

AVALIAÇÃO DA INFLUÊNCIA DAS PROPRIEDADES E GEOMETRIA DA AMOSTRA EM ESPECTROMETRIA DE RAIOS GAMA

Antonio C. A. Vaz e Mitiko Saiki

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, Centro do Reator de Pesquisas
Av. Prof. Lineu Prestes 2.242
05508-000 Cidade Universitária, São Paulo, SP, Brasil

RESUMO

Este trabalho apresenta os resultados obtidos na avaliação dos erros introduzidos na espectrometria de raios gama devido às diferenças na geometria e propriedades da amostra e aos efeitos de empilhamento de picos e tempo morto. A parte experimental consistiu em preparar amostras simuladas de geometria e taxas de contagens distintas utilizando uma solução traçador de ^{152}Eu para espectrometria com um detector de germânio hiperpuro. Os resultados indicaram que o erro devido à atenuação da radiação pela amostra depende da energia dos raios gama e da densidade do material. Os erros decorrentes da variação da altura e da área da amostra independem da energia de raios gama porém dependem da distância amostra-detector. Verificou-se, também, que a espessura da base de um suporte (porta amostra) de aço inoxidável afeta nas taxas de contagens e o efeito é mais pronunciado para baixas energias dos raios gama. Quando a porcentagem de tempo morto é inferior a 15%, a correção devida ao empilhamento de picos e tempo morto pode ser desprezada.

Keywords: gamma – ray spectrometric analyses, sample properties, sample geometry

I. INTRODUÇÃO

A espectrometria de raios gama de amostras e padrões com geometria e propriedades distintas pode refletir na análise por ativação com nêutrons comparativa, a menos que sejam efetuadas as devidas correções.

Portanto estes erros tem sido estudados e discutidos em diversas publicações do campo de análise por ativação. Dentre estes trabalhos tem-se a publicação da Agência Internacional de Energia Atômica [1] que salienta sobre os efeitos das medidas de amostra e padrão efetuadas em condições de geometria diferentes. Também o grupo de Consultores da Agência Internacional de Energia Atômica [2] publicou sobre os erros na espectrometria gama dentre os diversos tipos de erros possíveis na aplicação da análise por ativação em materiais biomédicos.

Um outro trabalho de grande interesse sobre o assunto foi publicado por Bossus e Sluijs [3] que investigaram sobre a influência da variação nas dimensões (espessura da parede, da base e diâmetro) dos suportes utilizados nas medidas, da geometria e das propriedades da amostra. Na avaliação da incerteza de medição na análise por ativação com nêutrons, Kucera e colaboradores [4] avaliaram, dentre os diversos componentes da incerteza, os erros provenientes das medidas da radiação gama.

O objetivo do presente trabalho foi avaliar erros introduzidos na espectrometria de raios gama devido às diferentes geometrias e propriedades da amostra, para uma

contribuição na estimativa da incerteza nos resultados da análise por ativação com nêutrons.

II. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Preparação da solução estoque de traçador de ^{152}Eu . A solução traçador de ^{152}Eu , utilizada na preparação de amostras simuladas, foi obtida irradiando 4,15 mg de óxido de európio, espectroscopicamente puro de Johnson Matthey por 8 horas e sob fluxo de nêutrons térmicos de $10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ do reator IEA-R1. Após cerca de 10 dias de decaimento este óxido foi dissolvido com ácido nítrico diluído, a quente. A solução obtida foi diluída a 10 mL, obtendo-se uma solução estoque de ^{152}Eu contendo Eu na concentração de $358,3 \mu\text{g mL}^{-1}$.

Preparação das amostras simuladas. A solução estoque de ^{152}Eu e as soluções mais diluídas preparadas a partir da solução estoque foram utilizadas para se obter as amostras simuladas. Estas amostras simuladas foram preparadas pipetando alíquotas da solução de ^{152}Eu sobre tiras de papel de filtro Whatman 41 ou em cápsulas cilíndricas de polietileno. No estudo da absorção da radiação gama pelo material, um padrão de ^{152}Eu foi fixado no interior de um frasco, no qual foi enchido com o material de interesse para o estudo da absorção da radiação gama. As amostras simuladas de tamanhos ou áreas distintas foram preparadas em tiras de papel de forma quadrada. Amostras de alturas

diferentes foram preparadas diluindo sucessivamente com água destilada uma alíquota de traçador de ^{152}Eu pipetado numa cápsula de polietileno.

Procedimento para as medidas das taxas de contagens.

