

INFLUÊNCIA DA ENERGIA DO PADRÃO DE CALIBRAÇÃO NA EFICIÊNCIA DE UM DETECTOR PROPORCIONAL PARA CONTAGEM ALFA E BETA TOTAL EM AMOSTRAS DE ÁGUA

Cecilia M. Santos e Brigitte R. S. Pecequilo

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP
Av. Lineu Prestes 2.242
05508-900 Butantã, São Paulo, SP, Brasil

ABSTRACT

Neste trabalho foram determinadas as curvas de calibração em eficiência de um contador proporcional de baixa radiação de fundo, de janela fina e fluxo gasoso para padrões de calibração com energias distintas, variando a espessura do absorvedor. Para contagem alfa total utilizamos padrões de Am-241 e U-natural e para contagem beta total Sr-90/Y-90 e Cs-137 com espessuras de depósito no intervalo de 0 a aproximadamente 18 mg/cm². A eficiência de contagem para os emissores alfa variou de 0,266 +/- 0,032 até 0,023 +/- 0,003 para o padrão de Am-241 e de 0,322 +/- 0,030 até 0,023 +/- 0,003 para o padrão de U-natural. A eficiência de contagem para os emissores beta variou de 0,430 +/- 0,036 até 0,247 +/- 0,020 para o padrão de Cs-137 e de 0,489 +/- 0,041 até 0,323 +/- 0,026 para o padrão de Sr-90/Y-90.

Key Words: efficiency, calibration, gross alpha, gross beta, proportional detector.

I. INTRODUÇÃO

A radioatividade nas águas naturais e tratadas provém tanto de fontes naturais, como de atividades humanas. A radioatividade natural origina-se de fontes extraterrestres e de elementos radioativos na crosta terrestre. Os radionuclídeos naturais, que são responsáveis pela maior parte da exposição à radiação para o público, podem ser divididos em aqueles que ocorrem por si só, tais como ⁴⁰K, ³H, ⁷Be e ¹⁴C, e os membros das três séries radioativas, do ²³⁸U, do ²³⁵U e do ²³²Th. As atividades humanas que produzem isótopos radioativos como o ⁹⁰Sr e o ¹³⁷Cs incluem operações relacionadas com o ciclo do combustível nuclear, desde a mineração até o reprocessamento; uso de radioisótopos na medicina, na indústria, em pesquisas e outros campos e "fall-out" causado por testes com armas nucleares. Estes usos, além da produção de radionuclídeos artificiais, causam também um aumento da concentração ambiental dos radionuclídeos naturais [1].

A concentração de radionuclídeos na água pode ser determinada pelas atividades alfa e beta totais. Se os limites vigentes das normas de proteção radiológica forem ultrapassados, deve ser realizada análise para radionuclídeos específicos [2]. Assim, a medida da atividade alfa e beta total é de fundamental importância e requer boas técnicas científicas.

Um dos métodos mais utilizados para determinação da atividade alfa e beta total em água é a evaporação da amostra em plaqueta de aço inoxidável ou alumínio e

posterior contagem em contador proporcional de janela fina e fluxo gasoso e baixa radiação de fundo [2, 3].

Contudo há alguns aspectos que devem ser considerados. As partículas alfa e beta são partículas carregadas e o principal meio de interação com a matéria é a perda de energia por ionização e excitação em colisões inelásticas com os elétrons atômicos, sendo que, no caso das partículas beta, devemos considerar também as perdas de energia por radiação ("bremsstrahlung") em colisões inelásticas com os núcleos do meio absorvedor [4, 5]. Este comportamento mostra que a auto-absorção numa amostra pode ser significativa e deve sempre ser considerada.

Portanto, as taxas de contagem obtidas para uma amostra são afetadas por fatores como a espessura dos resíduos sólidos e a energia das partículas alfa e beta, pois quanto maior a energia da partícula incidente, maior o seu alcance no meio absorvedor.

A conversão destas taxas de contagem em atividade equivalente total é feita determinando a eficiência do contador utilizando padrões radioativos. O valor desta eficiência depende das energias alfa e beta dos padrões de calibração [6] e portanto, o resultado deve sempre fazer referência ao padrão utilizado.

No caso da atividade alfa, se o padrão usado é ²⁴¹Am, cujas energias são da ordem de 5,4 MeV, a eficiência obtida será maior que a esperada para um padrão de urânio natural, onde existem ²³⁴U, ²³⁵U e ²³⁸U com energias aproximadas de 4,8 MeV, 4,4 MeV e 4,2 MeV respectivamente [7].

