

BR9613222

IRD-CNEN - NT - 005/85
DETERMINAÇÃO DE Pb-210 E U-238 EM AMOSTRAS AMBIENTAIS POR
MEDIDA DIRETA USANDO ESPECTROMETRIA GAMA DE BAIXA ENERGIA

J.M. GODOY
A.H. MENDONÇA
I.A. SACHETTI

S U M Á R I O

Pag.

RESUMO

ABSTRACT

1.	INTRODUÇÃO	09
2.	PRINCÍPIO	10
3.	MATERIAL E MÉTODOS	10
4.	RESULTADOS E DISCUSSÃO	11
5.	CONCLUSÃO	14
	REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICA	15

**DETERMINAÇÃO DE Pb-210 E U -238 EM
AMOSTRAS AMBIENTAIS POR MEDIDA DIRETA
USANDO ESPECTROMETRIA GAMA DE BAIXA ENERGIA**

**JOSÉ MARCUS GODOY
ANAMELIA HABIB MENDONÇA
IVANOR ANTONIO SACHETT**



**WHO COLLABORATING
CENTER FOR SECONDARY
STANDARD RADIATION
DOSIMETRY**



**IAEA DESIGNATED
SECONDARY STANDARD
DOSIMETRY LABORATORY**

**INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA
RIO DE JANEIRO**

1 9 8 5

EDITOR: CNEN/IRD/DRH
Departamento de Recursos Humanos
Divisão de Documentação Científica e Publicações
Endereço: Av. das Américas, km 11,5 Barra da Ti
juca - Rio de Janeiro - RJ
CEP: 22700
Telefone: (021) 342-5252

PERIODICIDADE: Irregular

DISTRIBUIÇÃO: Gratuita

RESPONSÁVEL: Silene Elian
Dilma Monteiro Silva

DATILOGRAFIA: Beatriz Correia Rebelo

REPROGRAFIA: Paulo Roberto Maciel

GODOY, J.M.

Determinação de Pb-210 e U-238 em amostras ambientais por medidas diretas usando espectrometria gama de baixa energia. José Marcus Godoy Anamélia Habib Mendonça e Ivanor Sachett. Rio de Janeiro: I.R.D., 1985.

CDD535.J287

R E S U M O

Foi feita a determinação de Pb-210 e U-238 em amostras ambientais, por espectroscopia gama, utilizando-se os fotopicos das radiações de 47 keV (4%) para o Pb-210 e a de 63 keV (3,9%) do Th-234 para o U-238.

Foi empregado um detetor de germanio tipo coaxial da ORTEC, com resolução de 0,8 keV para o fotopico de 60 keV do Am-241. A determinação da eficiência foi feita utilizando-se uma solução do radionuclídeo em água como matriz. A amostra foi condicionada numa geometria cilíndrica de 7cm de diâmetro por 3cm de altura, com massa de 25 a 180g, conforme sua densidade. Para cada amostra foi feita a determinação do fator de correção da auto-absorção, por meio de uma fonte externa de Pb-210, no caso de medida de Pb-210, e Am 241 (60 keV), para o caso de medida de U-238.

Os resultados obtidos foram comparados aos obtidos por métodos baseados em separações radioquímicas, e apresentaram boa concordância, com desvios menores que 20%.

O limite de detecção variou de amostra para amostra, situando-se na faixa de pCi/g para 200 minutos de contagem, sendo função do fator de absorção.

A B S T R A C T

The determination of Pb-210 and U-238 by γ -spectrometry in environmental samples was carried out using the 47 KeV (4%) line for Pb-210 and the 63 KeV (3,9%) line from Th-234 to U-238.

An intrinsic Ge detector with 0,8 KeV resolution for the 60 KeV line of Am-241 was employed. The efficiency was determined by using the radionuclide water solution. The samples were measured in a cylindric geometry with 7cm diameter and 3cm high with a mass ranging from 25 to 180g, depending on the density. The self-absorption correction factor for each sample was determined by using an external source of Pb-210 and Am-241.

