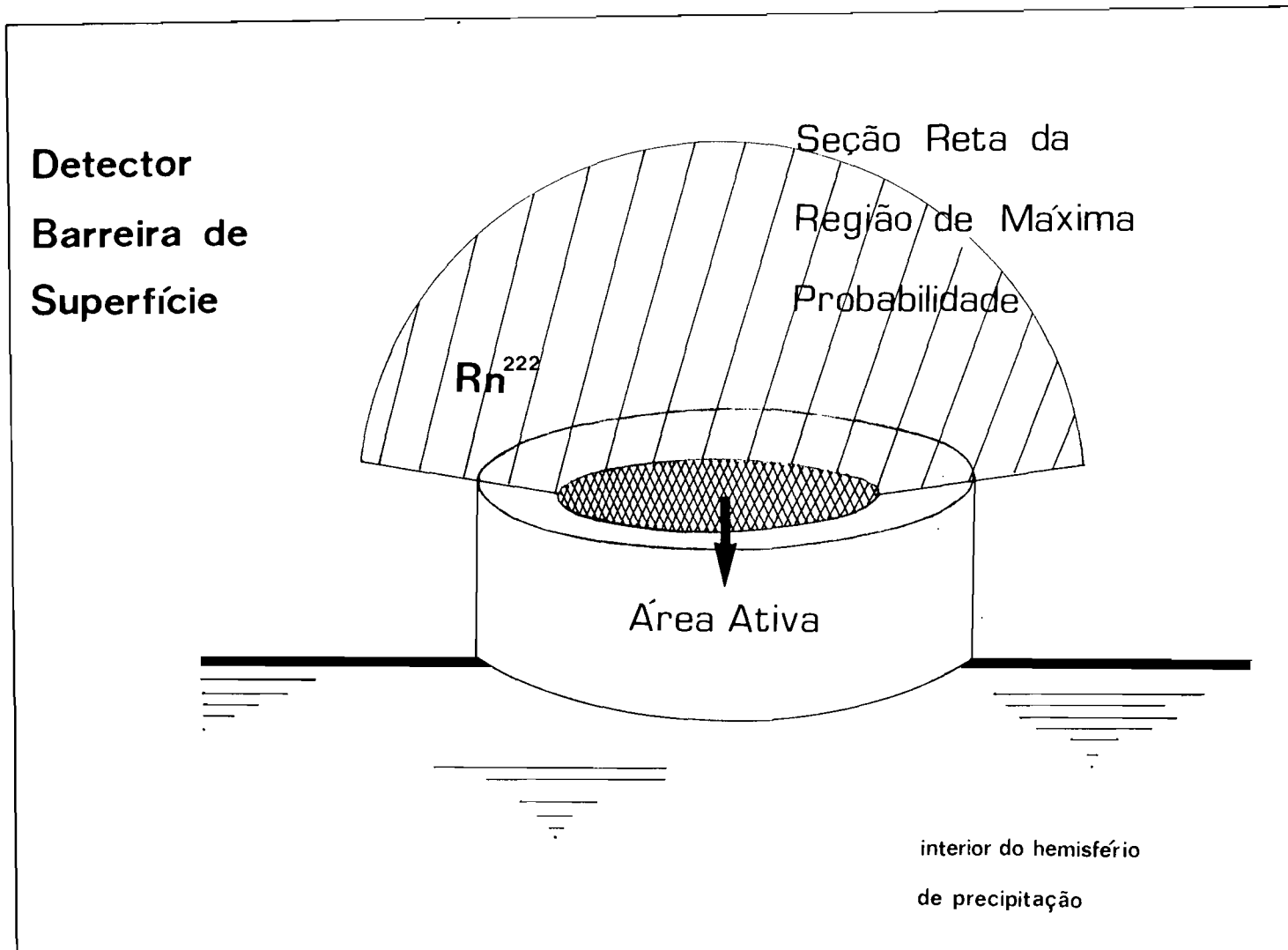


Fig. 3.12 - Aproximação para a seção reta da região de máxima probabilidade onde uma partícula alfa emitida no detector pelo  $Rn^{222}$  é contada como um evento associado a este nuclídeo.

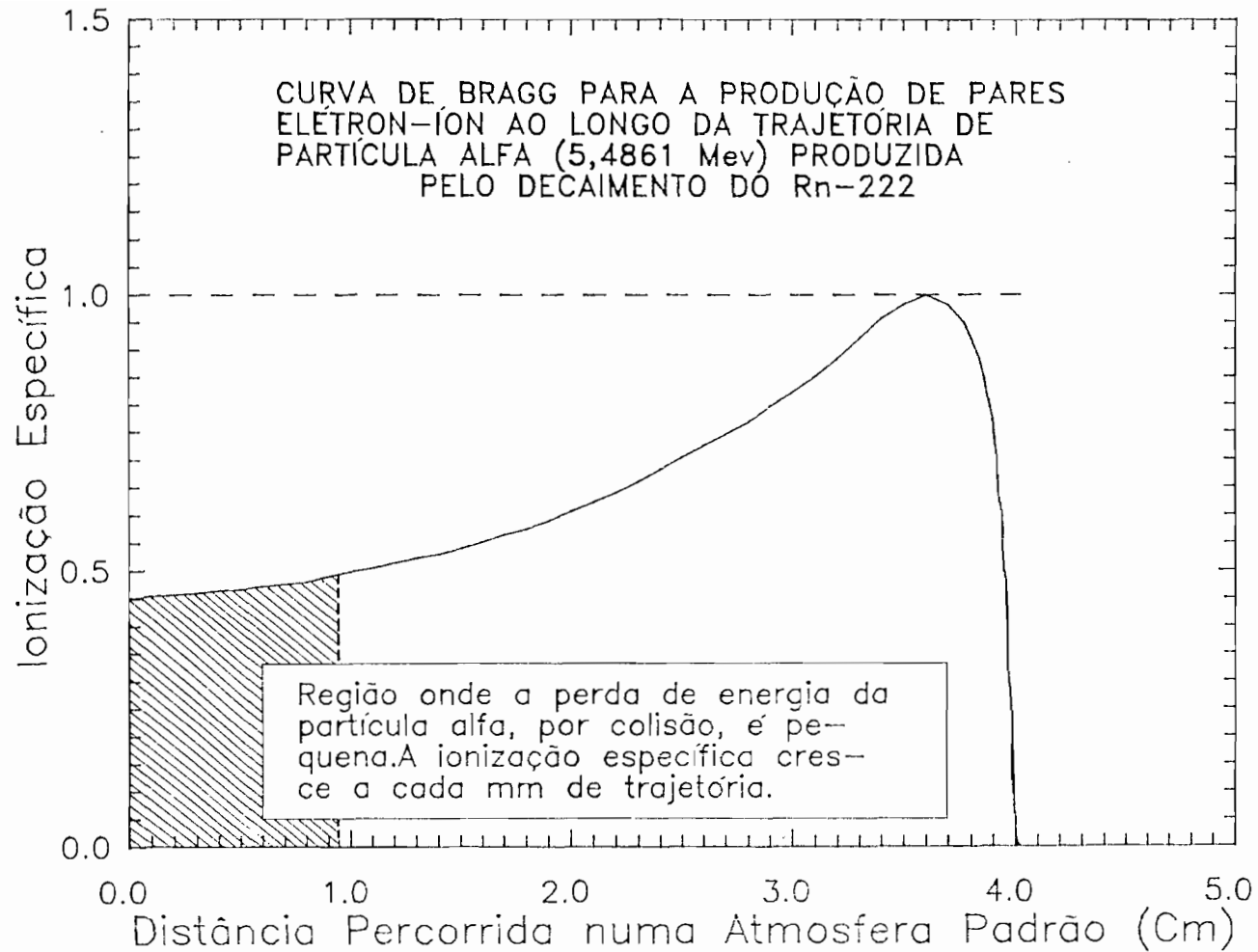


Fig. 3.13 - Perda de energia de partícula alfa em função da ionização específica produzida no meio.

Volume da RMP:

$$\text{Vol}_{\text{RMP}} \sim \int_0^{2\pi} \left\{ \int_0^{0,95 + \sqrt{R_{\text{detector}}^2 + h_{\text{depressão do detector}}^2}} r^2 dr \right. \\ \left. \int_0^{\frac{\pi}{2} - \text{arc tg} \frac{h_{\text{depressão do detector}}}{R_{\text{detector}}}} \text{sen} \theta d\theta \right\} d\varphi$$

em coordenadas esféricas

$$0,95 + \sqrt{R_{\text{detector}}^2 + h_{\text{depressão do detector}}^2} \sim 2,34 \text{ cm}, \text{ onde}$$

$$R_{\text{detector}} \sim 1,38 \text{ cm e } h_{\text{depressão do detector}} \sim 0,20 \text{ cm}$$

para um detector modelo BR-033-600-100 (EGG-ORTEC)

$$\text{Vol}_{\text{RMP}} \sim \frac{2\pi}{3} \cdot 12,81 \left\{ 1 - \text{sen} \left( \text{arc tg} \frac{h}{R} \right) \right\} \quad (2.36)$$

|  |
|--|
| $\frac{\text{Vol}_{\text{RMP}}}{\text{Vol}_{\text{total hemisf.}}} \sim 0,0006 \quad \therefore \quad \text{Vol}_{\text{RMP}} \sim 0,06\% \text{ do valor}$ <p style="text-align: right; margin-right: 50px;"><math>\text{Vol}_{\text{total hemisf.}}</math></p> |
|--|



Desde que a densidade numérica de átomos de  $Rn^{222}$  seja constante no volume total da câmara de precipitação eletrostática será possível a partir da última equação determinar o número de átomos por unidade de volume existente na RMP.

