



P

ROTEÇÃO CONTRA RADIAÇÕES
NA COMUNIDADE DOS PAÍSES
DE LÍNGUA PORTUGUESA

Luis Neves (coord.)

IMPRESA DA UNIVERSIDADE DE COIMBRA
2018

**OTIMIZAÇÃO DA ANÁLISE RADIOMÉTRICA DE MATRIZES
AMBIENTAIS POR ESPECTROMETRIA GAMA
DE ALTA RESOLUÇÃO**

**OPTIMIZATION FOR THE RADIOMETRIC ANALYSIS OF
ENVIRONMENTAL MATRICES BY HIGH RESOLUTION
GAMMA SPECTROMETRY**

T. M. R. Bastos – thiagomrbastos@gmail.com (Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste - Brasil, Serviço de Análises Ambientais)

J. D. S. Paiva – daniel.paiva@pesqueira.ifpe.edu.br (Instituto Federal de Pernambuco - Brasil, Departamento de Pesquisa e Inovação)

R. S. Cantinha – rcantinha@gmail.com (Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste - Brasil, Serviço de Análises Ambientais)

E. J. De França – ejfranca@cnen.gov.br (Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste - Brasil, Serviço de Análises Ambientais)

PALAVRAS-CHAVE: EGAR, Marinelli, MDA, radionuclídeos, matrizes ambientais

RESUMO: A Espectrometria Gama de Alta Resolução (EGAR) é bastante utilizada na identificação e quantificação de radionuclídeos de diversas matrizes ambientais. No entanto, a determinação desses radionuclídeos em baixas concentrações de atividade nem sempre é possível. Este trabalho tem por objetivo propor uma geometria de análise que possibilite a otimização da determinação de radionuclídeos de baixa atividade. Para isso, foi analisado um padrão interno de

vegetação do Programa Nacional de Intercomparação - PNI, organizado pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria, Brasil, por EGAR utilizando-se da geometria Marinelli modificada. A amostra, após o equilíbrio secular, foi analisada no espectrômetro gama da Canberra, modelo 3018, com resolução de 1.9 keV no fotopico de 1.33 MeV do ^{60}Co . Os resultados de concentração de atividade obtidos concordaram grandemente com os valores de referência para todos os radionuclídeos analisados. Os valores das atividades mínimas detectáveis para a quantificação de ^{40}K , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{214}Pb e ^{214}Bi nessa condição analítica foram cerca de 22 vezes inferiores aos obtidos utilizando-se da geometria tradicional.

KEYWORDS: EGAR, Marinelli, MDA, radionuclides, environmental matrices.

ABSTRACT: High Resolution Gamma-Ray Spectrometry (HRGS) has been widely used for identifying and quantifying radionuclides in various environmental matrices. However, the determination of these radionuclides activity at low activity concentrations is not always possible. This work proposed geometry of analysis that enables the optimization of the low activity radionuclide determination. For this, an internal vegetation standard provided by the National Intercomparison Program – PNI from the Institute of Radiation Protection and Dosimetry, Brazil, was analyzed by HRGS using a modified Marinelli beaker. The sample radioactivity, after the secular equilibrium, was measured by means of a HPGe detector from Canberra, model 3018, with a resolution of 1.9 keV in photopeak 1.33 MeV from ^{60}Co . The obtained activity concentration results agreed quite well with the reference

values for all radionuclides analyzed. The minimum detectable activity values for quantifying ^{40}K , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{214}Pb and ^{214}Bi in this analytical condition were about 22 times lower than those obtained using the traditional geometry.

1. INTRODUÇÃO

A espectrometria de raios gama de alta resolução (EGAR) é uma técnica analítica nuclear utilizada na identificação e quantificação de radionuclídeos naturais ou artificiais de diversas matrizes ambientais, por meio de um detector de radiação acoplado a um sistema eletrônico de aquisição de dados. A técnica consiste na análise de um espectro de emissão específico de radiação gama, permitindo a identificação da natureza e a determinação da atividade dos radionuclídeos presentes na amostra, sem a necessidade de tratamento químico (Paiva et al, 2015).