The results showed good agreement with the radiochemical analysis values. The differences were lower than 20%.

The detection limit changed from sample to sample staying on the pCi/g range for the 200 minutes counting time.

1. INTRODUÇÃO

Com o advento dos detectores de Ge-intrínseco, um grande esforço tem sido desenvolvido no campo da espectrometria gama de baixa energia (< 100 keV) (1-8).

Diversos radionuclídeos, de importância do ponto de vista de controle ambiental de instalações nucleares, são emissores gama de baixa energia, por exemplo Pb-210 (47 keV) e Am-241 (60 keV). Tais radionuclídeos são até hoje determinados por métodos radioquímicos, na maior parte deles longos e dispendiosos (9-12).

Como a concentração de tais radionuclídeos no meio-ambiente encontra-se na faixa de pCi/g ou menos, o uso de grande quantidade de amostra se faz necessário. Entretanto, a necessidade de se avaliar para cada amostra o fator de auto-absorção, restringiu o uso da espectrometria gama de baixa energia a uns poucos casos, nos quais a matriz era mantida aproximadamente constante (1-3).

Cutshall M. H. e outros desenvolveram um método simples para determinação do fator de auto-absorção, utilizando uma fonte externa (7). Tal método foi aplicado com sucesso na determinação de Pb-210 em sedimentos (7) e de Am-241 em solos sedimentares (8).

Neste trabalho foi feita a determinação de Pb-210 e U-238 pelo mesmo método. O Pb-210 emite raios gama de 47 keV com abundância relativa de aproximadamente 4%. O U-238 não é um emissor gama, mas decai em Th-234 ($t_{1/2} = 24,1d$), cujos raios gama de 63 keV e 3,9% de intensidade podem ser utilizados visando a determinação de U-238 (2-6).

2. PRINCÍPIO

Para um feixe de raios-gama mono-energético a absorção segue a equação:

$$I = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho} \cdot x \cdot \rho} \quad (1)$$

na qual I e I₀ são as intensidades do feixe atenuado e não atenuado, μ/ρ o coeficiente de absorção massivo (cm²/g), ρ a densidade do material (g/cm³) e x o caminho percorrido pelo feixe (cm).

No caso de uma amostra a equação se torna (13)

$$R_0 = \frac{R \frac{\mu}{\rho} \cdot \rho \cdot x}{1 - e^{-\mu/\rho \cdot x \cdot \rho}} \quad (2)$$

onde R₀ e R são as taxas de contagem não atenuada e atenuada

Pela substituição de (1) em (2) obtém-se:

$$\frac{R_0}{R} = \frac{\ln(I/I_0)}{I/I_0 - 1} \quad (3)$$

Os valores de I e I₀ são obtidos com a fonte externa.

3. MATERIAL E MÉTODOS

As amostras de plantas foram calcinadas a 450° C e reduzidas a pó em gral de porcelana. Antes de pesadas, as amostras foram levadas à peso constante à 105° C. A geometria de contagem adotada foi cilíndrica com 7cm de diâmetro e 3 de altura. Como recipiente foram usados potes de polietileno. Foi utilizado um detector de germânio intrínseco ORTEC GAMMA-NPGe de 17,2 cm² x 4,5cm, com uma resolução de 0,8keV à 60keV. O sistema de medida foi calibrado.

utilizando-se padrões de Pb-210 e Am-241 diluídos em $3M$ HNO_3 , de modo a obter-se a geometria desejada. A incerteza total dos padrões era de 3%. A eficiência do detetor, bem como os fatores de auto-absorção, para a energia de 63 keV do Th-234 foi suposta ser igual àquela de Am-241 (60 keV). Como fonte externa foram usados um disco contendo 0,5 μ Ci Pb-210 e outro contendo 10 μ Ci de Am - 241.

Após a medida da amostra, 200-400 min, o valor de I era determinado colocando-se a fonte sobre a amostra. O valor de I_0 foi determinado utilizando-se um recipiente vazio. O tempo de contagem com a fonte foi ajustado de tal forma a obter-se no mínimo 20.000 contagens, na área do fotopico de interesse.