$$\frac{N_{Rn^{222}}^{Total}}{Vol_{Total}} = \frac{N_{Rn^{222}}^{RMP}}{Vol_{RMP}} \quad \therefore \quad N_{Rn^{222}}^{RMP} = \frac{Vol_{RMP}}{Vol_{Total}} \cdot N_{Rn^{222}}^{Total} \quad \therefore$$

$$N_{Rn^{222}}^{RMP} \sim 0,0006 N_{Rn^{222}}^{Total}$$

A região de máxima probabilidade limita um volume no espaço onde partículas alfa geradas no decaimento  $Rn^{222}$  podem atingir a área ativa do detector com perda mínima de energia. No entanto, nem todas as partículas são emitidas na direção e no sentido desta área. A direção de emissão é aleatória tendo a partícula alfa igual probabilidade de ser emitida em qualquer direção do espaço. Torna-se importante por esse motivo definir para o problema um fator de correção geométrica " $G_p$ " de forma a levar em consideração emissões no interior do ângulo sólido " $\Omega_p$ " onde a detecção seja possível.

$$N_{2He^4}^{detectadas} = G_p \cdot N_{2He^4}^{Total emitidas na RMP}$$

. Considerando o nuclídeo  $Rn^{222}$  como uma fonte pontual:

$$G_p = \frac{\Omega_p}{4\pi} ,$$

onde "P" é um ponto arbitrário no interior da RMP então,

$$\Omega_p = \frac{1}{2} (1 - \mu^*) + \frac{1}{2} \cdot \mu^* \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (2n+1)!}{2^{4n} (n!)^2} \left(\frac{\rho}{D}\right)^{2n} \sum_{k=0}^n T_k, \text{ onde} \quad (3.37)$$

$$T_k = \frac{(-1)^{k+1} (4n - 2k)!}{(2n - k)! (2n - 2k + 1)!} \cdot (\mu)^{2(n-k)}$$

$$\mu^* = \sqrt{\frac{L_{Po}^2 - \rho^2}{(L_{Po}^2 - \rho^2) + R_{\text{detector}}^2}}$$

$L_{Po}$ : distância do ponto "P" ao centro do detector

$\rho$ : menor distância entre "P" e o eixo de simetria do detector

$$D = \sqrt{(L_{Po}^2 - \rho^2) + R_{\text{detector}}^2}$$

Por simplicidade tomaremos o valor de " $G_p$ " para um ponto sobre o eixo de simetria do detector distante 0,95 cm deste.

$$\Omega_{\text{eixo}} = \int_0^{2\pi} \left\{ \int_0^{\alpha} \sin\theta \, d\theta \right\} d\varphi = 2\pi (1 - \cos\alpha); \quad (3.38)$$

$$\cos\alpha = \frac{0,95}{\sqrt{(0,95)^2 + R_{\text{detector}}^2}} \sim 0,57$$

$$G_{\text{eixo}} = \frac{1}{2} (1 - \cos\alpha) \sim 0,22$$

Como para cada nuclídeo  $\text{Rn}^{222}$  está associado uma e apenas uma partícula alfa emitida em seu decaimento, então

$$\begin{aligned} N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{RMP(medido)}} &\sim G_{\text{eixo}} N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{Total na RMP}} = 0,22 \cdot 0,0006 N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{Total}} = \\ &= 0,0001 N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{Total}}, \text{ ou seja} \end{aligned}$$

$$N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{(medido)}} \sim (0,01 \%) N_{\text{Rn}^{222}}^{\text{(existente na câmara)}}$$

### 3.2.2 - CONCLUSÃO

O  $\text{Rn}^{222}$  por ser um gás eletricamente neutro não sofre a influência do campo elétrico existente no interior da câmara de precipitação eletrostática e portanto se move livremente no circuito no qual é produzido e confinado. As partículas alfa emitidas por essas espécies de nuclídeos possuem energias na ordem de 5,49 MeV. Por outro lado, o campo elétrico radial, estabelecido entre as paredes internas do hemisfério de precipitação e o detector, gerado por uma diferença de potencial de aproximadamente 17 kV não é efetivamente suficiente para defletir a trajetória das partículas alfa emitidas e direcioná-las para a região ativa do detector a fim de que aquelas partículas alfa sejam contadas como eventos. Somente as emissões direcionadas relativas aos nuclídeos dentro da região de máxima probabilidade estarão associadas à contagens do elemento de interesse.

Conclui-se então que a medida direta do  $Rn^{222}$  utilizando-se a técnica de coleta eletrostática tal como a descrevemos, torna-se ineficiente. Serão na verdade seus produtos de decaimento emissores alfa,  $Po^{218}$  com 99,98% de probabilidade de emitir espontaneamente uma partícula alfa e o  $Po^{214}$  com 100% de probabilidade, os elementos através do qual o  $Rn^{222}$  é medido. Portanto, trata-se de uma medida indireta da atividade radioativa existente na câmara. O que possibilita o emprego dos isótopos de polônio para a medida da atividade do  $Rn^{222}$  é o equilíbrio secular estabelecido entre estes elementos no sistema.

### 3.3 - SIMULAÇÃO DA VARIAÇÃO DA ATIVIDADE DE $Po^{218}$ E $Po^{214}$ NO INTERIOR DA CÂMARA DE PRECIPITAÇÃO ELETROSTÁTICA

Será ilustrado a seguir uma simulação que mostra a variação das atividades dos isótopos do Po com a introdução de um fluxo de  $Rn^{222}$  cuja atividade é constante e conhecida. A finalidade da operação é determinar o tempo necessário ao equilíbrio entre a fonte e os produtos de decaimento produzidos na câmara e utilizados na medida do gás. As funções que descrevem as atividades dos  $Po^{218}$  e  $Po^{214}$  no interior do precipitador são obtidos tomando-se em consideração sua estrutura hemisférica onde os orifícios de entrada e saída de ar permanecem abertos de forma que todo o  $Rn^{222}$  injetado numa razão constante " $\phi^{(in)}$ " circule seu interior e seja removido para o exterior na mesma razão tal como ocorre nas medidas em superfície, Fig. 3.14.

Os termos de perda são devidos ao decaimento radioativo e a remoção do gás do precipitador pelo fluxo " $\phi^{(out)}$ ".

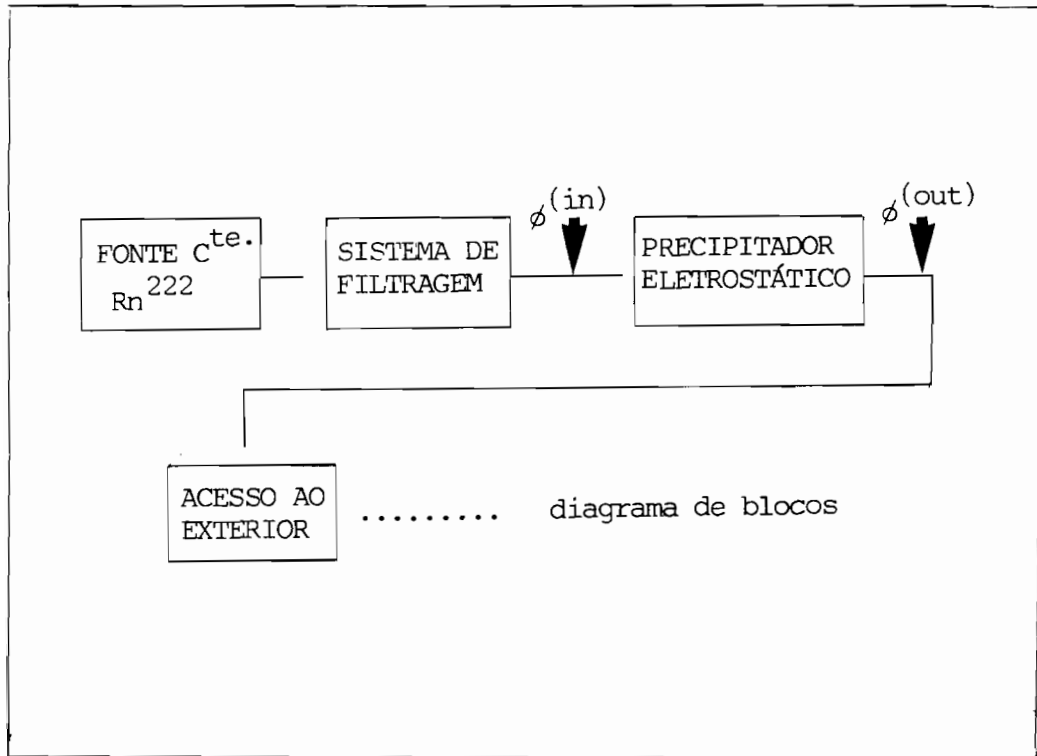


Fig. 3.14 - Reciclagem de  $Rn^{222}$  através do precipitador.

$$\frac{d}{dt} N_{Rn^{222}}(t, \phi) = - \lambda_{Rn^{222}} N_{Rn^{222}} + \left\{ \frac{\phi^{(in)}}{Vol} \cdot N_{Rn^{222}}^{(fonte)} - \right.$$

$$\left. - \frac{\phi^{(out)}}{Vol} N_{Rn^{222}} \right\} \dots\dots\dots \text{descrição analítica}$$

Para o  $\text{Po}^{218}$ :

$$\frac{d}{dt} N_{\text{Po}^{218}}(t, \phi) = -\lambda_{\text{Po}^{218}} N_{\text{Po}^{218}} + \lambda_{\text{Rn}^{222}} N_{\text{Rn}^{222}}$$

Usando as condições de contorno:

$$N_{\text{Rn}^{222}}(t, \phi) \Big|_{t=0} = 0 \quad \text{e} \quad N_{\text{Po}^{218}}(t, \phi) \Big|_{t=0} = 0, \text{ como também}$$

$$\phi^{(\text{in})} = \phi^{(\text{out})} = \phi$$

$$\lambda_{\text{Rn}^{222}} N_{\text{Rn}^{222}}^{(\text{fonte})} = A_{\text{Rn}^{222}}^{(\text{fonte})} : \text{Atividade do } \text{Rn}^{222} \text{ produzido pela fonte}$$