Um problema similar é observado no caso dos padrões emissores beta. Os padrões mais utilizados para calibrar um detector proporcional para atividade beta total são ^{137}Cs (emissor beta, energias aproximadas de 511 keV e 1173 keV, e energia gama aproximada de 662 keV) e $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (emissores beta puros, energias de 546 keV e 2284 keV, respectivamente). Dependendo do padrão de calibração, as eficiências podem variar até 25% [6].

O objetivo deste trabalho foi determinar as eficiências do contador proporcional de baixa radiação de fundo, de janela fina e de fluxo gasoso para contagem alfa e beta total para padrões de calibração contendo ^{241}Am e urânio natural para alfa e ^{137}Cs e $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ para beta.

Estas eficiências serão utilizadas nas análises de amostras de água realizadas rotineiramente pelo Departamento de Radiometria Ambiental do IPEN.

II. METODOLOGIA

A partir de soluções estoque padronizadas foram preparadas soluções aquosas com água destilada e deionizada para ^{241}Am , urânio natural, ^{137}Cs e $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ com atividades de 130 Bq/100 μl para ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs e 0,390 Bq/100 μl para U-natural. A alta concentração em massa da solução preparada de U-natural deve-se à baixa atividade específica do urânio natural (0,0255 Bq/ μg), o que não permitiu a preparação de menor concentração em massa.

Foram estabelecidas três réplicas de preparo e três réplicas de contagem para cada plaqueta preparada. As soluções aquosas radioativas foram colocadas com auxílio de micropipetadores em plaquetas de aço inoxidável em alíquotas de 1ml. A seguir, tais soluções foram evaporadas sob lâmpada infra-vermelha.

Depois da solução ser evaporada nas plaquetas, estas eram colocadas em dessecador para esfriar. A seguir, as plaquetas eram contadas no contador proporcional por tempo de 5 minutos (plaquetas com ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs) ou de 200 minutos (plaquetas com U-natural) e, a partir das taxas de contagem e da atividade conhecida, foram determinadas as eficiências máximas para os radionuclídeos de interesse, relacionando-as com as energias do padrão utilizado.

A radiação de fundo do sistema de contagem foi determinada colocando-se as mesmas plaquetas de aço-inox limpas (sem solução) na bandeja do detector e contando-se por período de aproximadamente 900 minutos. As taxas de contagem médias para este contador proporcional são de aproximadamente 0,05 CPM (contagens por minuto) para alfa e de 0,7 CPM para beta.

A seguir foram escolhidos alguns elementos químicos baseando-se no coeficiente de solubilidade dos seus sais em água a 30°C e pressão constante [8] e na composição química aproximada das águas naturais [9, 10]. Foi preparado 2000ml de solução em meio HCl 0,5 mM com os seguintes sais: CaCO_3 (0,09g), $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (0,5g),

$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (2,5g), NaHCO_3 (2,5g), K_2SO_4 (2,0g) e NaCl (2,4g).

Novamente foram preparadas soluções com atividade fixa de cada radionuclídeo (130 Bq de ^{241}Am , 130 Bq de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, 130 Bq de ^{137}Cs e 0,390 Bq de U-natural) adicionado a quantidades crescentes da solução salina. Cada plaqueta era pesada e a seguir colocava-se a partir de seu centro, em alíquotas de 1 ml, toda a solução salina que foi então evaporada sob lâmpada de infra-vermelho. Após seco todo o resíduo que foi nela colocado, cada plaqueta foi pesada e contada três vezes no detector proporcional por tempo de 5 minutos (plaquetas com ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs) ou de 200 minutos (plaquetas com U-natural). A partir das taxas de contagem médias e da atividade conhecida, foram determinadas as eficiências para os radionuclídeos de interesse relacionando-as com a massa do resíduo seco.

Foram construídas as curvas de calibração (eficiência X massa/área de plaqueta) para cada radionuclídeo estudado variando-se a espessura de zero a cerca de 18mg/cm² de resíduo seco nas plaquetas junto aos radionuclídeos de interesse.