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os valores de eficiência do sistema, obtidos com os padrões em solução aquosa, assim como os respectivos valores de Ro/R estão apresentados na Tabela 1.

Tabela 1: Valores da eficiência do sistema utilizado para Pb-210 e Am-241

RADIONUCLÍDEO	EFICIÊNCIA (%)	Ro/R
Pb-210 (47 keV)	(4,0 \pm 0,2)	1,315
Am-241 (60 keV)	(4,2 \pm 0,2)	1,280

Os valores acima foram utilizados para a determinação de Pb-210 e U-238 em diversas amostras, cujos teores desses radionuclídeos foram determinados radioquimicamente ou estimados pelo valor de Ra-226. (Tabela 2)

Tabela 2: Comparação entre resultados obtidos pela medida direta e aqueles obtidos por radioquímica

AMOSTRA	Pb-210(esp.gama) (pCi/g)	Pb-210(radioq.) (pCi/g)	U-238(esp.gama)	U-238(radioq.)*
Sed. WWG-477	(1,1 ± 0,5)	(0,95 ± 0,08)	(0,8 ± 0,4)pCi/g	(0,95 ± 0,08)pCi/g
Solução Padrão U	-	-	(1,08 ± 0,20)mg	1,00mg
Cinza Pasto 1	(10,9 ± 2,2)	(11,0 ± 1,4)	< 3,3pCi/g	(0,31 ± 0,04)pCi/g
Cinza Pasto 2	(3,5 ± 1,9)	(2,9 ± 0,4)	< 3,1pCi/g	(0,10 ± 0,02)pCi/g
Cinza Pasto 3	(5,8 ± 1,3)	(8,20 ± 0,54)	< 1,7pCi/g	(0,14 ± 0,02)pCi/g
Cinza Pasto 4	(5,5 ± 1,9)	(6,96 ± 0,47)	< 2,6pCi/g.	(0,78 ± 0,07)pCi/g
Conc. Fosfato	-	-	(140 ± 11)ppm	(150 ± 8)ppm

* Ra-226 IRD=(0,95 ± 0,08)pCi/r, WWG=(0,89 ± 0,11)pCi/g

Os valores obtidos pela medida direta concordaram com os determinados radioquimicamente, levando-se em conta os erros envolvidos. A única discrepância foi o valor de Pb-210 na cinza 3.

Os limites de detecção variam entre 0,64 e 3,3pCi/g. O principal fator a influenciar no limite de detecção foi a densidade da amostra. As amostras de baixa densidade embora apresentassem uma eficiência de até 70% superior a de sedimento, as massas contidas na geometria adotada eram bem inferiores (Tabela 3).

Tabela 3: Limites de detecção (LD) alcançados em 400 minutos de contagem

AMOSTRA	MASSA(g)	E-Pb(%)	E-U(%)	LD-Pb(pCi/g)	LD-U(pCi/g)
Sedimento	189,0	2,6	3,3	0,73	0,64
Solução U.	120	-	4,2	-	0,7
Cinza 1	23,88	4,4	4,6	3,4	3,3
Cinza 2	26,33	4,3	4,5	3,2	3,1
Cinza 3	52,83	3,9	4,4	1,8	1,6
Cinza 4	31,67	4,1	4,5	2,8	2,6
Conc.Fosf.	241,0	1,6	1,6	1,9	1,9

A reprodutibilidade da técnica foi testada medindo-se por 6 vezes a solução contendo 1mgU, procedendo não apenas a contagem da amostra, como também a determinação de I/I₀. Os valores obtidos são apresentados na Tabela 4. A exatidão de 10% obtida pode ser considerada boa para os objetivos do trabalho.

