

CORREÇÃO DE AUTO-ABSORÇÃO NA ESPECTROMETRIA GAMA DE AMOSTRAS AMBIENTAIS.

Luzia Venturini e Marcelo B. Nisti

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP
Caixa Postal 11049
05422-970, São Paulo, Brasil

RESUMO

Foram calculadas correções de auto-absorção a serem aplicadas na espectrometria gama de amostras ambientais com densidades na faixa de 0,42 g/ml a 1,59 g/ml, quando a curva de eficiência é experimentalmente determinada para uma amostra de água medida na mesma geometria que a amostra. Foram utilizadas duas geometrias de medida: frasco Marinelli de 1 l com 850 ml de amostra e frasco de polietileno de 100 ml. A correção de ângulo sólido foi obtida por integração numérica, usando o modelo de Debertin para frasco Marinelli, e os coeficientes de atenuação linear das amostras foram determinados experimentalmente.

I. INTRODUÇÃO

A espectrometria gama de amostras ambientais é utilizada em vários estudos tais como o controle de radioatividade em alimentos e avaliação de impacto ambiental. Para tais medidas, é preciso conhecer a eficiência do sistema de medidas, geralmente obtida por meio de padrões calibrados que reproduzem a geometria e a densidade das amostras. O padrão mais simples é o padrão água, cujo preparo consiste em diluir uma solução radioativa calibrada, de vários radionuclídeos, até um certo volume a ser medido em uma determinada geometria a ser mantida na medida das amostras ambientais. Entretanto, diferentes densidades resultam em diferentes fatores de auto-absorção, o que leva à necessidade de correção da curva de eficiência padrão. Esta correção pode ser feita quando os coeficientes de atenuação da amostra são conhecidos e utilizando-se modelos para o cálculo da auto-absorção. Neste trabalho, foram medidos os coeficientes de atenuação linear para amostras em pó e amostras sólidas, as últimas quebradas em pedaços pequenos de, no máximo, 1 cm³, com densidades na faixa 0,42 g/ml a 1,59 g/ml. Estes dados foram ajustados de modo a se obter os coeficientes de atenuação para as principais transições gama emitidas pelos radionuclídeos presentes nas séries radioativas naturais. As correções de auto-absorção foram feitas em relação ao padrão água, para 2 geometrias de medida: frasco Marinelli de 1 l, com 850 ml de amostra (geometria M850) e frasco de polietileno de 100 ml com 100 ml de amostra (geometria F100). Os frascos Marinelli são frascos com reentrância, próprios para ajustarem-se ao

invólucro cilíndrico onde aloja-se o detector. O frasco F100 é colocado sobre o detector e é utilizado quando a massa de amostra disponível é pequena.

Os resultados foram avaliados por meio da comparação entre os resultados previstos por este método para o leite em pó e aqueles obtidos por meio da comparação das curvas experimentais calculadas para água e leite em pó.

II. MATERIAIS

TABELA 1. Amostras e Densidades Aparentes

Amostra	ρ (g/ml)
Areia	1,59
Brita	1,37
Tijolo cerâmico	1,30
Bloco cerâmico	0,93
Capa de telha	0,83
Gelatina em pó	0,67
Leite em pó	0,52
Cinzas de alimentos	0,42

O sistema de medidas utilizado consistiu de um detector HPGe, modelo GEM-15190, com volume ativo de aproximadamente 90 cm³, associado a um sistema eletrônico convencional.

A Tabela 1 apresenta as amostras utilizadas e suas respectivas densidades. Estas densidades são as densidades aparentes, isto é a massa da amostra que ocupa um volume de 850 ml no frasco Marinelli dividida por este volume. A limitação imposta pelo uso da densidade aparente será discutida posteriormente.