As medidas das amostras simuladas contendo traçador de ^{152}Eu foram feitas com um detector de germânio hiperpuro modelo GMX20190 da EG & G Ortec ligado a um Cartão ACE8K também da EG & G Ortec, um microcomputador e sistema eletrônico associado. A resolução (FWHM) do sistema utilizado foi de 1,0 keV para o pico de 121,97 keV do ^{57}Co e de 1,80 keV para o pico de 1332,49 keV do ^{60}Co . O tempo de medida variou de 7200 s a 20000 s dependendo da atividade da amostra. As incertezas nas taxas de contagens foram inferiores a 4,2%. O sistema utilizado foi testado diariamente quanto ao seu funcionamento. Para aquisição dos dados espectrais foi usado o programa MAESTRO do EG & G Ortec e o espectro obtido foi processado usando o programa VISPECT2 [5] que fornece as energias dos raios gama e as taxas de contagens. Foram utilizadas no presente trabalho as taxas de contagens obtidas para as energias de raios gama (em keV) de 121,8; 344,3; 964,1 e 1408,0 do ^{152}Eu de meia vida de 13,33 anos. Os valores de taxas de contagens foram normalizados para efeito de comparação.

III. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os resultados da Tabela 1, conforme esperado, mostram que as taxas de contagem decrescem com a altura da amostra e este efeito depende da distancia amostra-detector.

Na Tabela 2 estão os valores normalizados das taxas de contagens obtidas para amostras simuladas em papéis de filtro com áreas diferentes: 10x10mm; 15x 15mm e de 20 x 20mm. No caso, estas medidas foram feitas para diferentes distâncias da amostra-detector. Os resultados mostram que este efeito é mais pronunciado quanto menor a distâncias amostra-detector. Entre as contagens de amostras de dimensões diferentes de 10 x 10 mm e 15 x 15 mm, a influência da área da amostra foi praticamente desprezível.

O estudo da influência da variação da espessura do suporte de aço inoxidável mostrou que as taxas de contagens diminuem com o aumento da espessura do material suporte, conforme mostra o resultado da Tabela 3. Além disso no caso do suporte de aço inoxidável, este efeito depende da energia do raios gama considerado, devido à absorção da radiação gama pelo suporte. Por exemplo para o pico de 122 keV, uma variação de 0,1mm de espessura do suporte de aço inoxidável terá um efeito de -4,3% nas taxas de contagens.

O efeito da atenuação da radiação gama pela amostra foi estudado usando uma fonte de ^{152}Eu montada no interior de materiais de diferentes densidades. Os resultados destes efeitos apresentados na Tabela 4 indicam que ocorre a redução das taxas de contagens com o aumento da densidade do material. Este efeito é mais pronunciado para picos de baixas energias dos raios gama

Os resultados do efeito “pile up”(empilhamento de picos) e tempo morto são apresentados na Tabela 5 para duas posições de medidas no detector. Os resultados indicam que este efeito pode ser desprezado nas medidas feitas para tempo morto inferiores a 15%.

TABELA 1. Influência da Altura das Amostras para Diferentes Distâncias da Amostra-Detector

Altura das Amostras (mm)	Distância Amostra-Detector = 0,10 cm			
	E γ = 122 keV	E γ = 344 keV	E γ = 964 keV	E γ = 1408 keV
4,0	1,000	1,000	1,000	1,000
8,0	0,916	0,890	0,914	0,922
12,5	0,768	0,765	0,818	0,818
15,0	0,768	0,751	0,803	0,809
18,0	0,704	0,705	0,771	0,770
	Distância Amostra-Detector = 3,10 cm			
4,0	1,000	1,000	1,000	1,000
8,0	0,921	0,928	0,936	0,941
12,5	0,819	0,835	0,852	0,864
15,0	0,769	0,786	0,803	0,825
18,0	0,755	0,780	0,801	0,818
	Distância Amostra-Detector = 6,10 cm			
4,0	1,000	1,000	1,000	1,000
8,0	0,921	0,928	0,935	0,938
12,5	0,839	0,855	0,871	0,884
15,0	0,812	0,830	0,860	0,866
18,0	0,772	0,799	0,832	0,838
	Distância Amostra-Detector = 9,10 cm			
4,0	1,000	1,000	1,000	1,000
8,0	0,947	0,954	0,956	0,962
12,5	0,909	0,919	0,930	0,938
15,0	0,852	0,873	0,880	0,900
18,0	0,812	0,838	0,859	0,869

TABELA 2. Influência da Área das Amostras para Diferentes Distâncias da Amostra-Detector

Tamanho da Amostra (mm)	Distância Amostra-Detector = 0,10 cm			
	E γ = 122 keV	E γ = 344 keV	E γ = 964 keV	E γ = 1408 keV
10 x 10	1,000	1,000	1,000	1,000
15 x 15	1,009	0,995	1,008	0,995
20 x 20	0,948	0,948	0,956	0,971
	Distância Amostra-Detector = 3,10 cm			
10 x 10	1,000	1,000	1,000	1,000
15 x 15	1,000	0,999	1,003	0,998
20 x 20	0,961	0,967	0,993	0,992
	Distância Amostra-Detector = 6,10 cm			
10 x 10	1,000	1,000	1,000	1,000
15 x 15	0,985	1,004	1,004	0,998
20 x 20	0,961	0,967	0,993	0,992
	Distância Amostra-Detector = 9,10 cm			
10 x 10	1,000	1,000	1,000	1,000
15 x 15	0,992	1,003	0,983	0,978
20 x 20	0,971	0,983	1,012	1,000