A solução para a equação diferencial será:

$$\frac{A_{\text{Po}^{218}}^{(\text{fonte})}}{A_{\text{Rn}^{222}}^{(\text{fonte})}}(t, \phi) \sim k_1(\phi) \cdot \left\{ 1 - k_2(\phi) \cdot e^{-\lambda_{\text{Po}^{218}} t} - k_3(\phi) \cdot e^{-\frac{\phi t}{42}} \right\} \quad (3.39)$$

$$k_1(\phi) \sim \frac{1}{1 + \frac{0,317}{\phi}} ; \quad k_2(\phi) \sim \frac{1}{1 - \frac{572,5}{\phi}} ; \quad k_3(\phi) \sim \frac{1}{1 - \frac{\phi}{572,5}}$$

t: Variável temporal, t(horas)

$\phi$ : Parâmetro - fluxo:  $[L]^3 [T]^{-1}$

$$\phi^{(1)} = 50 \text{ l.h}^{-1}$$

$$\phi^{(2)} = 100 \text{ l.h}^{-1}$$

$$\phi^{(3)} = 200 \text{ l.h}^{-1}$$

$$\phi^{(4)} = 300 \text{ l.h}^{-1}$$

$$\phi^{(5)} = 800 \text{ l.h}^{-1}$$

As curvas obtidas na Fig. 3.15 variando-se o parâmetro  $\phi^{(k)}$   $k = 1, 2, 3, 4, 5$ , mostram o tempo característico para o equilíbrio atingido pelo sistema a partir de uma fonte conhecida. Dentro do ponto de vista experimental o valor de "t = t<sub>(resposta ao equilíbrio)</sub>" torna-se importante para que se conheça o intervalo de tempo a partir do qual o equilíbrio secular entre o Rn<sup>222</sup> da fonte e o Po<sup>218</sup> produzido se estabeleça. O resultado mostra que quanto menor o fluxo de Rn<sup>222</sup> amostrado maior será o intervalo de tempo necessário ao equilíbrio. O fluxo normalmente empregado corresponde a um valor em torno de 300 l.h<sup>-1</sup> ideal para as condições de operação exigidas para um monitoramento constante do Rn<sup>222</sup> atmosférico.

Ainda sobre a condição de equilíbrio, tomando-se a equação inicial na forma:

$$\frac{d}{dt} N_{\text{Rn}}^{222} = \frac{\phi}{\text{Vol}} \cdot N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})} - \left( \lambda_{\text{Rn}}^{222} + \frac{\phi}{\text{Vol}} \right) N_{\text{Rn}}^{222} = 0,01 \text{ e}$$

$$N_{\text{Rn}}^{222}(t) = \frac{\phi N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})}}{\text{Vol} \cdot \left( \frac{\phi}{\text{Vol}} + \lambda_{\text{Rn}}^{222} \right)} \cdot \left\{ 1 - e^{-\left( \frac{\phi}{\text{Vol}} + \lambda_{\text{Rn}}^{222} \right) t} \right\} +$$

$$+ N_{\text{Rn}}^{222}(0) \cdot e^{-\left( \frac{\phi}{\text{Vol}} + \lambda_{\text{Rn}}^{222} \right) t} \quad \text{solução geral}$$

será possível estimar o valor de "t" para que 99%, ou qualquer outro valor percentual que se queira, do equilíbrio seja atingido:

$$\text{definindo: } \frac{\phi}{\text{Vol}} + \lambda_{\text{Rn}}^{222} \equiv \chi \quad N_{\text{Rn}}^{222}(t=0) \equiv N_{\text{Rn}}^{222(0)}$$

$$\frac{\phi N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})}}{\text{Vol}} - \frac{\chi \cdot \phi N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})}}{\text{Vol} \cdot \chi} - \chi \left\{ \left[ -\frac{\phi N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})}}{\text{Vol} \cdot \chi} + N_{\text{Rn}}^{222(0)} \right] \cdot e^{-\chi t} \right\} = 0,01$$

$$\left[ \frac{\phi N_{\text{Rn}}^{222(\text{fonte})}}{\text{Vol}} - \chi N_{\text{Rn}}^{222(0)} \right] \cdot e^{-\chi t} = 0,01 \quad \therefore$$



$$-\lambda t + \ln \left[ \frac{\phi N_{\text{Rn}}^{222}(\text{fonte})}{\text{Vol}} - \lambda N_{\text{Rn}}^0 \right] = -4,61 \quad \dots$$

$$t(99\%) = \frac{\ln \left\{ \frac{\phi}{\text{Vol}} \cdot \left[ N_{\text{Rn}}^{222}(\text{fonte}) - N_{\text{Rn}}^0 \right] - \lambda_{\text{Rn}}^{222} N_{\text{Rn}}^0 \right\} + 4,61}{\frac{\phi}{\text{Vol}} + \lambda_{\text{Rn}}^{222}} \quad (3.40)$$

observando o caso limite quando  $\phi \rightarrow 0$  tem-se que  $N_{\text{Rn}}^{222}(t) = N_{\text{Rn}}^0 e^{-\lambda_{\text{Rn}}^{222} t}$ , ou seja, quando nenhum fluxo é introduzido o número de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  na câmara decai a partir da quantidade já existente, como esperado.

A variação da atividade no tempo levando em consideração o  $\text{Po}^{214}$  poderá ser obtida a partir da equação:

$$N_{\text{Po}^{218}}(t, \phi) = \frac{A_{\text{Rn}}^{222}(\text{fonte})}{\lambda_{\text{Po}^{218}}} k_1(\phi) \left\{ 1 - k_2(\phi) \cdot e^{-\lambda_{\text{Po}^{218}} t} - k_3(\phi) \cdot e^{-\frac{\phi t}{42}} \right\}$$

onde os demais elementos da série:  $\text{Pb}^{214}$ ,  $\text{Bi}^{214}$  e  $\text{Po}^{214}$  deverão ser considerados.

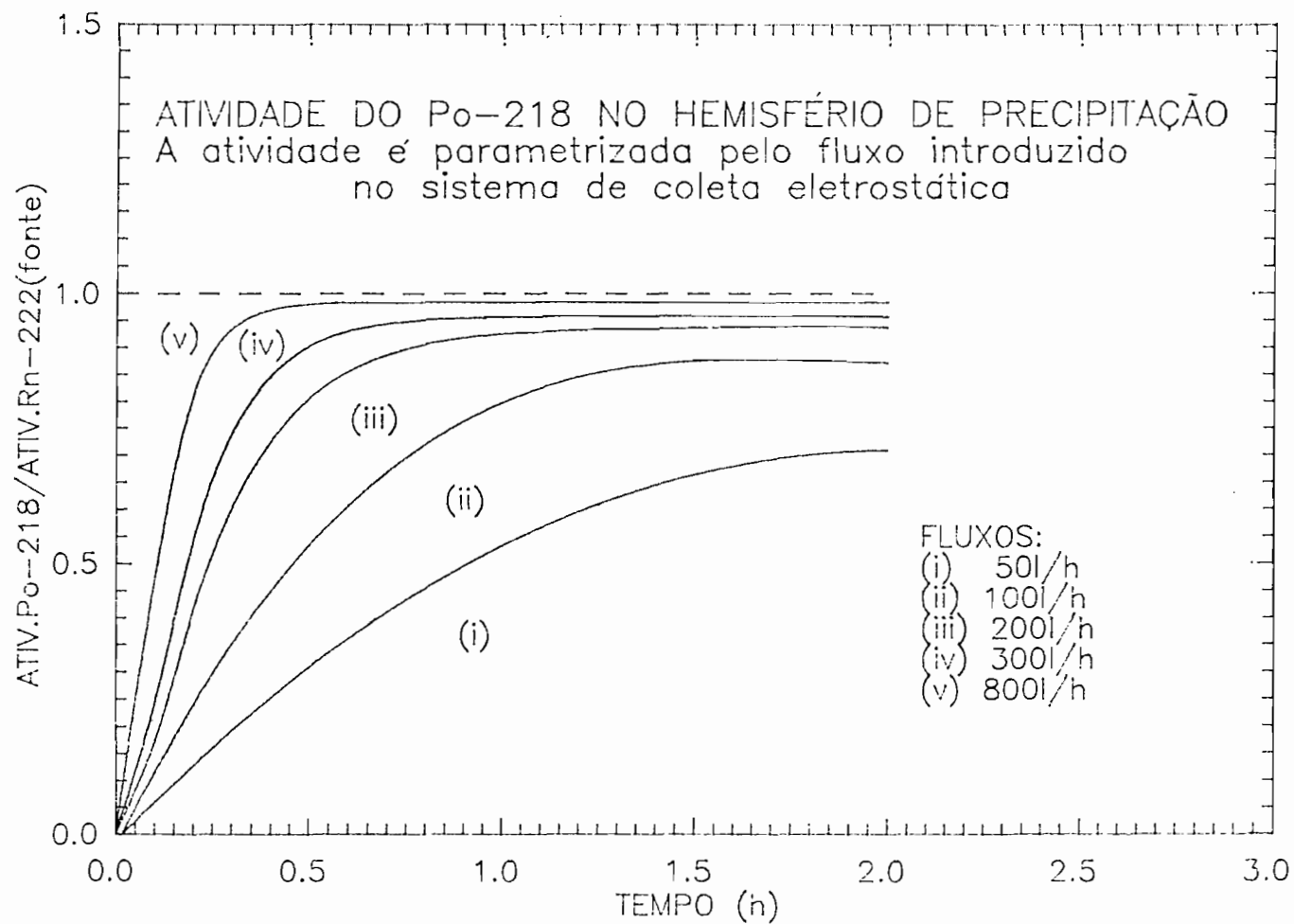


Fig. 3.15 - Simulação da resposta do sistema de coleta eletrostática a partir da introdução de uma fonte constante de Rn<sup>222</sup>.

As curvas determinam os intervalos de tempo necessários ao equilíbrio radioativo no interior da câmara para vários fluxos empregados.

