

LA RELACION Bi-214/Pb-214 COMO TRAZADOR EN LOS PROCESOS DE DIFUSION ATMOSFERICA

por L.S. Quindós, J. Soto y E. Villar
 Departamento de Física Fundamental
 Facultad de Ciencias
 Universidad de Santander

Introducción

El gas radón, ^{222}Rn ($T = 3.8$ días) tiene su origen en la desintegración del ^{226}Ra ($T = 1622$ años), el cual forma parte de la composición de las rocas y suelo de la corteza terrestre, en proporción variable con el tipo de suelo y roca. La Tabla I nos muestra la cadena completa de desintegración.

La utilización del radón como trazador atmosférico, proviene fundamentalmente del hecho de que en función de su periodo, puede encontrarse en la totalidad de la tro-

posfera. Así, la determinación de la concentración de radón en puntos e instantes definidos resulta ser un buen indicador de las masas de aire, ya sea estudiando sus desplazamientos (1) o buscando la procedencia de las mismas (2), confrontando los resultados obtenidos con las corrientes atmosféricas determinadas por las estaciones meteorológicas.

Del mismo modo, la medida de la concentración de radón a distintas alturas nos permite conocer el valor del coeficiente de intercambio turbulento de materia en las

TABLA I

Cadena de desintegración del radón-222

Elemento	Símbolo	Radiación	Vida media	Constante desintegración
Rn-222	Rn	α, β	3.8 días	$1.26 \cdot 10^{-4} \text{ min}^{-1}$
Po-218	Ra A	α	3.05 min	0.228 min^{-1}
Pb-214	Ra B	β	26.8 min	0.0259 min^{-1}
Bi-214	Ra C	β	19.7 min	0.0352 min^{-1}
Po-214	Ra C'	α	$1.5 \cdot 10^{-4}$ s	$2.77 \cdot 10^5 \text{ min}^{-1}$
Pb-210	Ra D	β	22 años	$3.15 \cdot 10^{-2} \text{ año}^{-1}$
Bi-210	Ra E	β	5 días	$9.63 \cdot 10^{-5} \text{ min}^{-1}$
Po-210	Ra F	α	140 días	$3.44 \cdot 10^{-6} \text{ min}^{-1}$
Pb-206	Ra G	-----	Estable	-----

capas bajas de la atmósfera (3). En la misma línea, encontramos investigaciones que abordan la utilización del radón como índice del grado de estabilidad vertical de la atmósfera, tanto en un núcleo urbano como rural (4), encontrando una relación inversa entre el valor de la concentración de radón obtenida y el valor del coeficiente de difusión vertical que nos define el grado de estabilidad existente.

Los estudios realizados sobre el comportamiento en el aire de los descendientes de vida corta del radón son sin embargo, mucho más escasos. Esto es debido principalmente, a la complicada relación que liga la actividad del radón con la de sus primeros descendientes, como consecuencia del mayor número de factores que influyen sobre ellos. Sin embargo, son precisamente estos factores, consecuencia de la fijación de los descendientes a los aerosoles atmosféricos, los que les dan un mayor interés, ya que permiten que puedan ser empleados de modo individual, como trazadores en fenómenos tan distintos como lo son el lavado por lluvia de los aerosoles (5) o la estabilidad vertical de la atmósfera ya mencionadas.

La alta sensibilidad de la espectrometría gamma al desequilibrio entre el segundo y el tercer descendientes del radón (6), junto con el escaso número de resultados experimentales existentes de la razón entre ambos (7) nos han llevado a realizar una serie de medidas que puedan compararse con los resultados teóricos.