As eficiências foram calculadas com o programa Mathcad [11] utilizando-se as expressões:

$$EF_{\alpha} = \left| \frac{(CONT_{\alpha} - BG_{\alpha})}{ATIV_{\alpha} * 60} \right| \quad (1)$$

Onde:

EF_{α} = eficiência para radionuclídeos emissores alfa;

$CONT_{\alpha}$ = contagem alfa média registrada no detector em CPM;

BG_{α} = radiação de fundo alfa registrada no detector em CPM;

$ATIV_{\alpha}$ = atividade alfa de 130 Bq para ^{241}Am ou 0,390 Bq para U-natural.

$$EF_{\beta} = \left| \frac{(CONT_{\beta} - BG_{\beta})}{ATIV_{\beta} * 60} \right| \quad (2)$$

Onde:

EF_{β} = eficiência para radionuclídeos emissores beta;

$CONT_{\beta}$ = contagem beta média registrada no detector em CPM;

BG_{β} = radiação de fundo beta registrada no detector em CPM;

$ATIV_{\beta}$ = atividade beta de 130 Bq para ^{137}Cs e $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ respectivamente.

Os erros das eficiências ($\sigma_{EF_{\alpha}}$ e $\sigma_{EF_{\beta}}$) foram obtidos propagando os erros da contagem média, da radiação de fundo e da atividade. O erro da contagem média foi obtido pela propagação dos erros das três contagens de cada plaqueta.

III. RESULTADOS

Os valores das eficiências e seus erros, calculados segundo a expressão (1) para partículas alfa e a expressão (2) para partículas beta, para ^{241}Am , U-natural, $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs estão mostrados nas tabelas 1, 2, 3 e 4 respectivamente.

TABELA 1. Eficiência para o Padrão de ^{241}Am em Diversas Espessuras.

| massa/área (mg/cm ²) | eficiência média |
|----------------------------------|------------------|
| 0 | 0,266 +/- 0,032 |
| 0,6 | 0,149 +/- 0,018 |
| 1,2 | 0,171 +/- 0,020 |
| 1,9 | 0,190 +/- 0,023 |
| 2,6 | 0,156 +/- 0,019 |
| 3,2 | 0,154 +/- 0,018 |
| 3,8 | 0,162 +/- 0,019 |
| 4,5 | 0,168 +/- 0,020 |
| 5,1 | 0,150 +/- 0,018 |
| 6,8 | 0,175 +/- 0,021 |
| 7,5 | 0,140 +/- 0,016 |
| 9,4 | 0,108 +/- 0,013 |
| 10,9 | 0,020 +/- 0,003 |
| 13,8 | 0,014 +/- 0,002 |
| 15,5 | 0,023 +/- 0,003 |

TABELA 2. Eficiência para o Padrão de U-natural em Diversas Espessuras.

| massa/área (mg/cm ²) | eficiência média |
|----------------------------------|------------------|
| 0 | 0,322 +/- 0,030 |
| 0,3 | 0,201 +/- 0,019 |
| 0,7 | 0,163 +/- 0,018 |
| 0,9 | 0,155 +/- 0,015 |
| 1,3 | 0,121 +/- 0,014 |
| 1,9 | 0,119 +/- 0,012 |
| 2,5 | 0,106 +/- 0,011 |
| 2,9 | 0,089 +/- 0,009 |
| 3,5 | 0,060 +/- 0,007 |
| 4,3 | 0,067 +/- 0,007 |
| 5,8 | 0,063 +/- 0,008 |
| 7,2 | 0,057 +/- 0,006 |
| 8,7 | 0,047 +/- 0,005 |
| 10,1 | 0,041 +/- 0,005 |
| 11,5 | 0,036 +/- 0,005 |
| 12,7 | 0,038 +/- 0,004 |
| 14,5 | 0,023 +/- 0,003 |

Na Figura 1 apresentamos as curvas da variação da eficiência alfa em função da espessura para os padrões de ^{241}Am e U-natural.

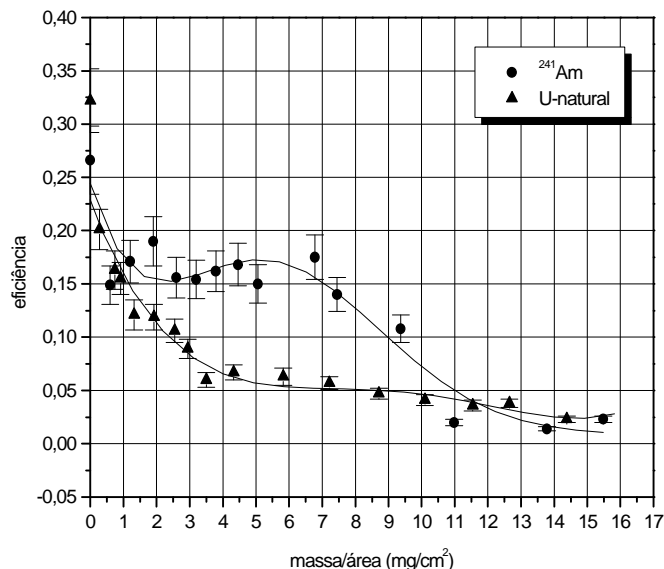


Figura 1. Curvas de Calibração em Eficiência Alfa com Padrões de ^{241}Am e U-natural.