TABELA 3. Influência da Espessura da Base do Suporte ou Porta Amostra (Área da Amostra Constante)

Espessura (mm)	Suporte Aço Inoxidável			
	E γ = 122 keV	E γ = 344 keV	E γ = 964 keV	E γ = 1408 keV
0,2	1,000	1,000	1,000	1,000
0,4	0,917	0,939	0,952	0,985
0,6	0,831	0,888	0,922	0,937
	Suporte Papel			
0	1,000	1,000	1,000	1,000
1	0,868	0,881	0,925	0,887
2	0,866	0,874	0,896	0,840
3	0,800	0,793	0,881	0,788
4	0,735	0,692	0,732	0,722

TABELA 4. Efeito da Autoabsorção da Radiação Gama em Amostras de Densidades Diferentes (Volume da Amostra Constante)

Densidade (g mL ⁻¹)	Valores Normalizados das Taxas de Contagens			
	E γ = 122 keV	E γ = 344 keV	E γ = 964 keV	E γ = 1408 keV
“vazio” ^a	1,000	1,000	1,000	1,000
0,471 ^b	0,987	0,987	0,993	0,995
0,860 ^c	0,973	0,982	0,988	0,987
0,947 ^d	0,965	0,973	0,983	0,991
0,998 ^e	0,949	1,039	0,970	0,974
1,329 ^f	0,941	0,955	0,966	0,972
1,396 ^g	0,790	0,955	1,002	1,00
2,616 ^h	0,828	0,939	1,003	1,002
3,439 ⁱ	0,466	0,902	1,002	1,001

- a. Frasco vazio; b. Sílica gel em pó; c. Óleo Liza a 24 °C; d. Óxido de Alumínio; e. Água destilada a 24 °C; f. Glicerina a 24 °C; g. Cloreto de bário, em pó; h. Minério de zirconita; i. Antimônio metálico em pó.

TABELA 5. Influência do Efeito Pile-up + Tempo Morto nas Taxas e Contagens (Tamanho da Amostra Constante)

Tempo Morto (%)	Distância Amostra-Detector = 0,1cm			
	E γ = 122 keV	E γ = 344 keV	E γ = 964 keV	E γ = 1408 keV
3,2	1,000	1,000	1,000	1,000
6,3	1,005	1,002	0,992	1,029
13,2	1,006	1,006	0,992	1,014
20,1	0,995	0,996	0,992	1,009
	Distância Amostra-Detector = 3,1cm			
1,1	1,000	1,000	1,000	1,000
2,1	1,012	1,024	1,009	1,020
4,2	1,008	1,013	1,013	1,005
5,1	0,999	1,004	0,996	1,002
7,2	1,002	1,012	0,997	0,995
8,3	1,003	1,009	0,994	0,995
11,6	1,004	1,013	0,999	1,002
17,6	0,992	1,006	0,987	0,991

IV. CONCLUSÃO

Os resultados obtidos neste trabalho permitiram concluir que medições próximas ao detector devem ser feitas somente quando a amostra e o padrão apresentassem a mesma geometria. Quando isto não for possível, as contagens devem ser feitas com amostras e padrões colocados numa posição mais distante do detector. A absorção da radiação gama pela própria amostra ou pelo material do suporte de contagens depende da densidade do material e este efeito é mais pronunciado para baixas energias de raios gama.

AGRADECIMENTOS

À FAPESP ao CNPq pelo apoio financeiro.

REFERÊNCIAS

- [1] International Atomic Energy Agency. **Practical Aspects of Operating a Neutron Activation Analysis laboratory**, IAEA – TECDOC –564, p.138-168, 1990.
- [2] International Atomic Energy Agency. **Quality Assurance in Biomedical Neutron Activation Analysis**. Report of an IAEA Advisory Group. *Analytica Chimica Acta*, vol 165, p. 1-29, 1984.
- [3] Bossusn D. A., van Sluijs, R. **The Influence of Sample Properties and Sample Geometry on the Accuracy of**

Gamma-ray Spectrometric Analyses. *Journal of Radioanalytical. Nuclear Chemistry*, vol. 233, p. 143-148, 1998.

[4] Kucera, J.; Bode, P.; Stepanek, V. **The 1993 ISO Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement Applied to NAA**. *Journal of Radioanalytical. Nuclear Chemistry*, vol. 245, p. 115-122, 2000.

[5] Piccot D. Comunicação pessoal

ABSTRACT

This work presents an evaluation of errors in gamma ray spectrometric analyses due to variations in sample properties and geometry, dead time of the system and pile up of pulses. To study these effects, simulated samples were prepared using ^{152}Eu tracer solutions. Gamma ray measurements were carried out by using an hyperpure Ge detector connected a gamma ray spectrometer. As expected, the results have indicated that sample self - absorption depends on sample density and the gamma ray energy. Counting geometry errors were the most important source of errors when samples are measured close to the detector. The sample holder thickness can also alter the measurements depending on the gamma ray energy. To avoid the overall correction for dead time and pile-up effects, the percentage of dead time has to be lower than 15%.