

## MEDIDA DE LA EXHALACIÓN DE RADÓN EN EL SUELO

L.S. Quindós Poncela<sup>1</sup>, P.L. Fernández Navarro<sup>1</sup>, M.L. Bordonoba<sup>2</sup>, J. Gómez Arozamena<sup>1</sup>, C. Sainz Fernández<sup>1</sup>, J. Arteche García<sup>1</sup>  
<sup>1</sup>Cátedra de Física Médica, Facultad de Medicina, Universidad de Cantabria, Santander, España  
<sup>2</sup>Empresa Nacional del Uranio, Saelices el Chico, Salamanca, España

### RESUMEN

Se presenta una metodología a seguir para la medida de la exhalación de radón procedente de los suelos a partir de la absorción de este en cartuchos de carbono activo e incluye procedimientos para su correcta calibración. La aplicación de esta metodología en zonas uraníferas ya restauradas pone de manifiesto su eficacia cuando se trata de caracterizar grandes extensiones de terreno.

### SOIL RADON EXHALATION MEASUREMENTS

### ABSTRACT

A methodology for the measurement of radon exhalation rate coming from soils by using charcoal activated is shown in this paper. Calibration procedures are also discussed. Data of exhalation rate in the vicinity of an uranium region area are referred showing the benefit of the method proposed when wide surfaces of terrain must be analyzed.

*Palabras clave: radon; exhalation; radiation doses; Spain; soils; radiation monitoring; natural uranium*

### INTRODUCCIÓN

En la naturaleza, el radón, elemento de la familia radiactiva del  $^{238}\text{U}$ , es el origen de más del 50% de la dosis recibida por la población por exposición a fuentes naturales de radiación ionizante. El valor medio de la dosis en áreas de fondo normal es de 1,2 mSv por año, y puede alcanzar hasta los 10 mSv por año en algunos lugares [1].

Las zonas uraníferas donde se realizan operaciones de extracción y tratamiento de minerales de uranio poseen características geológicas relacionadas con la existencia en el suelo de abundantes elementos de la familia radiactiva del  $^{238}\text{U}$ . Esta abundancia produce una tasa de exposición proveniente del suelo y una concentración de algunos radioelementos en los alimentos, en el agua y en el aire, superiores a los valores promedio; lo que se define, en algunas ocasiones como zonas de alto nivel de radiación [2]. Entre los elementos existentes en el aire se encuentra el gas radiactivo radón, que sale del terreno en mayor o menor proporción en dependencia de su concentración en  $^{226}\text{Ra}$  y de las propiedades del suelo en cuanto a la difusión del gas [3].

El radón que se exhala del terreno se puede acumular en el interior de las viviendas de estas regiones, lo que produce dosis de radiación por inhalación a sus residentes que pueden alcanzar valores elevados [4]. Por ello, el conocimiento de las tasas de exposición debidas al radón adquiere gran importancia, ya que es necesario evaluar el impacto derivado de estas operaciones frente a la exposición debida al propio fondo natural, el cual sirve, además, de referencia para las operaciones de clausura y restauración de los terrenos afectados por las labores mineras, una vez que han cesado las actividades productivas.

El impacto que puede producir el radón exhalado al ambiente debido a su posible acumulación en locales próximos hace que existan distintas normativas que limitan su valor, de las cuales la más empleada es la que fija en 2664 Bq/m<sup>2</sup> h [5]. Para alcanzar el valor de la exhalación de radón por las eras de mineral se recubren estas con capas de material, con un valor pequeño del coeficiente de difusión que disminuye la salida del gas a la atmósfera. La protección radiológica está dirigida a la adopción de medidas para

limitar la salida de radón de las eras, y su efectividad sólo puede ser evaluada a través de la medida sistemática de la exhalación en ellas.

En este trabajo se presenta una descripción de la aplicación práctica de un proceso de calibración puesto a punto en la Universidad de Cantabria para un método de medida de la exhalación de radón bien establecido en este campo, y que estudia su idoneidad para utilizarlo principalmente en la restauración de zonas en las que se han desarrollado trabajos de extracción de uranio.

**MATERIALES Y MÉTODOS**

El método empleado para realizar la medida de la exhalación de radón incluye la absorción de este en carbón activado, colocado en un colector apropiado. Este procedimiento, para diferentes geometrías de colectores, se ha empleado extensivamente desde la publicación del artículo de Countess [6] y consiste en colocar el colector sobre la superficie del suelo a medir lo que permite que el carbón activado absorba el radón contenido en él por un período de tiempo, que generalmente es de 24 horas. Pasado ese tiempo, el radón acumulado en el carbón se mide por espectrometría gamma, la cual aporta datos que guardan relación directa con la exhalación de radón del suelo que se pretende determinar.