A partir das mesmas condições de contorno usadas para  $^{218}\text{Po}$ : o

$$N_{\text{Pb}}^{214}(t, \phi) = N_{\text{Bi}}^{214}(t, \phi) = N_{\text{Po}}^{214}(t, \phi) \Big|_{t=0} = 0$$

obtém-se a atividade do  $^{214}\text{Po}$  em função da fonte conhecida de  $^{222}\text{Rn}$ :

$$\frac{A_{\text{Po}}^{214}}{A_{\text{Rn}}^{222}}(t, \phi) \sim k_1(\phi) \left\{ \begin{array}{l} 1 - G(\phi) \cdot e^{-\lambda_{\text{Po}}^{218} t} \\ - h(\phi) \cdot e^{-\lambda_{\text{Pb}}^{214} t} \\ - i(\phi) \cdot e^{-\lambda_{\text{Bi}}^{214} t} \\ - j(\phi) \cdot e^{-\frac{\phi}{42} t} \end{array} \right. \quad (3)$$

(3.41)

onde:  $G(\phi) = 0,0296 \cdot k_2(\phi)$

$$h(\phi) = 3,767 + 0,484 k_2(\phi) - \frac{3,767}{\left(1 - \frac{\phi}{65,10}\right)} \cdot k_3(\phi)$$

$$i(\phi) = -2,767 - 0,507 k_2(\phi) - \frac{1}{\left(1 - \frac{\phi}{88,64}\right) \left(1 - \frac{\phi}{65,10}\right)}$$

(3) A família de curvas está mostrada na Fig. 3.16.

$$\cdot k_3(\phi) + \frac{3,767}{\left(1 - \frac{\phi}{65,10}\right)} \cdot k_3(\phi)$$

$$j(\phi) = \frac{1}{\left(1 - \frac{\phi}{65,10}\right) \left(1 - \frac{\phi}{88,64}\right)} k_3(\phi)$$

onde:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \frac{A_{Po^{214}}}{A_{Rn^{222}} \text{ (fonte)}} = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{A_{Po^{218}}}{A_{Rn^{222}} \text{ (fonte)}} = k_1(\phi) = \frac{1}{1 + \frac{0,317}{\phi}}$$

ou seja, o valor da atividade dos isótopos do Po no equilíbrio só depende, além do valor da atividade da fonte, do fluxo de  $Rn^{222}$  que circula através do precipitador eletrostático.

Uma consideração que fica implícita é o fato de que a velocidade adquirida pelo íon ( $Po^{218}$  ou  $Po^{214}$ ) sob a presença do campo elétrico no interior da câmara é muito grande comparada com aquela devido ao fluxo com que o  $Rn^{222}$  é injetado, ou seja, a importância de seu utilizar um fluxo ótimo no sistema está associada ao tempo de residência da parcela de ar no interior da câmara.

Assume-se assim que todos os íons positivos produzidos "in loco" são acelerados pelo campo. Perdas por recombinação ou íons que atingem somente as bordas metálicas do detector, fora da região ativa deste, serão tratadas nos capítulos seguintes.

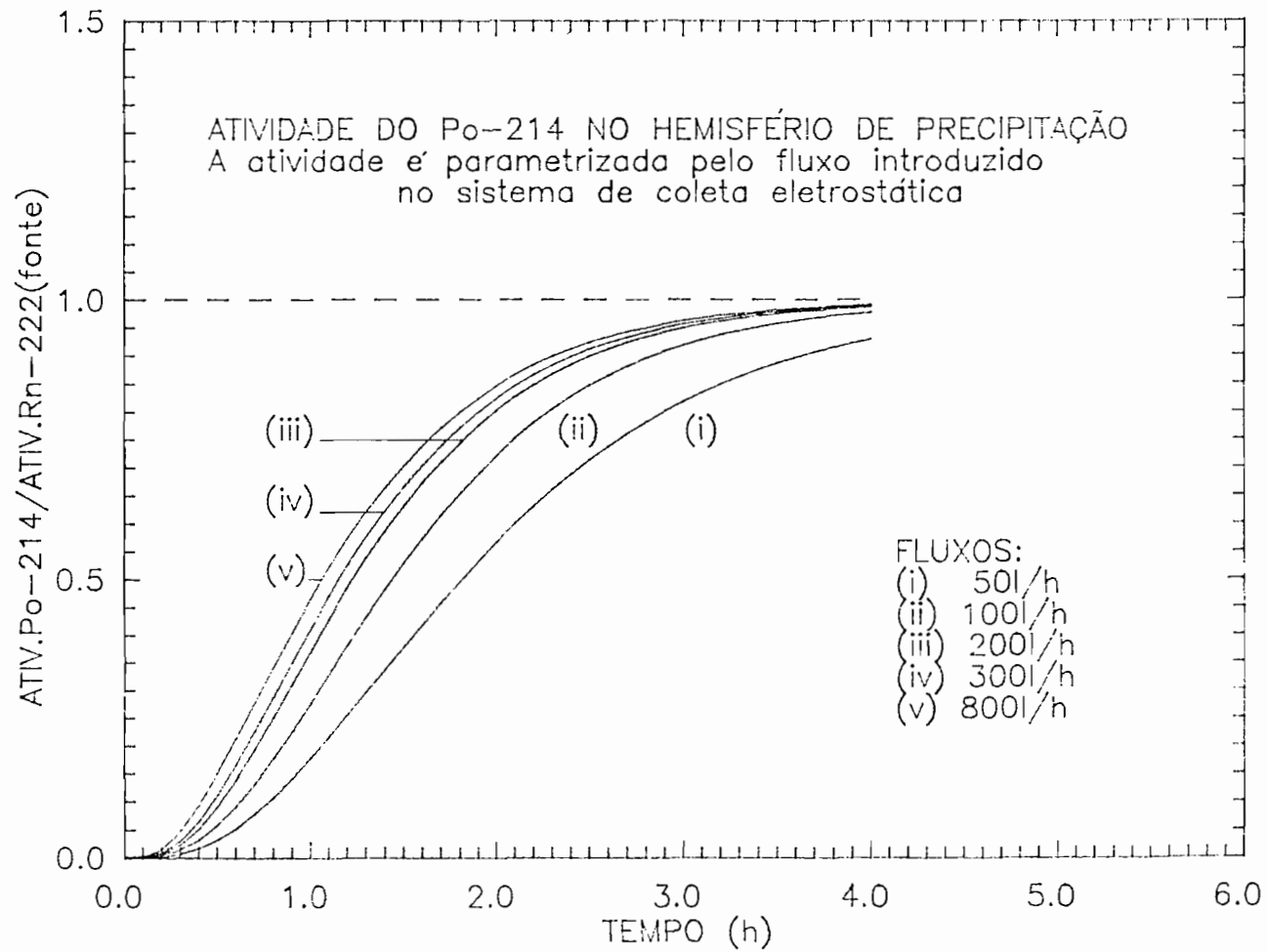


Fig. 3.16 - Simulação para o intervalo de tempo de resposta ao equilíbrio para o nuclídeo Po<sup>214</sup>.

### 3.4 - CALIBRAÇÃO DINÂMICA

A calibração do ponto de vista dinâmico se faz necessária levando-se em consideração o fato de que o sistema, tal como descrito, é um analisador em tempo real da atividade radioativa de uma parcela do ar atmosférico injetado no interior do hemisfério de precipitação resultando num processo dinâmico de amostragem e medida da radioatividade do ar (como foi visto na descrição do sistema de detecção de  $Rn^{222}$ ), Pereira e Silva (1989).

Com o objetivo de se estabelecer uma relação unívoca entre contagem (na forma de número de eventos por unidade de tempo) e atividade radioativa de uma amostra de ar, foi elaborado um sistema que utiliza no seu interior uma fonte de  $Rn^{222}$  conhecida e cuja taxa de produção é constante. Todo o radônio produzido internamente é transportado através das partes do sistema de forma reciclada.

O sistema de calibração no seu conjunto é subdividido em duas partes (subsistemas A e B) como indicado na Fig. 3.17. Esses subsistemas são a princípio independentes, mas atuarão de maneira conjugada no decorrer da calibração do sistema de coleta eletrostática.

Todos os elementos que compõem os subsistemas estão referenciados abaixo de acordo com a numeração indicada na figura de calibração.

A fonte-padrão empregada é disposta nas paredes internas do cilindro (8) na forma de uma fina película de um minério de urânio (Pitchblenda) em forma de pó diluído em  $SiO_2$  resultando numa mistura com 1% de urânio. O procedimento adotado maximiza a taxa de escape do gás da fonte uma vez que a distribuição do pó é aproximadamente homogênea ao longo da superfície ativa desta.