Factores que afectan a la razón Bi-214/Pb-214 en el aire

El cálculo de las concentraciones de los descendientes de vida corta del radón en el aire ha sido hecho de forma teórica, introduciendo en la ecuación de difusión para mate-

ria, los términos que dan cuenta de los factores que afectan a las concentraciones. Al hacer esto, se obtiene un conjunto de ecuaciones acopladas que se corresponden con los distintos miembros de la cadena de desintegración del radón. No obstante, debido a la complejidad de las ecuaciones resultantes, para resolver el sistema se hace necesario eliminar parte de los factores introducidos conservando únicamente un pequeño número de ellos (8). Por este motivo, nosotros hemos preferido considerar cada uno de los principales factores por separado en lugar de vernos obligados a simplificar la ecuación de difusión para conseguir su resolución, intentando evaluar la importancia relativa que cada uno de ellos presenta con respecto al resto. Los factores que hemos considerado han sido: Los efectos de lavado, el transporte de masas de aire, la difusión vertical y la existencia o no de un régimen estacionario.

Efecto de lavado

La eliminación de aerosoles atmosféricos cerca del suelo puede ser debida tanto a un proceso seco, por la acción de la gravedad sobre ellos, como a un proceso húmedo por las precipitaciones.

Con respecto al primero, teniendo en cuenta que el tamaño medio de los aerosoles en los que se fijan los descendientes del radón, resulta ser del orden de $0,7 \cdot 10^{-7} - 0,6 \cdot 10^{-5}$ cm (9) y suponiéndoles forma esférica, es posible obtener su velocidad de caída. Por término medio ésta resulta ser de 1m/h, lo que hace que la importancia del efecto gravitatorio sea despreciable.

El efecto de lavado por las precipitaciones ha sido estudiado por métodos analógicos (10) resultando que consiste en una variación del grado de equilibrio que depende de parámetros característicos del tiempo de precipita-

ción. Sin embargo, es un efecto localizado y de escasa duración, por lo que únicamente podría ser detectado mediante medidas realizadas en condiciones de lluvia. No obstante, el coeficiente de lavado para aerosoles del tamaño que estamos considerando, del orden de $0,8-0,4 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (11) es pequeño frente a la constante radiactiva de los descendientes de vida corta y ello hace que este efecto tenga poca importancia con respecto a la propia desintegración radiactiva. Con todo y en nuestras medidas no incluimos las correspondientes a los días de lluvia.

Transporte de una masa de aire

Para conocer la influencia cuantitativa del transporte de una masa de aire en el grado de equilibrio entre el Bi-214 y el Pb-214 es necesario resolver la ecuación de difusión incluyendo el término de advección horizontal, tanto para el radón como para sus tres primeros descendientes, lo cual presenta una gran complejidad debido al hecho de tener que considerar igualmente variaciones en la fuente de producción del radón a las distintas zonas por donde pasa la masa de aire. Sin embargo, un conocimiento cualitativo de esta influencia puede obtenerse considerando la evolución de una masa de aire conteniendo radón y que no sufra difusión vertical. Suponiendo que en el instante inicial únicamente existe una cierta cantidad de gas radón libre de sus descendientes, la aplicación de las ecuaciones de desintegración radiactiva indica que el equilibrio se alcanza dentro de un margen del 10 por ciento a las dos horas y media del instante inicial. Por ello, el transporte de una masa de aire conteniendo radón, tendrá como efecto, si no se consideran intercambios con el exterior, aumentar haciéndola tender a la

unidad, la relación entre las actividades de sus productos de desintegración.

Difusión vertical

El principal proceso que afecta al grado de equilibrio entre el radón y sus descendientes es, sin embargo, la difusión vertical debida a la turbulencia. Para conocer su influencia basta resolver la ecuación de difusión para los dos elementos, resolución ligada a las del ^{222}Rn y del ^{218}Po con la hipótesis de existencia de régimen estacionario, cantidad de producción desde el suelo constante para el radón y nulo para sus descendientes y no existencia de advección horizontal. La resolución de esta serie de ecuaciones, con la condición adicional de que la concentración de cualquier miembro de la cadena sea nula para z infinito, se hace introduciendo una variación con la altura del coeficiente de difusión vertical. Ahora bien, al no existir una ley general de variación que se corresponda con las distintas condiciones de estabilidad atmosférica, hemos supuesto K_z independiente de la altura. En este caso, la resolución de la serie de ecuaciones puede realizarse analíticamente y encontrar así la relación entre actividades buscada. Si no se considera advección lateral y se supone la existencia de un régimen estacionario, la ecuación de difusión para el radón y sus tres primeros descendientes toma la forma:

$$\frac{\delta}{\delta z} (K_z \frac{\delta C_i}{\delta z}) + \lambda_{i-1} C_{i-1} - \lambda_i C_i = 0$$

para $i = 0, 1, 2, 3$ con las condiciones de que el flujo de radón en el suelo sea Φ_0 siendo nulo para sus descendientes, y de que la concentración de cualquier miembro de la cadena sea nula para z infinito. La solución de las cuatro ecuaciones acopladas anteriores es:

$$C_0 = \frac{\Phi_0}{\sqrt{\lambda_0 k}} \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_0}{k}} z\right)$$

$$\begin{aligned}
 C_1 &= \frac{\lambda_0 \phi_0}{\sqrt{\lambda_0 k}} \frac{1}{\lambda_0 - \lambda_1} \left[\exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_1}{k}} z\right) - \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_0}{k}} z\right) \right] \\
 C_2 &= \frac{\lambda_0 \lambda_1 \phi_0}{\sqrt{\lambda_0 k}} \left[\frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_0 - \lambda_2)} \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_2}{k}} z\right) + \right. \\
 &+ \frac{1}{(\lambda_0 - \lambda_1)(\lambda_0 - \lambda_2)} \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_0}{k}} z\right) - \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_0 - \lambda_1)} \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_1}{k}} z\right) \left. \right] \\
 C_3 &= \frac{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \phi_0}{\sqrt{\lambda_0 k}} \left[a \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_1}{k}} z\right) + b \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_2}{k}} z\right) + \right. \\
 &+ c \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_0}{k}} z\right) - (a + b + c) \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_3}{k}} z\right) \left. \right] \\
 a &= \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_0 - \lambda_1)}; \quad b = \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_0 - \lambda_2)} \\
 c &= \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_0)(\lambda_0 - \lambda_2)(\lambda_0 - \lambda_3)}
 \end{aligned}$$

A partir de estas expresiones podemos calcular por sustitución numérica de valores la relación en el aire entre las actividades del Bi-214 y del Pb-214 para distintos valores del coeficiente de difusión vertical. Se encuentra así, que para cada altura el valor de la razón estudiada disminuye al aumentar el valor de K_z . También, por sustitución numérica se encuentra que fijado el valor del coeficiente de difusión vertical, la relación entre las actividades del Bi-214 y del Pb-214 aumenta al aumentar la altura en la región próxima al suelo.

Los valores obtenidos para la relación Bi-214/Pb-214 aplicando las expresiones anteriores a una altura sobre el suelo de 1,50 m están comprendidos dentro del intervalo 0,8-1,0 para valores razonables del coeficiente de difusión vertical comprendidos entre 0,01-100 m²/s. Este intervalo de variación, que coincide con el obtenido por otros autores, re-

sulta pequeño cuando se compara con los resultados experimentales, los cuales, presentan, como veremos más adelante, un margen más amplio de variación. La razón de esta discrepancia y teniendo en cuenta que el transporte de una masa de aire tiene como efecto aumentar el valor de la razón existente, debe buscarse en otra causa que amplíe el margen de variación encontrado. La misma, se debe buscar en el hecho de que en la ecuación de difusión no se ha considerado que existen estados transitorios. La resolución de la ecuación de difusión en régimen no estacionario requiere necesariamente suponer una variación con el tiempo del coeficiente de difusión vertical o de la exhalación de radón desde el suelo. En este segundo caso, se obtiene un intervalo de variación de la razón estudiada de 0,3-1,0 en situaciones de turbulencia normal, lo que indica la importancia que pueden tener los fenómenos transitorios (12). El no disponer de datos experimentales relativos a estos dos

aspectos, hace que en nuestro trabajo no tengamos en cuenta de una forma cuantitativa la existencia de estados transitorios, si bien no podemos olvidar su existencia en la interpretación de los resultados obtenidos.