El colector empleado en nuestro laboratorio, aparece en la figura 1 y en él se colocan, aproximadamente, 20 gramos de carbón activado.

Para la medida de la exhalación de radón en el terreno, los colectores se despliegan en bloques de tres, que cubren una superficie de un metro cuadrado; se identifica el punto elegido por sus coordenadas geográficas, así como el tiempo del comienzo de la exposición, y aproximadamente 24 horas después se retiran los colectores. A continuación, el carbón activado se sella con unas tapas que impiden la salida del radón, el cual alcanzará el equilibrio con sus descendientes a las cuatro horas y estará preparado para su análisis en el laboratorio.

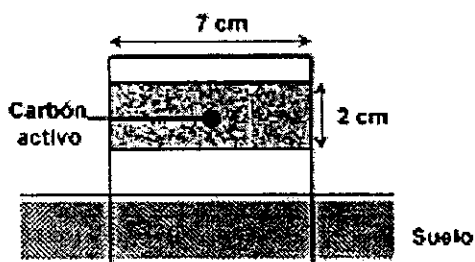


Figura 1

La cantidad de radón adsorbida en el carbón activado se determina por espectrometría gamma a partir del pico de 609 KeV del <sup>214</sup>Bi y triplete del <sup>214</sup>Pb, ambos descendientes del radón. El sistema de espectroscopía gamma consiste en un cristal de NaI(Tl), un tubo fotomultiplicador, un amplificador, y un contador de impulsos.

El método de medida de la exhalación de radón propuesto incluye dos supuestos básicos. Primero, que el carbón activado es 100% eficaz para retener el radón, lo cual para períodos de tiempo cortos (< 36 horas) este supuesto es considerado válido [7], ya que el carbón activado no puede ser 100% eficaz si se usan tiempos de la exposición más largos. El factor principal que afecta la eficacia del carbón de leña para la colección del radón es la temperatura.

Segundo, que la exhalación de radón procedente del suelo medido es constante para todo el período de exposición y, aunque se conoce que esta condición raramente se da, los errores introducidos derivados de su aceptación son pequeños.

Una vez fijada la geometría de la muestra de carbón activo empleada para la medida de la exhalación de radón (figura 1), el contenido de radón absorbido en ella es función no sólo de la exhalación del suelo sobre el que se asienta y del tiempo de exposición empleado, sino también del valor que toma el coeficiente de difusión efectivo del gas en el carbón.

Este coeficiente depende básicamente del tipo de carbón activado utilizado (granulometría, textura, porosidad, densidad) y de la capacidad de absorción del radón, caracterizada por el coeficiente de absorción que, a su vez depende, fundamentalmente del contenido de humedad de la muestra.

En ausencia de ganancia de humedad, y al cabo de un tiempo de exposición T suficientemente grande (en la práctica del orden de 4-5 días para un espesor de la muestra de unos 2 cm), el contenido total de radón absorbido en el carbón activado seco tiende a alcanzar un valor de equilibrio de Q<sub>0</sub>(∞) cuyo valor, una vez resuelta la ecuación general de difusión del radón en la muestra de carbón empleada, tiene la siguiente expresión:

$$Q_0(\infty) = \frac{E \cdot S}{\lambda} (1 - \operatorname{sech}((\frac{\lambda}{D_0})^{0.5} \cdot d)) \quad (1)$$

donde E es la exhalación de radón por unidad de superficie, S la superficie de exposición, λ es la constante de desintegración del radón, d el espesor del techo de carbón activado en el interior del cartucho que contiene la muestra y D<sub>0</sub> el coeficiente

de difusión efectivo del  $^{222}\text{Rn}$  en la muestra seca de carbón activado.

La calibración del método de medida de la exhalación de radón mediante carbón activado se realiza en el laboratorio a partir de una muestra homogénea de suelo seco, extendida en forma de capa de espesor uniforme, aproximadamente de unos 10 cm, en el interior de un cajón rectangular de madera de área suficientemente grande (a efectos prácticos, un valor en torno a  $0,5 \text{ m}^2$  resulta apropiado).