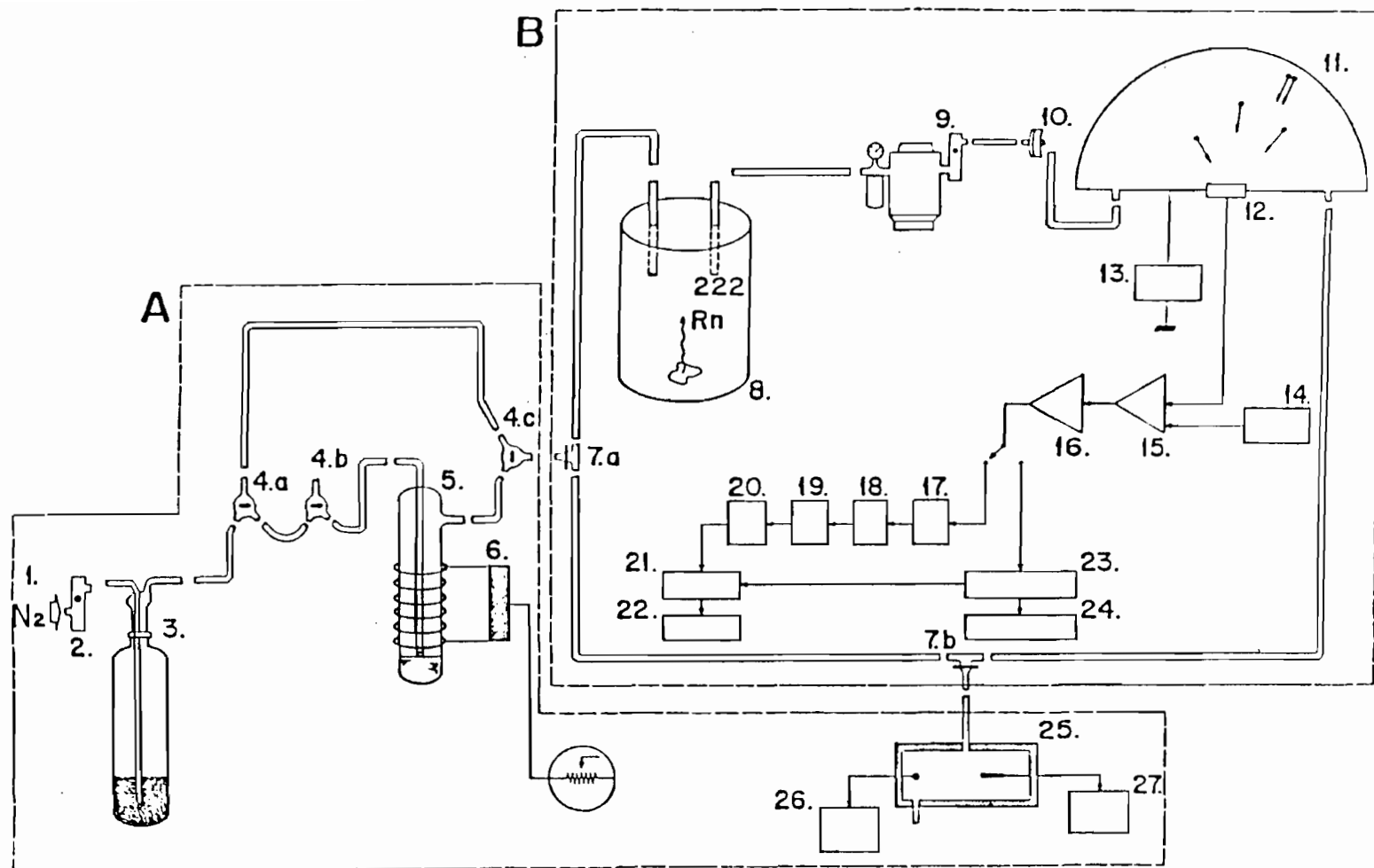


Fig. 3.17 - Esquema do circuito de calibração dinâmica do sistema de coleta de íons: . subsistema A: sistema de injeção do gás de araste ( $N_2$ ) e sistema umidificador; . subsistema B: sistema de produção do gás radioativo, coleta de íons e eletrônica associada ao tratamento e aquisição de pulso nuclear.

**Subsistema A**

1. Fonte de diluição ( $N_2$  puro - R gasoso)
2. Medidor de fluxo
3. Tubo com sílica gel
- 4.a, 4.b, 4.c. Válvulas "three-way"
5. Agente umidificador
6. Cinta de aquecimento
25. Câmara adiabática
26. Sensor de temperatura
27. Sensor de umidade

**Subsistema B**

- 7.a, 7.b. Válvulas "two-way"
8. Fonte de  $Rn$  conhecida
9. Bomba de membrana
10. Filtro
11. Hemisfério de precipitação eletrostática
12. Detector do tipo barreira de superfície
13. Alta tensão
14. Fonte de alimentação de pré-amplificador
15. Pré-amplificador
16. Amplificador
17. Integrador de pico
18. Discriminador de amplitude
19. Circuito anti-coincidência
20. Circuito mono-estável



21. Contador
22. Fita digital
23. Analisador multicanal
24. Impressora

#### 3.4.1 - DESCRIÇÃO DO EXPERIMENTO

Todo gás residente no subsistema B é colocado em circulação somente naquele subsistema, utilizando-se uma bomba de membrana de forma a homogenizá-lo no circuito. O fluxo de operação é aquele utilizado para as medidas de campo e é controlado por um fluxômetro de fluxo pré-ajustado acoplado à saída de ar da bomba de membrana. Uma vez estabelecida a homogeneidade no subsistema B, nitrogênio seco (proveniente do subsistema A) é introduzido em B a fim de diluir a concentração local deste até que os termos de produção-decaimento do gás produzido pela fonte e a diluição gerada pelo nitrogênio se equacionem numa mesma taxa de variação levando o sistema a uma nova configuração de equilíbrio. O uso de nitrogênio nesse experimento como gás de arraste decorre do fato deste ser quimicamente inerte em relação ao gás e aos íons produzidos no sistema, ser seco desde seu processo de produção e envelhecido por mais de 40 dias. Essa última condição é excencial para que o gás de arraste tenha concentração zero de radônio. Desde que as válvulas 7.a e 7.b permaneçam fechadas, a atividade radioativa do  $Rn^{222}$ , produzido internamente pela fonte entrará em equilíbrio com a atividade de seus produtos de decaimento, depois de um intervalo de tempo característico suficientemente grande (levando-se em conta apenas os termos de produção e decaimento do mesmo).

No entanto, não é necessária a condição de equilíbrio entre o gás e seus produtos no subsistema B, fechado, para que a diluição se inicie.

Uma vez conhecida a atividade do  $Rn^{222}$  em qualquer instante de tempo, injeta-se nitrogênio através da válvula 7.a, permitindo-

-se simultaneamente que parte do  $\text{Rn}^{222}$  misturado ao nitrogênio diluente saia à mesma taxa através da válvula 7.b. A partir da admissão do gás de arraste a atividade radioativa no sistema decai de um valor conhecido (calculado) até estabelecer-se num valor limite de equilíbrio cujo valor numérico é obtido baseado nos processos de perda e produção nos subsistemas e nas constantes que envolvem o decaimento radioativo dos elementos no interior da câmara.

A equação diferencial que descreve completamente a taxa de variação no tempo dos átomos de  $\text{Rn}^{222}$  levando-se em consideração os termos de produção, decaimento, escape do sistema (Válvula 7.b) e diluição (Válvula 7.a) tem a seguinte forma:

$$\frac{d}{dt} N_{\text{Rn}^{222}} = \underbrace{\epsilon}_{1^\circ \text{ termo}} \underbrace{\lambda_{\text{Ra}^{226}} N_{\text{Ra}^{226}}}_{2^\circ \text{ termo}} - \underbrace{\lambda_{\text{Rn}^{222}} N_{\text{Rn}^{222}}}_{3^\circ \text{ termo}} - \underbrace{V_{\gamma} N_{\text{Rn}^{222}}}_{4^\circ \text{ termo}} + \underbrace{V_{\beta} N_{\text{Rn}^{222}}}_{5^\circ \text{ termo}} \quad (3.42)$$

1º termo: Variação no tempo relativa ao número de átomos de  $\text{Rn}^{222}$

2º termo: Termo de produção de  $\text{Rn}^{222}$  a partir do  $\text{Ra}^{226}$ ,  $\epsilon$  é o termo que leva em consideração a fração de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  que escapa da fonte padronizada (taxa escape/produção)

3º termo: Termo de decaimento

4º termo: Termo de escape via válvula 7.b.  $V_{\gamma}$ : termo que leva em consideração a fração de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  que é perdida para o meio exterior. Uma outra parte desses átomos retorna a região de produção e efetua novamente o movimento de circulação ao longo das tubulações do subsistema B. A dimensão de  $V_{\gamma}$  na Equação 3.42 é  $[\text{T}]^{-1}$  e poderá ser escrita como função do fluxo de saída (coincidente, naturalmente, com o valor numérico do fluxo de entrada de nitrogênio através da válvula 7.a).

A dimensão de  $\phi_d$  é  $[L]^3 \cdot [T]^{-1}$ .

5º termo: Quantidade adicional de  $Rn^{222}$  projetada para o subsistema B por meio da válvula 7.a. O número de átomos de  $Rn^{222}$  que penetra no subsistema B é insignificante comparado à atividade produzida no cilindro da figura de calibração uma vez que o  $N_2$  utilizado como gás de arraste não contém elementos radioativos misturados à sua composição. Desta forma não há contribuição do quinto termo para o equacionamento do problema da diluição do subsistema B.

As válvulas 4.a, 4.b e 4.c operam coordenadamente de modo a introduzir a unidade desejada ao sistema quando conveniente ao experimento.

A equação resultante será, portanto:

$$\frac{d}{dt} N_{Rn^{222}} = - (V_Y + \lambda_{Rn^{222}}) N_{Rn^{222}} + \epsilon N_{Ra^{226}} \lambda_{Ra^{226}} \quad (3.43)$$

$V_Y$  poderá ser convencionalmente escolhido como  $V_Y = \frac{\phi_d}{Vol_{Total}}$ , onde

$Vol_{Total}$  = Volume do hemisfério de precipitação + Volume do cilindro (depósito da fonte de  $Rn^{222}$ ) + Volume interno das tubulações.

**NOTA:** O comprimento das tubulações é minimizado de forma que, com boa aproximação, tenha-se:

$$Vol_{Total} \sim Vol_{Hemisférico} + Vol_{Cilindro}$$

isto evita que parte considerável de  $Rn^{222}$  permaneça agregado às paredes internas dos tubos condutores do gás.