Tabela 4: Teste da reprodutibilidade da técnica (Amostra=Solução contendo 1mgU, Tempo de contagem=200min)

DETERMINAÇÃO	U (mg)
1	(1,08 ± 0,20)
2	(1,07 ± 0,20)
3	(0,91 ± 0,20)
4	(0,84 ± 0,20)
5	(0,94 ± 0,19)
6	(0,94 ± 0,20)
Média	(0,96 ± 0,09)

5. CONCLUSÃO

A determinação direta de U-238 e Pb-210 em amostras ambientais como descrito, é possível, exata e simples de ser efetuada. O limite de detecção alcançado permite sem dúvida a determinação de U-238 e Pb-210 na maioria dos solos e sedimentos, sendo possível ainda em alguns casos a determinação em outros tipos de amostras.

AGRADECIMENTOS

Nossos agradecimentos ao Laboratório de Análises Minerai~~s~~/DEx-III CNEN, na pessoa do Dr. João Alfredo Medeiros, pela análise de U no concentrado fosfático. Queremos também agradecer à Divisão de Radioquímica/DEPRA/IRD/CNEN pela análise de Pb-210 e U-238 realizada nas demais amostras.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - BERGERIOUX C, RAPIN F. E HAERDI VV - "Lead-210 Geochronology in Marine and Lacustrine Sediments using High Resolution Low-Energy Photon Espectrometry" - Radiochem. Radional. Letters 45(4) 241-250 (1980).
- 2 - KIM K. H. E BURNETT W.C. - "Ray Spectrometric Determination of Uranium-series Nuclides in Marine Phosphorites" - Analytical Chemistry 55, 1796-1800 (1983).
- 3 - LINDEKEN C. L., COLES D.G. E MEADOCOS J.W. - "Ge (Li) Spectrometric Measurements of Isotopic Uranium Ratios in Soil Treated With Apatite-Derived Fertilizers" em Isotope Ratio as Polluants Source and Behaviour Indicators - Proceedings of a Symposium, Viena 18-22 Nov 1974, IAEA-SM-191.
- 4 - SMITH A.R. E WOLLENBERG H. A. - "High-Resolution Gamma Ray Spectrometric for Laboratory Analysis of the Uranium and Thorium Decay series" Proceedings of the Second International Symposium on Natural Radiation Environment Houston 7-11 Setembro 1977 CONF 720805-02.
- 5 - SILL C. - "Direct Measurements of Radionuclides in Uranium Mill Tailings, Ore and Dust - "Workshop on Methods for Measuring Radiation in and around Uranium Mills, Albuquerque 25-26 maio 1977 DC-MSS 1964/3-09.
- 6 - PHLIPPOT J.C., BOVARD P. E PAMETIER R. - "Analysis of Uranium Isotopic Abundances by Fine Gamma Spectrometry" em Proceedings of the 8th IMKO Congress 21-17 maio 1979, Moscou.

- 7 - CUTSHALL N.H., LARSEN I. L. E OLSEN C.R. - "Direct Analysis of Pb-210 in sediment Samples: Self-Absorption Corrections" - Nuclear Instruments and Methods 206, 309-312 (1983).
- 8 - LARSEN I. L. E LEE S. Y. - "Non destructive Photon Analysis of Am-241 in Soil and Sediment Utilizing Self-Absorption Conections" Journal of Radioanalytical Chemistry 79 (1) 169 (1983).
- 9 - DEPARTAMENTO DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA AMBIENTAL - INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA (CNEN) - Manual de Procedimentos.
- 10 - ENVIRONMENT MEASUREMENTS LABORATORY - "Procedures Manual" HASL 300.
- 11 - SMITHSON G. L. (ed) - "Radiochemical Procedures for Determination of Selected members of the Uranium and Thorium Series "CANMET - Report 78-22 - Janeiro 1979.
- 12 - JOSHI L.U. E KU T.L "Measurement of Pb-210 from a Sediment Core of the Coast of California" Journal of Radioanalytical Chemistry 52 (2) 329-334 (1979).
- 13 - WATT D.E. e D. RAMSDEN. "High Sensitivity Counting Techniques International Series of Monographs on Eletronics and Instrumentation vol. 20. Pergamon Press, 1964.