Método experimental

Para determinar experimentalmente la relación entre las actividades del Bi-214 y del Pb-214 en la atmósfera cerca del suelo hemos usado la técnica de filtración colocando la boca de aspiración de la bomba a 1,5 m del suelo en un terreno emplazado junto a la Facultad de Ciencias de Santander. El tiempo de aspiración ha sido de 2 horas y el volumen de aire filtrado del orden de 200 m³. Sin embargo, debido a la vida media corta de los tres primeros descendientes del radón, no cabe esperar que la actividad de estos ejerza su influencia en la relación buscada a lo largo de todo el periodo de filtración y es por lo que hemos elegido un tiempo de filtración que denominamos efectivo de 30 minutos, del mismo orden que las vidas medias de los dos radioisótopos considerados, y que es el que introducimos en nuestras ecuaciones. El papel de filtro empleado ha sido el denominado Whatman 41 que ofrece una óptima eficiencia de captación de aerosoles con el caudal utilizado. Suponiendo la constancia en la atmósfera de las actividades de los descendientes del radón, puede plantearse un sistema de tres ecuaciones acopladas en función del tiempo que representan la acumulación en el filtro de los tres primeros descendientes del radón.

Acabado el tiempo de filtración y después de un tiempo muerto de 5 a 7 minutos necesario para colocar el papel de filtro en el detector, se procede a un único contaje de 15 minutos. Para este contaje disponemos de un detector de centelleo de INa(Tl) protegido de la radiación exterior mediante un

castillete de plomo y unido a un analizador multicanal. Mediante un único contaje se obtienen los datos que son el número de cuentas bajo los tres picos de 0,24 - 0,29 y 0,35 MeV del Pb-214 que debido a la resolución finita del dispositivo experimental, aparecen como un triplete que se mide conjuntamente para comparar con la misma medida efectuada durante el calibrado del aparato.

Los dos datos obtenidos necesitan de una condición adicional para resolver con ellos el sistema de tres ecuaciones resultante de integrar durante el periodo de contaje las ecuaciones encontradas para el periodo de filtración. La condición adicional impuesta ha sido que sean igual las actividades en el aire del Po-218 y del Pb-214, es decir $A_1 = A_2$. Para conocer el error cometido con esta suposición, hemos supuesto que, contrariamente a lo indicado se cumple que $A_1 = 2 A_2$. Sustituyendo los parámetros, tiempos de filtración y contaje así como el tiempo muerto y resolviendo las ecuaciones obtenidas se encuentra que se comete un error con la suposición hecha que depende del valor de la razón medida pero que como máximo es comparable debido al error estadístico asociado al contaje bajo los fotopicos en el espectro.

Aparte de este error sistemático se han tenido en cuenta los debidos a las eficiencias de captación de aerosoles y de detección y a los errores estadísticos en el recuento bajo los picos. El segundo de ellos puede ser reducido si se dispone de una muestra de ²²⁶Ra en equilibrio con sus descendientes, con lo cual, el único error importante es el mencionado en tercer lugar. Dependiendo de las actividades medidas para los dos elementos, los errores relativos están comprendidos entre un 4 y un 20 por ciento.

Resultados experimentales

Mediante el método experimental descri-

to hemos realizado dos series de medidas. La primera serie corresponde a un conjunto de 72 medidas efectuadas a primeras horas de la mañana durante un periodo de aproximadamente 6 meses. Para definir la estabilidad atmosférica correspondiente a los distintos días en que llevamos a cabo las mismas, hemos utilizado como índice de estabilidad la concentración de radón, la cual como ya hemos indicado, está inversamente relacionada con el coeficiente de difusión.