TABELA 3. Eficiência para o Padrão de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ em Diversas Espessuras.

| massa/área (mg/cm ²) | eficiência média |
|----------------------------------|------------------|
| 0 | 0,489 +/- 0,041 |
| 0,7 | 0,433 +/- 0,036 |
| 1,3 | 0,431 +/- 0,036 |
| 2,6 | 0,466 +/- 0,038 |
| 3,1 | 0,456 +/- 0,037 |
| 4,6 | 0,447 +/- 0,037 |
| 6,3 | 0,442 +/- 0,036 |
| 7,8 | 0,383 +/- 0,031 |
| 9,5 | 0,412 +/- 0,034 |
| 12,5 | 0,395 +/- 0,033 |
| 15,6 | 0,376 +/- 0,031 |
| 17,2 | 0,371 +/- 0,030 |
| 18,8 | 0,323 +/- 0,026 |

TABELA 4. Eficiência para o Padrão de ^{137}Cs em Diversas Espessuras.

| massa/área (mg/cm^2) | eficiência média |
|---|------------------|
| 0 | 0,430 +/- 0,036 |
| 0,6 | 0,421 +/- 0,035 |
| 1,3 | 0,388 +/- 0,032 |
| 2,5 | 0,369 +/- 0,030 |
| 3,1 | 0,369 +/- 0,030 |
| 4,4 | 0,336 +/- 0,028 |
| 5,3 | 0,332 +/- 0,028 |
| 6,2 | 0,329 +/- 0,027 |
| 7,6 | 0,337 +/- 0,028 |
| 9,0 | 0,310 +/- 0,025 |
| 10,9 | 0,274 +/- 0,023 |
| 12,1 | 0,329 +/- 0,027 |
| 13,8 | 0,306 +/- 0,025 |
| 15,3 | 0,247 +/- 0,020 |
| 16,6 | 0,266 +/- 0,022 |
| 17,1 | 0,247 +/- 0,020 |

Na Figura 2 apresentamos as curvas da variação da eficiência beta em função da espessura para os padrões de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs .

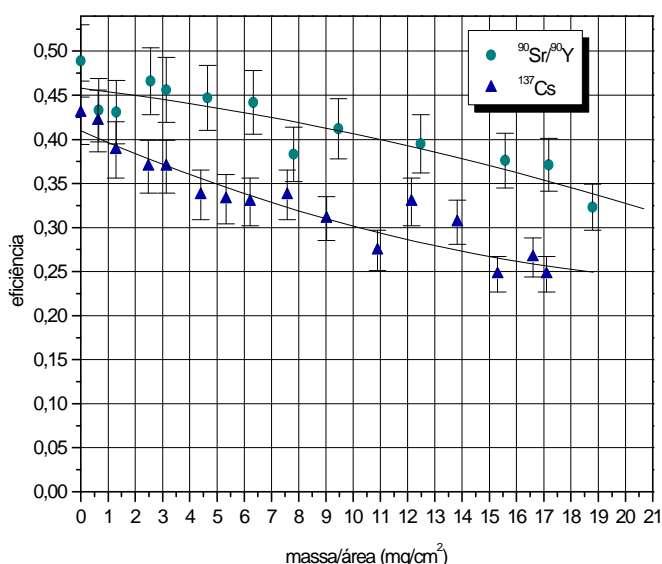


Figura 2. Curvas de Calibração em Eficiência Beta com Padrões de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ e ^{137}Cs .

IV. DISCUSSÃO

Foi observado que, conforme o esperado em todos os casos, a eficiência diminui com o aumento da espessura dos resíduos.