A determinação de radionuclídeos quando em baixas concentrações por meio da técnica de EGAR nem sempre é possível, pois diversos parâmetros como massa, geometria, eficiência de detecção e homogeneidade influenciam diretamente os resultados analíticos e aumentam as atividades mínimas detectáveis. Variações de alguns milímetros nesses parâmetros fundamentais podem produzir oscilações de aproximadamente 15% nas eficiências de pico gama (Ferreira, 2012).

Diante do exposto, este trabalho tem por objetivo propor uma geometria que possibilite a otimização da determinação de radionuclídeos de baixa atividade, sem que haja impactos na vegetação pela retirada de grande quantidade de amostras. A geometria proposta consiste na redução das dimensões de um recipiente do tipo Marinelli (geometria Marinelli modificada).

2. MÉTODOS

2.1. Preparação da amostra para análise

A amostra utilizada para o desenvolvimento do trabalho foi o padrão interno de vegetação do Programa Nacional de Intercomparação – PNI, organizado pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria da Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN, Brasil. Esse material possui concentrações de atividades certificadas para os radionuclídeos ^{40}K , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{134}Cs e ^{137}Cs . Porção-teste de 170 g foi acondicionada em recipiente do tipo Marinelli, modificado por um cilindro de polietileno (Figura 1). As medidas do recipiente foram de 10,5 cm de diâmetro externo, 8,8 cm de diâmetro interno e 7,9 cm de altura, resultando em um volume de 76,3 cm³.



Figura 1. Adptação de estrutura de recipiente Marinelli.

2.2. Determinação de radionuclídeos por egar

Depois de acondicionada e selada em recipiente do tipo Marinelli modificado, a amostra foi reservada para se estabelecer o equilíbrio secular por um período superior a 21 dias. A quantificação dos radionuclídeos foi realizada em espectrômetro de raios gama de alta resolução com detector de germânio hiper-puro (HPGe) da Canberra, modelo 3018, com resolução de 1,9 keV no fotopico de 1,33 MeV do ^{60}Co (Canberra, 2009). Este detector teve seu cristal de germânio caracterizado pelo fabricante, o que permitiu a geração da curva de eficiência

por método de Monte Carlo (Ródenas, 2003). O tempo de contagem utilizado para análise das folhas foi 200.000 segundos e 1.000.000 segundos para o branco analítico. O tempo de contagem do branco analítico foi superior ao das amostras para melhorar as incertezas do branco nos cálculos de concentração de atividade dos radionuclídeos. A curva de eficiência gerada pelo método de Monte Carlo foi construída a partir do programa de computador ISOCALS, a partir da simulação da geometria de detecção no software Geometry Composer. Após as análises, foram calculadas as concentrações de atividade dos nuclídeos por meio do programa Genie (Canberra, 2009).

A avaliação da qualidade do procedimento de análise de folhas foi realizada a partir da análise por 5 vezes consecutivas de radionuclídeos do próprio padrão interno do PNI. O Número E_n , diferença entre os valores obtidos e os valores certificados dividido pela raiz quadrada da soma das incertezas expandidas em nível de confiança a 95% ao quadrado, foi empregado para averiguar a concordância dos valores obtidos e de referência conforme a ISO 13528 (2005) (International Organization For Standardization, 2005) em que valores entre -1 e 1 são indicativos de controle de qualidade do procedimento analítico em nível de 95% de confiança.

A atividade mínima detectável (MDA) para um espectrômetro gama representa a sua capacidade de detectar um fóton gama na presença de interferentes, tais como radiação de fundo, espalhamento e ruídos do sistema de medidas. O cálculo da atividade mínima detectável foi realizado por meio do programa Genie (Canberra, 2009).