En la segunda serie de medidas y en lugar de la concentración de radón hemos caracterizado la situación de estabilidad existente mediante las medidas de las oscilaciones de viento, a través de lecturas hechas sobre la banda del anemocinemógrafo del Servicio Meteorológico de Santander. Con estas medidas intentamos caracterizar la variación diaria de la relación buscada. Para ello hemos determinado las variaciones diurnas y nocturnas durante un periodo de dos meses, utilizando únicamente los datos correspondientes a los días que presentaban un tipo de estabilidad denominado tipo F "moderately stable conditions", según los criterios de estabilidad de Pasquill, por ser la única situación para la que disponíamos de una estadística apropiada. Las medidas en esta serie se han hecho cada tres horas, asignando el valor obtenido a hora mitad del periodo de filtración, con lo que hemos obtenido cuatro valores diurnos y cuatro nocturnos. En la Tabla II se expresan

TABLA II

Variación media diaria de la relación Bi-214/Pb-214

Hora	Bi-214/Pb-214	Hora	Bi-214/Pb-214
21	0.75 ± 0.15	9	0.66 ± 0.12
24	0.78 ± 0.10	12	0.75 ± 0.24
3	0.82 ± 0.10	15	0.63 ± 0.16
6	0.86 ± 0.11	18	0.57 ± 0.13

los valores medios obtenidos para el conjunto de medidas analizadas correspondientes a ambos meses. Los errores asignados a cada uno de los valores de esta tabla han sido calculados como la desviación media entre cada valor diario y el valor medio.

Discusión de los resultados

A partir de los periodos de medidas realizados podemos comprobar de qué manera se cumplen las predicciones teóricas para los datos experimentales obtenidos. En primer lugar, el valor medio de la relación buscada en la primera serie de medidas ha sido de $0,73 \pm 0,28$. Este valor parece indicar después de las consideraciones teóricas expuestas, una influencia importante de los fenómenos transitorios en la razón estudiada. Es de observar que durante las horas de filtración para esta serie de medidas, tiene lugar la destrucción de la capa estable nocturna y durante este periodo es característica la existencia de fenómenos no estacionarios.

Para comprobar la influencia de la difusión vertical en la razón estudiada, hemos relacionado las medidas encontradas para ésta, con la concentración de radón que en esta serie de medidas utilizábamos como índice de estabilidad, medida mediante la misma filtración (13). La relación existente entre la razón buscada y la concentración de radón está representada en la Figura I. En ella, se observa una relación directa entre las dos magnitudes para valores bajos de la concentración de radón e independiente cuando ésta es mayor. Cabe deducir por tanto, como indicaban los resultados teóricos, una dependencia inversa entre la razón Bi-214/Pb-214 y la difusión vertical, aunque únicamente para valores pequeños de esta última.

El resumen de los resultados obtenidos en la segunda serie de medidas viene reflejado