No caso dos emissores alfa esta diminuição mais acentuada da eficiência com o aumento da espessura do absorvedor deve-se ao fato dela ser uma partícula pesada com duas cargas positivas. O modo predominante de perda da energia das partículas alfa é por colisões inelásticas com elétrons atômicos, por meio da interação do campo coulombiano da partícula com o campo coulombiano do absorvedor. A perda de energia por unidade de comprimento de caminho, dE/dx , é diretamente proporcional à carga da partícula incidente. Isso significa que o poder de penetração das partículas alfa é muito pequeno.

O comportamento da curva para partículas alfa é o esperado, pois, para espessuras desprezíveis, até $1 \text{ mg}/\text{cm}^2$, o comportamento dos dois radionuclídeos é análogo, acentuando-se a absorção para o padrão de U-natural.

No caso dos emissores beta, a diminuição na eficiência com o aumento da espessura dos absorvedores é menos acentuada do que no caso dos alfa. Isto deve-se ao fato de que a massa das partículas beta é muito menor que a das partículas alfa, possuindo também carga menor. Portanto, o poder de ionização das partículas beta é bem menor do que o das partículas alfa e isso significa que elas deverão atravessar uma espessura maior de material para perder toda a sua energia por ionização. Podemos dizer então que o poder de penetração das partículas beta é bem maior do que o das partículas alfa.

Tanto para os emissores alfa, como para os emissores beta, as eficiências maiores para as energias maiores são esperadas, pois partículas carregadas mais energéticas sofrem menor perda de energia por unidade de comprimento e portanto têm alcances maiores, o que significa menor absorção.

V. CONCLUSÃO

Os resultados evidenciam a variação da eficiência de contagem com a energia do emissor alfa ou beta e com a espessura do absorvedor. Isto mostra que ambos os fatores (padrão de calibração e espessura dos resíduos absorvedores) devem ser sempre levados em conta na determinação da atividade alfa e beta total em amostras de água.

REFERÊNCIAS

- [1] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), **Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation**, United Nations, New York, 1988.

[2] Eaton, A.D., Clesceri, L.S., and Greenberg, A.E., **Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater**, Am. Public. Health Ass., USA, 1995.

[3] Lawrence Berkeley Laboratory, Environmental Instrumentation Survey, **Instrumentation for Environmental Monitoring**, John Wiley & Sons, USA, vol. 1, 1983.

[4] Marmier, P., Sheldon, E., **Physics of Nuclei and Particles**. Wiley, N. Y., 1969.

[5] Evans, R.D., **The Atomic Nucleus**, McGraw-Hill, 1995.

[6] Janzer, V.J., **Discordant Gross Radioactivity Measurements of Natural and Treated Waters**, In: Effluent and Environmental Radiation Surveillances, Kelly Ed., p 327-341, 1980.

[7] **Chart of Nuclides**, General Eletric Company, CA, 1983.

[8] Lurie, J., **Handbook of Analytical Chemistry**, Mir Publishers, Moscow, 1978.

[9] **Instituto de Geociências**, Boletim IG-USP n. 5, 1993.

[10] Yoshinaga, S., **Estudos Hidrogeológicos, hidrogeoquímicos e isotópicos das águas minerais e termais de águas de Lindóia e Lindóia, SP**, Dissertação (Mestrado), Instituto de Geociências, SP, 1990.

[11] Math Soft, **Mathcad versão 7**, 1997.

standard. Counting efficiency values obtained for $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ standard calibration planchets ranged from 0,489 +/- 0,041 for a weightless residue to 0,323 +/- 0,026 for a residue thickness of 18 mg/cm².

ABSTRACT

In this paper the efficiency calibration curves were determined for a thin-window, low-background and gas-flow proportional counter using calibration standards with different energies and different absorber thicknesses.

For the gross alpha counting we used ^{241}Am standard and natural uranium and for the gross beta counting we used $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ and ^{137}Cs in residue thickness ranging from 0 to approximately 18 mg/cm².

Counting efficiency for alpha emitters ranged from 0,266 +/- 0,032 for a weightless residue to 0,023 +/- 0,003 in a planchet containing 15 mg/cm² of residue for ^{241}Am standard calibration planchets. Counting efficiency values obtained for natural uranium standard calibration planchets ranged from 0,322 +/- 0,030 for a weightless residue to 0,023 +/- 0,003 in a planchet containing 14,5 mg/cm² of residue.

Counting efficiency for beta emitters ranged from 0,430 +/- 0,036 for a weightless residue to 0,247 +/- 0,020 in a planchet containing 17 mg/cm² of residue for ^{137}Cs