Sobre la zona central de la superficie de la muestra de suelo se dispone de una serie de cartuchos de carbón activado seco, cada uno de los cuales se deja expuesto durante un período de tiempo diferente con el objetivo de analizar la variación de la cantidad de radón absorbida con el tiempo de exposición.

Una vez retirado cada cartucho de carbón y alcanzado el equilibrio radiactivo entre el radón absorbido en él y sus descendientes de vida corta, la determinación de la actividad del gas retenida en el carbón se realiza por espectrometría gamma, a partir del recuento global de las emisiones registradas en la zona del espectro que abarca el triplete del  $^{214}\text{Pb}$  y el fotopico de 609 KeV del  $^{214}\text{Bi}$ . La eficiencia del método espectrométrico de medida se logra con el empleo de un cartucho de carbón activado sellado, de la misma geometría que los empleados en la medida de la exhalación, en cuyo interior se halla disperso un volumen conocido de una solución patrón de  $^{226}\text{Ra}$  con una actividad total de 737 Bq.

El cálculo específico de la actividad de  $^{222}\text{Rn}$  absorbida en el carbón activado después de un tiempo de exposición T se realiza por medio de la expresión:

$$Q(T) = \frac{\lambda \cdot N \cdot e^{-\lambda \cdot t_c}}{\epsilon \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_c})} \quad (2)$$

donde:

- N: número neto de cuentas registrado en la zona del espectro analizada.
- $\epsilon$ : eficiencia de detección del método espectrométrico en cpm/Bq.
- $\lambda$ : constante de desintegración radiactiva del  $^{222}\text{Rn}$  expresada en  $\text{min}^{-1}$ .
- $t_c$ : tiempo de conteo empleado.
- $t_d$ : tiempo transcurrido desde el final de la exposición del cartucho de carbón hasta el comienzo de su conteo, ( $t_c$  y  $t_d$  expresados ambos en minutos).

A partir de los resultados experimentales obtenidos en este proceso de calibración, se puede establecer la dependencia funcional que presenta el contenido de radón absorbido en el carbón con el tiempo de exposición t, y se ajustan los resultados mediante el método de regresión de mínimos cuadrados a una ecuación del tipo:

$$Q_0(\infty) - Q_0(T) = A e^{-B \cdot t} \quad (3)$$

A partir de las constantes A y B resultantes del ajuste anterior se pueden estimar tanto el coeficiente de difusión efectivo,  $D_0$  del  $^{222}\text{Rn}$  en el carbón activado seco como la exhalación por unidad de área E, del suelo empleado en la calibración. El valor de esta última constituye un índice válido de la bondad del proceso de calibración realizado, ya que puede ser contrastado con el obtenido por algún otro método de medida de la exhalación (método del acumulador) [8,9], así como el predicho en la teoría, teniendo en cuenta el contenido de  $^{226}\text{Ra}$  y las características físicas y geométricas de la muestra de suelo considerada a través de las expresiones siguientes:

$$E = R \eta \rho \sqrt{\lambda D} \exp(\sqrt{\lambda / D} \cdot T) \quad (4)$$

donde:

- E= exhalación de radón por unidad de área, pCi/cm<sup>2</sup> s.
- R= concentración de radio 226 en el suelo patrón, pCi/g.
- $\eta$ = poder de emanación del suelo patrón, %.
- $\rho$ = la densidad de volumen del suelo patrón, g/cm<sup>3</sup>.
- $\lambda$ = constante de desintegración del radón  $2,1 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ .
- D= coeficiente de difusión eficaz, cm<sup>2</sup>/s.
- T= espesor del suelo patrón, cm.

Para una fuente delgada, la ecuación (4) se reduce a:

$$E = R \eta \rho \lambda T$$

En el caso más general de la medida *in situ* de la exhalación de radón de un suelo, la masa de carbón activado absorberá también una determinada humedad (h) durante el tiempo (T) de exposición. En estas condiciones, una vez analizada por espectrometría gamma la muestra de carbón recogida, la determinación de la exhalación se llevará a cabo mediante la expresión general:

$$E = \frac{\lambda^2 \cdot N \cdot e^{-\lambda \cdot t_d}}{\epsilon \cdot S \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_c}) \cdot CF(h)} \quad (5)$$

donde  $CF(h)$  es un factor de calibración que, para un tiempo de exposición dado, depende fundamentalmente de la humedad retenida en el carbón.