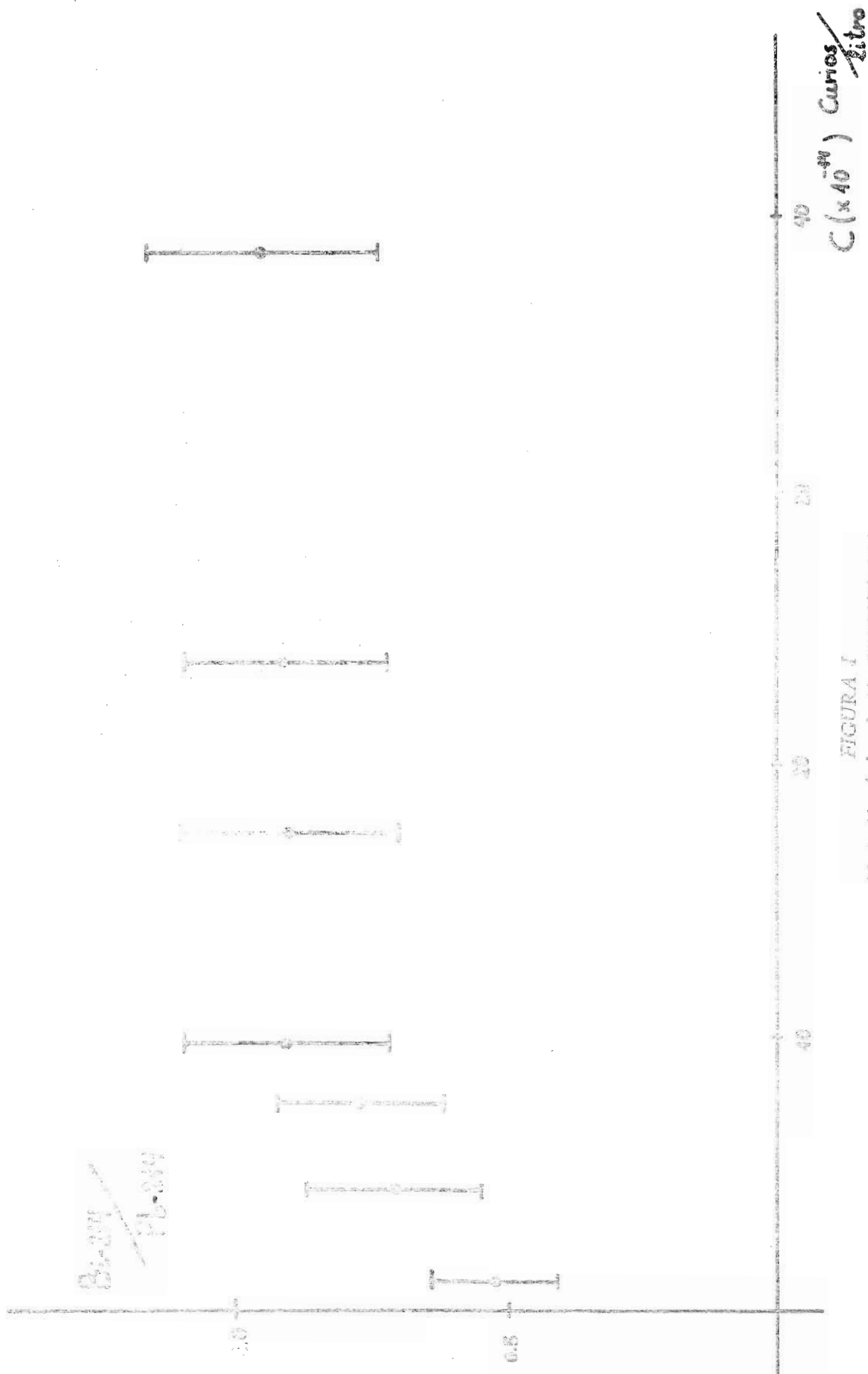


FIGURA I
Variación de la relación Bi-214/Pb-214
con la concentración de radón.

en la Tabla II, en la que se muestra que existe un aumento durante la noche de la razón estudiada. Este número puede justificarse, tanto por la tendencia al equilibrio radiactivo entre el radón acumulado en las capas bajas de la atmósfera y sus descendientes de vida corta, como por el pequeño valor que toma el coeficiente de difusión vertical durante estas horas. Durante el periodo diurno, los valores obtenidos presentan un aumento entre las dos primeras medidas seguido de una disminución el resto del día.