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Tabela 1 mostra os resultados das concentrações de atividades dos nuclídeos ^{40}K , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{134}Cs e ^{137}Cs , as respectivas incertezas

analíticas expandidas em nível de 95% de confiança e os valores do Número E_n , que estiveram na faixa entre -1 e 1.

Tabela 1. Resultados de concentrações de atividade obtidas e de referência com suas respectivas incertezas analíticas expandidas em nível de 95% de confiança e número En para o padrão interno de vegetação do PNI/IRD/CNEN.

Nuclídeo	Valor de referência (Bq kg ⁻¹)			Valor obtido (Bq kg ⁻¹)			Número E_n
		±			±		
⁴⁰ K	1132	±	196	1100	±	44	0,2
⁶⁰ Co	52,2	±	9,00	50,0	±	1,9	-0,3
⁶⁵ Zn	49,8	±	8,60	50	±	5,0	-0,2
¹³⁴ Cs	52,6	±	9,10	50	±	3,0	-0,6
¹³⁷ Cs	48,3	±	8,40	50	±	3,0	0,5

A nova geometria utilizada na análise de radionuclídeos vegetação por EGAR se mostrou eficiente na redução das atividades mínimas detectáveis. A Tabela 2 compara os valores das atividades mínimas detectáveis obtidos para os radionuclídeos ⁴⁰K, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi em vegetação analisadas por EGAR nas geometria Marinelli adaptada (este trabalho) e a geometria tradicional (placa de petri em poliestireno tipo cilíndrica 1,5 cm de altura; 8 cm de diâmetro; massa máxima de 7 g), utilizado pelo Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste, Brasil.

Tabela 2. Comparação de atividades mínimas detectáveis para radionuclídeos em folhas analisadas por EGAR.

Nuclídeo	Atividade mínima detectável (Bq/kg)	
	Geometria Marinelli adaptada (este trabalho)	Geometria normalmente empregada
⁴⁰ K	4,5	111
⁶⁰ Co	0,7	12
¹³⁴ Cs	0,7	13
¹³⁷ Cs	0,6	12

Nuclídeo	Atividade mínima detectável (Bq/kg)	
	Geometria Marinelli adaptada (este trabalho)	Geometria normalmente empregada
^{214}Pb	1,1	39
^{214}Bi	0,8	21

As atividades mínimas detectável para a geometria empregada neste trabalho foram 22 vezes inferiores à geometria tradicional utilizada para análise de amostras de vegetação no CRCN-NE.

4. Conclusões

- A geometria Marinelli adaptada se apresenta como uma boa alternativa para determinação de baixas concentrações de atividade em amostras de matrizes ambientais.
- Pesquisas que envolvem análises radiométricas de amostras com pouca massa podem ser viabilizadas com a utilização da geometria Marinelli adaptada.
- É possível obter melhoria na atividade mínima detectável a partir da combinação dos parâmetros geométrica e massa da amostra.

Agradecimentos

Os autores agradecem ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e à Fundação de Amparo à Ciência e Tecnologia de Pernambuco (FACEPE).

Referências

- Canberra (2009). Genie 2000 2.3. Customization tools manual. Meriden: Canberra
- Ferreira, M. (2012). Study of the Efficiency of a HPGe detector semi-empirical and experimental methods, Post - Graduate Program in Science and Technology Radiation, Minerals and Materials.

- ISO. (2005). Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparisons. International organization for standardization. Geneva: ISO, 66p
- Paiva, J. D. S., Sousa, E. E., de Farias, E. E., do Carmo, A. M., Silva Filho, C. A., & De França, E. J. (2015). Applied tools for determining low-activity radionuclides in large environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 306(3), 631-636.
- Rodenas, J., Pascual, A., Zarza, I., Serradell, V., Ortiz, J., & Ballesteros, L. (2003). Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 496(2), 390-399.