Fijando un determinado tiempo de exposición, el estudio de la dependencia funcional del factor  $CF$  con el contenido de humedad del carbón se realizó en el laboratorio, con una serie de cartuchos de carbón activado de diferentes contenidos de humedad sobre la superficie del suelo de calibración. El contenido variable de humedad en los cartuchos se obtiene introduciéndolos en un recipiente herméticamente cerrado, saturado de vapor de agua, y manteniéndolos en su interior durante diferentes períodos de tiempo comprendidos entre las 3 y las 72 horas. El tiempo de exposición recomendado en la mayoría de los protocolos internacionales sobre medida de exhalación de radón mediante carbón activado es de 24 horas, período durante el cual, se ha podido comprobar, que la humedad ganada inicialmente por los cartuchos de carbón se mantiene prácticamente constante.

A partir de las actividades de radón medidas en los distintos cartuchos al cabo de un tiempo de exposición de 24 horas, se obtiene la ecuación de regresión que traduce la relación funcional del factor de calibración  $CF(h)$  con el contenido de humedad del carbón, como se muestra en la figura 2. Esta ecuación permite estimar el correspondiente factor de calibración  $CF(h)$  a aplicar en cada medida concreta de exhalación *in situ*, teniendo en cuenta solamente el valor promedio de la humedad ganada por el carbón activado durante las 24 horas que permanece expuesto sobre el suelo analizado.

Para estimar un promedio estadísticamente válido de exhalación de radón en un suelo, se deben medir en un número apropiado de puntos de este en dependencia de la homogeneidad del suelo y la precisión deseada de la estimación. Para fijarlo se pueden emplear técnicas estadísticas normales [10] o más complejas como las que aparecen en el documento NUREG 1505, 1997 [11] y que aplicamos en nuestro laboratorio. El procedimiento operativo para realizar estas medidas aparece recogido a continuación:

1. Asegurar que la ubicación del lugar de medida esté nivelado y libre de piedras grandes y vegetación.
2. Poner el colector sobre el suelo e insertar el borde de la tapa o cápsula firmemente en la tierra con el cuidado de no empujarlo demasiado y tratar que el espacio entre la superficie que se mida y el carbón activado sea mínimo.
3. Anotar la situación (GPS), No. de identificación de cada uno de los tres colectores empleados por punto, fecha y hora de colocación.
4. Dejar el colector aproximadamente 24 horas.
5. Quitar los colectores, anotar la hora de recogida, pesarlos para conocer el incremento de humedad y sellarlos con las tapas que impidan el escape de radón.
6. Transportar los colectores al laboratorio de radiactividad ambiental de la Universidad de Cantabria y realizar la medición por espectrometría gamma de la actividad en el colector según el protocolo seguido por esa Universidad.

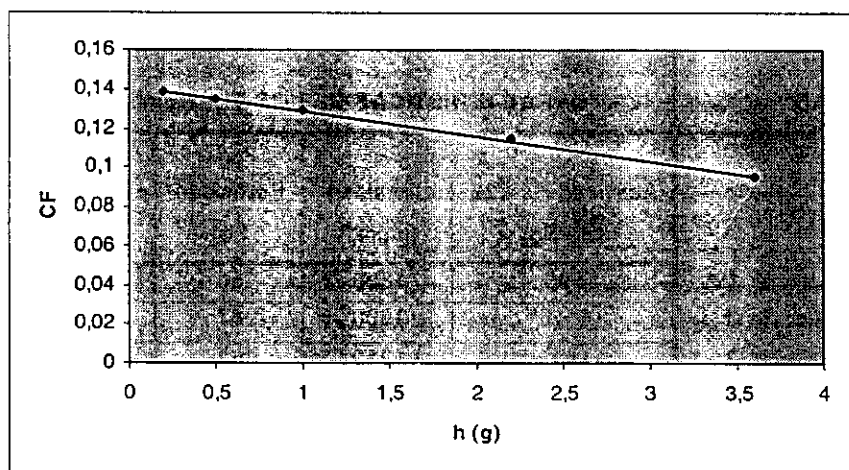


Figura 2

**RESULTADOS**

Con el protocolo expuesto hemos desarrollado medidas de la exhalación de radón en las instalaciones uraníferas de la Empresa Nacional del Uranio (ENUSA) situadas en la provincia de Salamanca. Las tablas 1 y 2 recogen, los valores más importantes encontrados, así como las características básicas de los suelos sobre los que se realizaron las medidas.