Resolvendo a Equação 3.43 (ver Apêndice B), obtém-se:

$$N_{Rn}^{222}(t) = \frac{\epsilon \lambda_{Ra}^{226} N_{Ra}^{226}(0)}{(\lambda_{Rn}^{222} - \lambda_{Ra}^{226} + V_{\gamma})} \cdot e^{-\lambda_{Ra}^{226}t} + C^{(1)} \cdot e^{-(V_{\gamma} + \lambda_{Rn}^{222})t} \quad (3.44)$$

para a determinação da Constante  $C^{(1)}$  é usada a condição de contorno:

$$\lim_{t' \rightarrow T} N_{Rn}^{222}(t') \Big|_{\text{subsistema B}} \Leftrightarrow \lim_{t \rightarrow 0} N_{Rn}^{222}(t) \Big|_{\text{subsistemas A+B}} \quad (3.45)$$

- definições:

- . O índice intitulado "subsistema B" (primeiro membro) indica que o circuito B da figura de calibração é mantido fechado.
- . O índice intitulado "subsistema A+B" (segundo membro) indica que os circuitos A e B são interligados favorecendo a passagem do gás de arraste ( $N_2$ ) no interior do conjunto.

t: Variável Contadora. Toma-se  $t = 0$  a partir do instante em que o nitrogênio é injetado no subsistema B, ou seja, quando inicia-se a diluição. As válvulas 7.a e 7.b são simultaneamente abertas para que seja permitido a passagem do gás de diluição ao interior e ao exterior do circuito de calibração. A variável "t" continuará sendo utilizada para todos subsequentes intervalos de tempo até o infinito.

$t'$ : Variável Contadora relativa a um intervalo finito de tempo. A variável " $t'$ " tem sua origem ( $t' = 0$ ) no instante em que se inicia a produção de  $\text{Rn}^{222}$  no subsistema B, ainda quando este último está ausente de qualquer ligação com o meio externo (por meio das válvulas 7.a e 7.b fechadas). A produção do gás inicia-se basicamente de duas formas, a saber:

**Alternativa A:** Quando a fonte do  $\text{Rn}^{222}$  é acoplada ao subsistema B.

**Alternativa B:** Uma vez montado o subsistema B, introduzindo-se nitrogênio puro até que praticamente todo gás resultante para o exterior da válvula 7.b seja o próprio nitrogênio de entrada. A partir dessa condição o subsistema B é isolado e a atividade do  $\text{Rn}^{222}$  cresce até se estabilizar em seu equilíbrio característico de acordo com a lei do decaimento radioativo.

A variável " $t'$ ", portanto, define a atividade radioativa existente no subsistema B (mantido isolado) em qualquer instante de tempo a partir da produção inicial do gás pela fonte padrão até a introdução do gás de arraste.

$T$ : Instante de tempo que define o número de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  existente no subsistema B isolado depois de " $T$ " unidades de tempo, em outras palavras, é o tempo de acúmulo do  $\text{Rn}^{222}$  gerado pela fonte padronizada no subsistema B fechado.

Assim quando  $t = 0$  (2º membro da Equação 3.44) o número de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  existentes no circuito será  $N_{\text{Rn}^{222}}(T)$ :

$$\frac{\epsilon \lambda_{\text{Ra}^{226}} N_{\text{Ra}^{226}}(0)}{\lambda_{\text{Rn}^{222}}} \left( 1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}^{222}} T} \right) \equiv N_{\text{Rn}^{222}}(T) \quad (3.46)$$

1º termo

2º termo

1º termo: Número de átomos de  $Rn^{222}$  no subsistema B isolado depois de passados "T" unidades de tempo (ver Apêndice A).

2º termo: Equação 2.4 com  $t = 0$

lembrando que  $\lambda_{Rn222} \gg \lambda_{Ra226}$  e que  $e^{-\lambda_{Ra226}t} \sim 1$  (ver Apêndice A), tem-se:

$$\frac{\epsilon \lambda_{Ra226} N_{Ra226}(0)}{\lambda_{Rn222}} \left( 1 - e^{-\lambda_{Rn222}T} \right) = \frac{\epsilon \lambda_{Ra226} N_{Ra226}(0)}{(\lambda_{Rn222} + V_{\gamma})} + C^{(1)} \quad (3.47)$$

explicitando-se o valor de  $C^{(1)}$  em 3.47 e usando-o em 3.44, aparecerá finalmente após algumas manipulações a forma compactada.

$$N_{Rn222}(t) \sim \Gamma \left( 1 + \Pi \cdot e^{-\frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma} \cdot t} \right), \text{ onde} \quad (3.48)$$

$$A^{Ra} = \lambda_{Ra226} N_{Ra226}(0) \quad \Pi = \left( 1 + \frac{V_{\gamma}}{\lambda_{Rn222}} \right) \left( 1 - e^{-\lambda_{Rn222}T} \right) - 1 \quad (3.49)$$

$$\Gamma = \frac{\epsilon A^{Ra}}{\lambda_{Rn222} + V_{\gamma}} \quad (3.50)$$

A dependência com o fluxo está diretamente associada ao termo  $V_{\gamma}$ , onde funcionalmente:

$$\Gamma = \Gamma(\phi_d) \quad \text{e} \quad \Pi = \Pi(\phi_d, T)$$

Análise de casos extremos:

$$\lim_{\substack{t \rightarrow 0 \\ V_Y \rightarrow 0}} N_{\text{Rn}} \Gamma(t) \sim (1 + \Pi) = \frac{\epsilon A^{\text{Ra}}}{\lambda_{\text{Rn}}^{222}} \left(1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}^{222} T}\right) \quad (3.51)$$

uma vez que quando  $t \rightarrow 0$ ,  $V_Y \rightarrow 0$  (consequentemente).

$$\lim_{t \rightarrow \infty} N_{\text{Rn}}^{222}(t) \sim \Gamma = \frac{\epsilon A^{\text{Ra}}}{\lambda_{\text{Rn}}^{222} + \frac{\phi_d}{\text{Vol}}} \quad (3.52)$$

onde " $\Gamma$ " representa o número de átomos resultantes após uma diluição completa. Determina-se diretamente desse resultado a atividade radioativa relativa ao  $\text{Rn}^{222}$ , definida a menos de uma constante multiplicada ( $\lambda_{\text{Rn}}^{222}$ ) do valor de  $N_{\text{Rn}}^{222}$ , para o estado de equilíbrio atingindo pelo sistema conhecidos o fluxo de diluição e a fonte de produção do gás. Desta forma, quanto maior o fluxo de diluição aplicado menor será o valor da atividade resultante no sistema para aquele fluxo. O termo exponencial " $\exp(-\epsilon A^{\text{Ra}} t/\Gamma)$ " em  $N_{\text{Rn}}^{222}$  mostra a dependência do valor do fluxo no decaimento da atividade. Isto significa que a "forma" tomada pelo sistema para partir de um dado valor arbitrário de atividade e atingir o valor assintótico de equilíbrio dependerá da escolha natural do fluxo de diluição.

Sucessivamente novos fluxos são introduzidos de forma a obtermos quantos patamares de equilíbrio forem necessários para o processo de calibração. Ressalta-se: um novo fluxo só é acionado a partir de um instante " $t$ " suficientemente grande para que possa ser verificado o equilíbrio no patamar anterior. A correlação entre atividade teórica (que possui valor único no estado de equilíbrio) do  $\text{Rn}^{222}$  e a média das contagens observadas associadas ao estado de equilíbrio obtida nas condições importas pelo modelo teórico resultarão na curva de calibração procurada, de forma que a correspondência entre contagem e contagem e atividade do  $\text{Rn}^{222}$  fique estabelecida.

Devido a impossibilidade de se medir a radioatividade de uma parcela de ar no interior da câmara através do uso direto de gases radioativos, toma-se os produtos de decaimento desses gases (metais pesados iônicos radioativos) como elementos a serem medidos na câmara.

Tanto o  $\text{Po}^{218}$  como o  $\text{Po}^{214}$  tornam possíveis a medida do  $\text{Rn}^{222}$  por meio desta técnica. Assim para intervalos de tempo suficientemente grandes comparados com as meias-vidas envolvidas:

$$\lambda_{\text{Rn}^{222}} N_{\text{Rn}^{222}} = \lambda_{\text{Po}^{218}} N_{\text{Po}^{218}} = \lambda_{\text{Po}^{214}} N_{\text{Po}^{214}} \quad (3.53)$$

O  $\text{Po}^{218}$  é o descendente, de número atômico menor que 222, mais próximo do radônio na família do  $\text{U}^{238}$ . O sistema de coleta e detecção tem para esse isótopo resposta rápida quanto à aquisição de contagens (eventos), uma vez que o primeiro íon produzido no precipitador é mais rapidamente depositado sobre o detector. Quanto ao  $\text{Po}^{214}$ , sua resposta é mais lenta levando-se em conta os outros elementos metálicos de curta meia-vida que se encontram na cadeia de desintegração entre o  $\text{Po}^{218}$  e o  $\text{Po}^{214}$  ( $\text{Pb}^{214}$  e  $\text{Bi}^{214}$ ).

A equação que descreve a taxa de variação com o tempo dos íons de polônio 218 no sistema levando-se em conta as produções e perdas por decaimento é:

$$\frac{d}{dt} N_{\text{Po}^{218}} = \lambda_{\text{Rn}^{222}} N_{\text{Rn}^{222}} - \lambda_{\text{Po}^{218}} N_{\text{Po}^{218}} \quad (3.54)$$

A Equação 3.54, diferentemente da Equação 3.42, não leva em consideração o termo associado ao fluxo de diluição como termo de perda no sistema. Esta equação diferencial decorrente do decaimento radioativo do  $\text{Po}^{218}$  não inclui explicitamente a dependência com a diluição porque as perdas consideradas já estão presentes na expressão através do termo  $N_{\text{Rn}^{222}}$  que define o número de átomos de  $\text{Rn}^{222}$  existentes no circuito resultado de produção e perdas no sistema tomando como referência a fração de átomos que escapam para o exterior pela ação do gás de arraste como também a quantidade liberada pela fonte padrão.