La razón estudiada no presenta, por tanto, una variación diaria igual a la de la estabilidad vertical, lo que sí que tenía lugar cuando utilizamos el radón como trazador, ya que presenta valores incorrectos, sobre todo en las horas próximas al mediodía. Este último hecho admite la explicación de que en el mediodía, hora a la que se observa el valor máximo diurno, aunque el coeficiente de difusión vertical es importante, también lo es la advección horizontal, y este segundo factor debe hacer tender a la unidad el grado de equilibrio entre los dos elementos estudiados como consecuencia del transporte de una masa

de aire conteniendo radón. Sin embargo, esta interpretación viene limitada por la gran variabilidad, caracterizada por las desviaciones standard de las medidas, que a esta hora presenta la relación estudiada con respecto a la media mensual, tal y como se refleja en la Tabla II.

Finalmente, caba concluir que la razón Bi-214/Pb-214 cumple de manera cualitativa las relaciones que pueden deducirse de la ecuación de difusión. Sin embargo, la interferencia de las distintas causas que influyen en la razón estudiada hace que sea difícil un estudio cuantitativo a partir de aquéllas, en situaciones en las que dichas causas que influyen en la razón estudiada hace que sea difícil un estudio cuantitativo a partir de aquellas, en situaciones en las que dichas causas actúan conjuntamente. No obstante, para determinadas condiciones en las que es posible limitar cada una de las influencias que actúan sobre los descendientes del radón, como por ejemplo periodos estables nocturnos, la razón Bi-214/Pb-214 puede ser utilizada de manera eficaz como trazador en los procesos de difusión vertical de materia.

BIBLIOGRAFIA

- (1) Prospero J. "Radón-222 in the North Atlantic trade winds: its relationship to dust transport from Africa", Science 167, 974 (1970).
- (2) Larson R., Bressan D. "Radon-222 as an indicator of continental air masses and air mass boundaries over ocean areas". Natural Radiation Environment III. Ed. T. Gessell and W. Lowder, Springfield, Virginia (1981).
- (3) L.S. Quindós, J. Soto, E. Villar, "Determinación del coeficiente de difusión vertical y de la altura de mezcla por aplicación de un modelo de caja cerrada". Anales de Física, Serie B, Vol 77, (1981)
- (4) Cautenet G. "Le monitoring de la stabilité verticale en site urban a l'aide d'un indicateur radiactif". These docteur de specialite núm. 1682. Universite Paul Sabatier. Toulouse. (1974).
- (5) Bakulin V., Senko Y., Starikov B, Trufakin V., "Investigation of turbulent exchange and washout by natural radioactivity in surface air". J. of Geophysical Research, 75, 8. (1972).
- (6) Kirichenko L., "Radon exhalation from vast areas according to vertical distribution of its short-lived decay products". J. of Geophysical Research, 75, 8 (1972).
- (7) Jacobi W., Andre K., "Bi-214/Ph-214 ratios as tracer in the atmosphere". J. of Geophysical Research, 68, 13, (1973).
- (8) González C. "Estudio de la estabilidad vertical de la atmósfera de un núcleo urbano empleando radón como trazador". Tesis doctoral. Universidad de Oviedo. (1977).
- (9) Styro B.I., "Radioactive isotopes in the atmosphere and their use in meteorology". Ed. Board, p-20. (1965).
- (10) Gat J.R., Assaf G., Milos A., "Disequilibrium between the short-lived radon daughter products in the lower atmosphere resulting from their washout by rain". J. of Geophysical Research, 71, 6, (1976).
- (11) L.S. Quindos. "Desarrollo y puesta a punto de un nuevo método para la medida de la exhalación de radón". Tesis doctoral. Universidad Santander (1980).
- (12) Shapiro A., Forbes-Resha P., "Bi-214/Pb-214 ratios in air at a height of 20 m" J. of Geophysical Research, 80, 12, (1975).
- (13) Soto J., "Contribución al estudio de la difusión de materia en las capas bajas de la atmósfera cerca de la discontinuidad tierra-mar, utilizando trazadores radioactivos". Tesis doctoral. Universidad de Santander (1978).