Dado que para las condiciones estándares de medida, el límite de detección del método está en los 20 Bq/m<sup>2</sup> h, y que la exhalación media de los suelos a nivel mundial se puede estimar en unas dos veces dicha cantidad, el método propuesto resulta apropiado, por su bajo costo, cuando se desee realizar medidas de la exhalación sobre superficies amplias, principalmente cuando van a ser sometidas a procesos de restauración en los que el valor del parámetro debe ser controlado para que su incidencia sobre la población resulte ser mínima.

Tabla 1. Medida de exhalación de radón en los suelos

ZONAS	MEDIDA DE EXHALACIÓN DE RADÓN		
	Exhalación (Bq/m <sup>2</sup> h) (x 10 <sup>4</sup> )	SD	Intervalo (Bq/m <sup>2</sup> h) (x 10 <sup>4</sup> )
Suelo natural.....1	0,102	0,075	0,06 - 0,20
Dique de estériles.....2	1,14	0,64	0,59 - 3,06
Corta sin restaurar.....3	1,37	1,81	0,18 - 6,96
Zona restaurada.....4	0,046	0,024	0,018 - 0,091
Zona restaurada.....5	0,034	0,017	0,011 - 0,18
Zona restaurada.....6	0,037	0,045	0,09 - 0,19
Zona restaurada.....7	0,029	0,012	0,013 - 0,053

Tabla 2. Características de los terrenos medidos

ZONAS	CARACTERÍSTICAS DE LOS TERRENOS			
	Actividad Ra-226 (Bq/Kg)	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )	Porosidad (%)	Humedad (%)
Suelo natural.....1	680	1300	50	22
Dique de estériles.....2	6110	1300	57	28
Corta sin restaurar.....3	4870	1210	53	34
Zona restaurada.....4	240	1210	57	21
Zona restaurada.....5	420	1230	53	32
Zona restaurada.....6	400	1100	52	34
Zona restaurada.....7	640	1200	48	27

**CONCLUSIONES**

La conclusión más importante del trabajo es que se dispone de un método contrastado para la medida de la exhalación de radón, sencillo y de bajo costo que puede ser empleado a través de una tecnología disponible en cualquier laboratorio de medida de la radiactividad natural, con el cual ha sido posible comprobar la correcta restauración que se lleva a cabo en parte de la mina de uranio situada en Saelices el Chico, Salamanca, España.

**REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

[1] QUINDÓS, L.S., SOTO, J., FERNÁNDEZ, P.L., RÓDENAS, C., Estimate of external gamma exposure in Spain. *Radiation Protection Dosimetry* (1992)45:527-529.  
 [2] QUINDÓS, L.S., SOTO, J., FERNÁNDEZ, P.L., DELGADO, M.T., Radón en el agua de una región de alto nivel de radiación natural, *Bol. Soc. Esp. Hidrol. Med.* (1992) 2, 85-88.  
 [3] PEARSON, J., Emanation of Rn-222 from soils and its use as a tracer, *J. Geophysical Research* (1965)70 5279-5287.

[4] QUINDÓS, L.S., SOTO, J., FERNÁNDEZ, P.L., Exposure to natural sources of radiation in Spain, *Nucl. Tracks, Radiat. Measur.* Vol 21 (1993)295-298.  
 [5] U.S. Nuclear Regulatory Commission. Regulatory guide 3.64. Calculation of radón flux attenuation by earthen uranium mill tailings covers, Washington DC, 1989.  
 [6] COUNTESS, R.J. Radón Flux Measurement with a Charcoal Canister Health Physics (1976) 31:455.  
 [7] HARTLEY, J.N., GEE, G.W., BAKER, E.G. Y FREEMAN, H.D., 1981, Radón Barrier Field Test at Grand Junction Uranium Mill Tailings Pile. EOW/UMP-0213, PNL-4539, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1983.  
 [8] QUINDÓS L.S., SOTO, J., FERNÁNDEZ P.L., Measurement of the exhalation rate of radón 222 from solid samples via an accumulation method, Annual Meeting Health Physics Society, Salt Lake City, USA. 1987.  
 [9] QUINDÓS, L.S., FERNÁNDEZ, P.L., SOTO, J., A method for the measurement of the emanation factor for <sup>222</sup>Rn on small samples of porous materials, *Radiation Protection Dosimetry*, (1994)56:171-173.  
 [10] NOETHER, G.E., Simple size determination for some common nonparametric tests. *Journal of the American Statistical Association*, (1997)82:645-647.  
 [11] GOGOLAK, C.V., POWERS, G.E., HUFFERT, A.M., A non parametric statistical methodology for the design and analysis of final status decommissioning surveys. NUREG,1505, New York, 1997.