Usando o valor  $N_{Rn}^{222}$  na última expressão, aparecerá:

$$\frac{d}{dt} N_{Po}^{218} + \lambda_{Po}^{218} N_{Po}^{218} = \lambda_{Rn}^{222} \Gamma \left( 1 + \Pi \cdot e^{-\frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma} t} \right) \quad (3.55)$$

Tem-se então como solução de (3.55):

$$N_{Po}^{218}(t) = \frac{\lambda_{Rn}^{222} \Gamma}{\lambda_{Po}^{218}} + \frac{\lambda_{Rn}^{222} \Gamma \Pi}{\lambda_{Po}^{218} - \frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma}} \cdot e^{-\frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma} t} + C^{(2)} \cdot e^{-\lambda_{Po}^{218} t} \quad (3.56)$$

A condição de contorno necessária para a determinação de  $C^{(2)}$  basea-se no mesmo princípio utilizado na determinação de  $C^{(1)}$ .

$$\lim_{t' \rightarrow T} N_{Po}^{218}(t') \Big|_{\text{subsistema B}} \Leftrightarrow \lim_{t \rightarrow 0} N_{Po}^{218}(t) \Big|_{\text{subsistemas A+B}}$$

ou seja:

$$N_{Po}^{218}(T) = \frac{\lambda_{Rn}^{222} \Gamma}{\lambda_{Po}^{218}} + \frac{\lambda_{Rn}^{222} \Gamma \Pi}{\lambda_{Po}^{218} - \frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma}} + C^{(2)} \quad (3.57)$$

A constante de integração  $C^{(2)}$  fica determinada desde que  $N_{Po}^{218}(T)$  seja conhecido.

Mantendo-se as válvulas 7.a e 7.b fechadas:

$$\frac{d}{dt'} N_{Po}^{218} = \lambda_{Rn}^{222} N_{Rn}^{222} - \lambda_{Po}^{218} N_{Po}^{218} \Big|_{\text{subsistema B}} \quad (\text{Apêndice A}) \quad (3.58)$$

onde

$$N_{\text{Rn}}^{222} = N_{\text{Rn}}^{222}(t') = \frac{\epsilon \lambda_{\text{Ra}}^{226} N_{\text{Ra}}^{226}(0)}{\lambda_{\text{Rn}}^{222}} \left( 1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}^{222} t'} \right) \quad (3.59)$$

$N_{\text{Po}}^{218}$ : Número de átomos de  $\text{Po}^{218}$ , que circula no subsistema B decorrentes dos átomos de  $\text{Rn}^{222}$  livres neste subsistema.

Através das duas últimas equações tem-se:

$$\frac{d}{dt'} N_{\text{Po}}^{218} + \lambda_{\text{Po}}^{218} N_{\text{Po}}^{218} = \lambda_{\text{Rn}}^{222} \frac{\epsilon A^{\text{Ra}}}{\lambda_{\text{Rn}}^{222}} \left( 1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}}^{222} t'} \right) \quad (3.60)$$

Assim:

$$N_{\text{Po}}^{218}(t') = \epsilon A^{\text{Ra}} \left( \frac{1}{\lambda_{\text{Po}}^{218}} - \frac{e^{-\lambda_{\text{Rn}}^{222} t'}}{\lambda_{\text{Po}}^{218} - \lambda_{\text{Rn}}^{222}} \right) + C^{(3)} \cdot e^{-\lambda_{\text{Po}}^{218} t'} \quad (3.61)$$

CONDIÇÃO INICIAL DE CONTORNO:

Quando  $t' = 0$ ,  $N_{\text{Po}}^{218} = 0 \therefore C^{(3)} =$

$$= \epsilon A^{\text{Ra}} \left( \frac{1}{\lambda_{\text{Po}}^{218} - \lambda_{\text{Rn}}^{222}} - \frac{1}{\lambda_{\text{Po}}^{218}} \right) \quad (3.62a)$$

e também:

$$\lim_{t' \rightarrow T} N_{\text{Po}}^{218}(t') = N_{\text{Po}}^{218}(T) \quad (3.62b)$$

A Equação 7.16 estabelece a dependência da função  $N_{PO}^{218} = N_{PO}^{218}(t, C^{(2)})$ .

Mas,  $C^{(2)} = C^{(2)}(N_{PO}^{218}(T))$ , por outro lado:

$$N_{PO}^{218}(T) = N_{PO}^{218}(T) (C^{(3)})$$

onde  $C^{(3)}$  só depende de constantes conhecidas.

Se sequenciarmos as operações acima teremos:

$$C^{(3)} \rightarrow N_{PO}^{218}(t') \rightarrow \lim_{t' \rightarrow T} N_{PO}^{218} \rightarrow C^{(2)} \rightarrow N_{PO}^{218}(t)$$

portanto:

$$N_{PO}^{218}(t) = \gamma_T \cdot e^{-\lambda_{PO}^{218} t} - \beta_{\Gamma, II} \left( e^{-\lambda_{PO}^{218} t} - e^{-\frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma} t} \right) + \frac{\lambda_{Rn}^{222}}{\lambda_{PO}^{218}} \Gamma \left( 1 - e^{-\lambda_{PO}^{218} t} \right)$$

(3.63)

As constantes  $\gamma_T$  e  $\beta_{\Gamma, II}$  são definidas como:

$$\gamma_T = \frac{\epsilon A^{Ra}}{\lambda_{PO}^{218} - \lambda_{Rn}^{222}} \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_{Rn}^{222} T} \right) - \right.$$

$$\left. - \frac{\lambda_{Rn}^{222}}{\lambda_{PO}^{218}} \left( 1 - e^{-\lambda_{PO}^{218} T} \right) \right] \quad (3.64)$$

$\gamma_T = \gamma_T(T)$ , onde  $T$  é um valor fixo (tempo de acúmulo de material radioativo no subsistema B).

$$\beta_{\Gamma, \Pi} = \frac{\Gamma \cdot \Pi \cdot \lambda_{Rn}^{222}}{\lambda_{Po}^{218} \left( 1 - \frac{\epsilon A^{Ra}}{\Gamma \lambda_{Po}^{218}} \right)} \quad (3.65)$$

com  $\beta_{\Gamma, \Pi} = \beta_{\Gamma, \Pi}(\phi_d, T)$ .

Análise de casos extremos da Equação 3.63:

$$\lim_{t \rightarrow 0} N_{Po}^{218}(t) = \gamma_T \quad (3.66)$$

Como é demonstrado no Apêndice B, o termo  $\gamma_T$  é o valor de  $N_{Po}^{218}(t')$  na Equação 3.61 quando  $t' \rightarrow T$  e  $C^{(3)}$  assume o valor correspondente à Equação 3.62b. Em outras palavras, o valor inicial da atividade do  $Po^{218}$  ( $\lambda_{Po}^{218} N_{Po}^{218}$ ) depende somente da fonte de produção do nuclídeo, da constante de decaimento do mesmo e do tempo de acúmulo  $T$ .

$$\begin{aligned} \lim_{t \rightarrow \infty} N_{Po}^{218}(t) &= \frac{\lambda_{Rn}^{222}}{\lambda_{Po}^{218}} \Gamma = \frac{\lambda_{Rn}^{222}}{\lambda_{Po}^{218}} \cdot \frac{\epsilon A^{Ra}}{\lambda_{Rn}^{222} + \frac{\phi_d}{Vol}} = \\ &= \frac{\epsilon A^{Ra}}{\lambda_{Po}^{218}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\phi_d}{\lambda_{Rn}^{222} \cdot Vol}} \end{aligned} \quad (3.67)$$

Assim, o valor de  $N_{Po}^{218}(t)$  para intervalos de tempo muito grandes depende da fonte de produção,  $A^{Ra}$ , e da forma com a qual a diluição é introduzida no sistema. Quando maior o fluxo de diluição menor será o valor da atividade de  $Po^{218}$  atingido no seu estado de equilíbrio (como era esperado intuitivamente). Neste caso não existe a dependência com o tempo de acúmulo ( $T$ ).

Os termos constantes na equação que descrevem a variação do número de átomos de  $\text{Po}^{218}$  no tempo (3.63) são além das constantes de decaimento ( $\lambda_k$ , para o k-ésimo nuclide), o tempo de acúmulo (arbitrariamente escolhido) e a atividade radioativa do  $\text{Ra}^{226}$  ( $A^{\text{Ra}} = \lambda_{\text{Ra}^{226}} \cdot N_{\text{Ra}^{226}}(0)$ ).

$N_{\text{Ra}^{226}}(0)$  é calculado a partir da massa da fonte padrão empregada:

- massa da amostra: 2,5 g

- massa de Urânio 238 ( $M_{\text{U}^{238}} = 0,025$  g)

-  $N_{\text{U}^{238}} = \frac{M_{\text{U}}}{A_{\text{U}^{238}}} \cdot N_{\text{O}}$ ,  $N_{\text{O}} \sim 6,0249 \cdot 10^{23}$  (Número de Avogadro)

$$N_{\text{U}^{238}} = \frac{0,025}{238} \cdot 6,02 \cdot 10^{23} \sim 0,632 \cdot 10^{20} \text{ átomos}$$

Admitindo-se o equilíbrio secular:  $\lambda_{\text{U}^{238}} N_{\text{U}^{238}} = \lambda_{\text{Ra}^{226}} N_{\text{Ra}^{226}}(0)$ :

$$N_{\text{Ra}^{226}}(0) = \frac{\lambda_{\text{U}^{238}}}{\lambda_{\text{Ra}^{226}}} \cdot N_{\text{U}^{238}}$$

Usando os valores das constantes de desintegração na figura de decaimento radioativo (introdução):

$$N_{\text{Ra}^{226}}(0) = \frac{4,87 \cdot 10^{-18} \text{ s}^{-1}}{1,36 \cdot 10^{-11} \text{ s}^{-1}} \cdot 0,632 \cdot 10^{20} \sim 2,263 \cdot 10^{13} \text{ átomos}$$

$$A^{\text{Ra}} = \lambda_{\text{Ra}^{226}} \cdot N_{\text{Ra}^{226}}(0) \sim 1107960 \text{ desintegrações} \cdot \text{h}^{-1}$$

$\epsilon \sim 0,088$  (determinado experimentalmente empregando a técnica descrita por Barreto, 1971) - Apêndice E.

À relação procurada entre número de eventos contados por unidade de tempo e atividade radioativa no interior do circuito (subsistema A+B) num regime de equilíbrio é estabelecida entre o valor esperado para a atividade a partir da descrição teórica e o valor médio das contagens adquiridas no equilíbrio.

Tomando-se o número de contagens por segundo como variável dependente e atividade em  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  como independente, terá se estabelecido a relação unívoca entre atividade e contagem no equilíbrio:

$$\text{Atividade (Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = f(\text{contagem/segundo}) \quad (3.67b)$$

A atividade teórica no equilíbrio assume valor único, que apenas depende das condições iniciais do sistema. As contagens por outro lado não assumem essa uniformidade uma vez que a lei do decaimento radioativo é estatística e obedece à distribuição de Poisson. Tem-se por isso, que cada ponto relativo à atividade calculada para o patamar é na verdade a média dos pontos no patamar de equilíbrio para um número suficientemente grande de pontos observados experimentalmente, Fig. 3.18.

É intuitivo perceber que aumentando-se o número de contagens para o mesmo intervalo de tempo de aquisição a atividade radioativa estaria progressivamente aumentando no interior do hemisfério de precipitação onde uma parcela de ar é amostrada. Não é objetivo deste trabalho analisar a distribuição de contagens ou a relação contagem/atividade radioativa em períodos de transição entre estados de equilíbrio sucessivos, onde a função  $N_{\text{Po-218}}$  apresenta comportamento não-linear. Somente os valores no equilíbrio são tomados. Partimos da hipótese inicial de que nos patamares de equilíbrio a relação entre contagem e atividade é linear, pelo menos no que se refere às afixas atividades.

O par ordenado (0,0) corresponde, teoricamente, a origem da curva de calibração: "zero contagem corresponde à zero atividade radioativa local", no entanto é fato experimental levar em consideração

o valor de "background" do sistema de detecção devido à presença de ruído eletrônico.

Esse procedimento acompanha o trabalho de calibração e por este motivo antes de ser iniciada a calibração o detector é descontaminado da presença de qualquer elemento radioativo sobre sua superfície ativa. Adotando esse procedimento o teste de ruído é realizado com o detector coberto com uma superfície protetora.

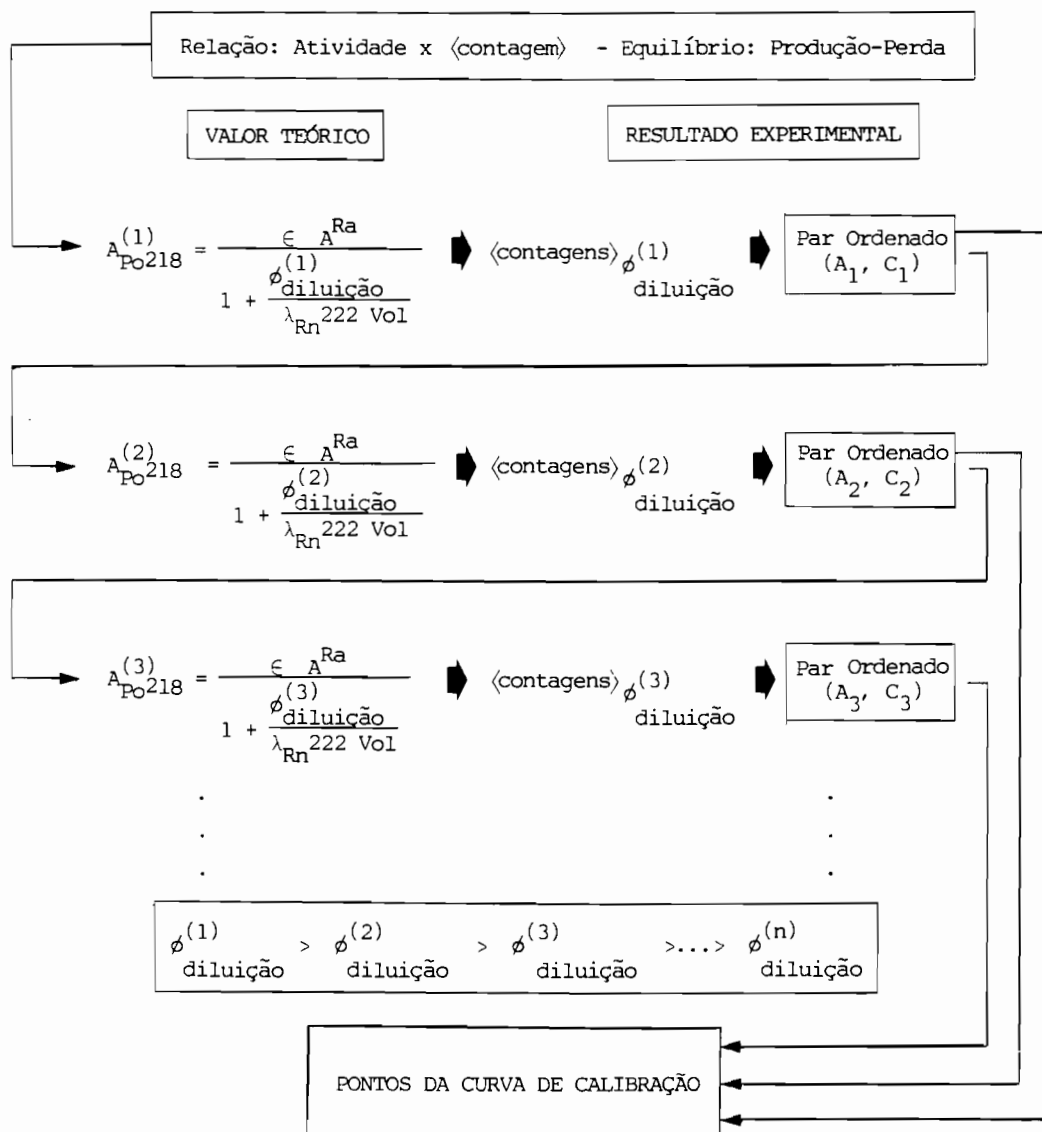


Fig. 3.18 - Diagrama para a determinação da curva de calibração.

Cada valor teórico para a atividade radioativa (obtido através das condições do sistema) associa-se um valor experimental nas mesmas condições.

Um pequeno número de contagens é normalmente observado, resultante do ar residente numa pequena película entre a área ativa do detector e a sua cobertura protetora, contendo  $Rn^{222}$ . O sistema é deixado operante até que todo radônio decaia completamente. Inicia-se a partir de então a medida do ruído não mais devido ao gás residual mas à eletrônica do sistema em si. Contagens adicionais poderão ser introduzidas por interferências externas ao sistema como micro efeito corona devido a fonte de alta tensão no precipitador eletrostático.

Os resultados indicam que o ruído eletrônico é consideravelmente pequeno nessas condições.

O valor máximo do "background" levando-se em conta às intensidades combinadas do  $Po^{218}$  e  $Po^{214}$  em 4, 29 dias de medidas, apresenta valor aproximado de  $2,5 \pm 8.1 \cdot 10^{-5}$  contagens por segundo, o que torna o aparelho ideal em medidas de  $Rn^{222}$  em baixos níveis de concentração. O coeficiente linear da curva de calibração obtido pelo valor do ruído independe da medida do gás amostrado na câmara, e poderá ser utilizado para as demais calibrações desde que a eletrônica do sistema não seja modificada.

Outro aspecto experimental de relevância nas medidas é que os fluxos de diluição devem atribuir, preferencialmente, uma escala decrescente de valores. Caso contrário, iniciar a calibração com alta atividade (baixo fluxo) e diminuí-la gradualmente, terá como consequência a introdução de contaminação no detector decorrente da deposição inicial de elevado número de isótopos de polônio prejudicando as medidas nas baixas atividades das etapas posteriores.

A forma funcional da Equação 3.67b será apresentada no final deste capítulo.

Será apresentado a seguir a equação de decaimento para o nuclídeo  $Po^{214}$ , isótopo radioativo que deriva do  $Po^{218}$  após 1 emissão alfa e 2  $\beta^-$  como mostra a figura de decaimento. O intervalo de tempo entre 2 emissões alfa ( $Po^{218}$  e  $Po^{214}$ ) sucessivas deve levar em conside-



ração as meias-vidas dos 2 emissores de partículas  $\beta^-$  ( $\text{Pb}^{214}$  e  $\text{Bi}^{214}$ ) da série radioativa cuja soma corresponde à aproximadamente 46,5 min.

Tal como foi efetuado na obtenção da Equação 3.63, o número de átomos de  $\text{Pb}^{214}$  presentes no sistema da Fig. 3.17 num instante arbitrário "t" será:

$$\frac{d}{dt} N_{\text{Pb}^{214}} = \lambda_{\text{Po}^{218}} N_{\text{Po}^{218}} - \lambda_{\text{Pb}^{214}} N_{\text{Pb}^{214}} \quad (3.68)$$

Onde o termo  $N_{\text{Po}^{218}}$  traz dentro da sua expressão completa a relação escape-produção necessária para se determinar a atividade do  $\text{Pb}^{214}$  presente no subsistema B.

A Equação 3.63 poderá assumir uma forma mais compactada desde que seja possível definir coeficientes multiplicativos e aditivos nessa expressão.

Agrupando as exponenciais na Equação 3.63, aparecerá:

$$N_{\text{Po}^{218}}(t) = \frac{\lambda_{\text{Rn}^{222}}}{\lambda_{\text{Po}^{218}}} \Gamma + \left( \gamma_{\text{T}} - \beta_{\Gamma, \text{II}} - \frac{\lambda_{\text{Rn}^{222}}}{\lambda_{\text{Po}^{218}}} \right) \cdot e^{-\lambda_{\text{Po}^{218}} t} + \beta_{\Gamma, \text{II}} e^{-\frac{\lambda_{\text{Ra}}}{\Gamma} t} \quad (3.69)$$

definindo:

$$a_0 = \frac{\lambda_{\text{Rn}^{222}} \Gamma}{\lambda_{\text{Po}^{218}}}$$

$$\beta_{\Gamma, \text{II}} \equiv \beta$$