III. MÉTODOS

A determinação dos coeficientes de atenuação foi feita colocando-se uma fonte quase puntiforme de ¹⁵²Eu no centro da tampa do frasco Marinelli e medindo-se o espectro gama transmitido, para os frascos contendo água e contendo as amostras, usando-se o mesmo detector, a mesma geometria e o mesmo tempo de contagem. Neste caso, para cada energia:

$$\mu_m = \mu_a + \frac{1}{d} \ln \left(\frac{A_a}{A_m} \right) \quad (1)$$

onde:

μ_m e μ_a são os coeficientes de atenuação linear (cm⁻¹) para o material e para a água, respectivamente;

A_m e A_a são as áreas líquidas dos picos correspondentes à energia considerada no espectro gama do material e da água, respectivamente;

d é a espessura da amostra, medida desde o topo do copo do frasco Marinelli até a altura do frasco correspondente a 850 ml. Na geometria utilizada, $d = 3,80$ cm.

O efeito soma, resultante da emissão de raios gama em cascata pelo ¹⁵²Eu, depende da geometria da medida, que é mantida constante. Além disso, uma vez que o coeficiente de atenuação calculado pela Eq. (1) envolve uma razão entre áreas, a correção de efeito soma se cancela ou, pelo menos, é minimizada.

Para se obter os fatores de atenuação correspondentes a energia qualquer, E , dentro da faixa de energias dos dados experimentais, tais dados foram ajustados à uma curva descrita por:

$$\ln(\mu) = a_0 + a_1 \cdot \ln(E) + a_2 \cdot [\ln(E)]^2 \quad (2)$$

A Tabela 2 mostra os parâmetros a_0 , a_1 e a_2 obtidos para a areia e para a brita.

Os fatores de auto-absorção para as geometrias de frasco Marinelli foram calculados usando-se o modelo de Debertin [1]. Neste modelo o detector é considerado puntiforme e o volume do frasco é dividido em três regiões para cálculo do fator de auto-absorção por integração numérica (Fig. 1).

TABELA 2. Parâmetros Ajustados para Algumas Amostras.

Parâmetro	Areia	Brita
a_0	-0,11 (73)	0,67 (85)
a_1	-0,16 (25)	-0,44 (30)
a_2	-0,023 (21)	-0,002 (25)

Para um elemento de volume infinitesimal dV , localizado dentro de um frasco com esta geometria, por exemplo, na posição B, os fótons emitidos na direção do detector devem atravessar uma espessura de material z' , sendo atenuados por um fator igual a $\exp[-\mu(E).z']$. Como a eficiência do detector puntiforme é proporcional ao inverso do quadrado da distância, z , entre o detector e dV , a eficiência total, ϵ , é obtida por integração sobre todo volume ocupado pela amostra:

$$\epsilon = c(E) \int_V \exp[-\mu.z'] dV/z^2, \quad (3)$$

onde $c(E)$ é uma constante de proporcionalidade.

Para simplificar os cálculos, as paredes do frasco são consideradas paralelas. O volume do frasco é dividido em três volumes parciais, A, B e C, para os quais, as constantes de integração são dadas por:

$$\begin{aligned} z &= \sqrt{r^2 + (x - x_0)^2}, \\ z_a &= \frac{z(r - r_1)}{r}, \\ z_b = z_c &= \frac{z(x - x_1)}{x - x_0}, \\ x_u(r) &= x_0 + \frac{(x_1 - x_0).r}{r_1}, \\ r_u(x) &= \frac{r_1.(x - x_0)}{x_1 - x_0}, \end{aligned} \quad (4)$$

onde:

z = coordenada cilíndrica de dV ;

r_1 e r_2 = constantes que descrevem as dimensões do frasco;

x_1 e x_2 = constantes que descrevem as dimensões da amostra;

x_0 = distância entre o detector e o fundo do frasco,

x_3 = distância entre o fundo do frasco e o nível máximo do volume parcial B e é dado por:

$$x_s = x_0 + \frac{(x_1 - x_0) \cdot r_2}{r_1} \quad (5)$$

A integral sobre todo volume da amostra, calculada por meio dos volumes parciais A, B, e C é dada por:

$$I = I_A + I_B + I_C \quad (6)$$

onde:

$$I_A = \int_{r_1}^{r_2} \int_{x_0}^{x_u} \exp[-\mu(E) \cdot z_a] \cdot 2\pi r \cdot dx \cdot dr / z^2$$

$$I_B = \int_{x_1}^{x_s} \int_{r_1}^{r_2} \exp[-\mu(E) \cdot z_b] \cdot 2\pi r \cdot dr \cdot dx / z^2 \quad (7)$$

$$I_C = \int_{x_s}^{x_2} \int_{r_1}^{r_2} \exp[-\mu(E) \cdot z_c] \cdot 2\pi r \cdot dr \cdot dx / z^2$$

A sub-divisão do volume do frasco nos volumes parciais A, B e C somente é válida quando a localização de x_0 é tal que a linha que separa os volumes A e B não intercepta o limite superior do volume C, isto é., quando $(x_1 - x_0) \leq (x_2 - x_1) \cdot r_1 / (r_2 - r_1)$.

Para o frasco F100, temos $I = I_C$, com os seguintes limites de integração: de x_1 a x_2 para a integração em x e de 0 a r_1 , para a integração em r .

Escrevendo a Eq. (3) para a água e para a amostra e fazendo a razão entre ambas, encontramos:

$$\epsilon_m = \epsilon_a \cdot f \quad (8)$$

onde $f = I_m / I_a =$ fator de correção para auto-absorção.

A Tabela 3 mostra os valores dos parâmetros x_1 , x_2 , r_1 , r_2 e x_0 , para as geometrias utilizadas.

TABELA 3. Dimensões do Sistema de Medida.

Geometria	x_1 (cm)	x_2 (cm)	r_1 (cm)	r_2 (cm)	x_0 (cm)
M850	7,8	11,6	3,9	5,8	4,8
F100	7,0	10,8	2,9	-	4,8

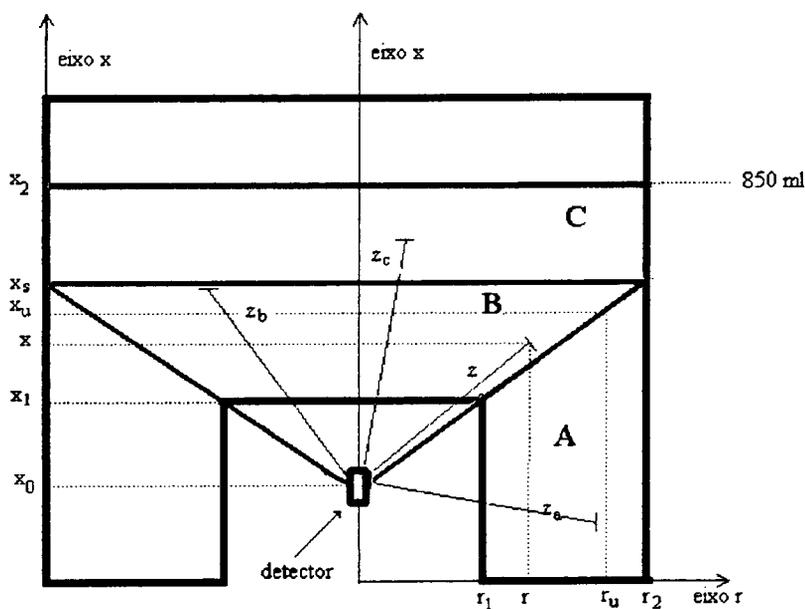


Figura 1. Seção reta do frasco Marinelli, dimensões do frasco e identificação dos volumes e das variáveis de integração.

IV. RESULTADOS E DISCUSSÃO

As Figuras 2 e 3 mostram a variação do fator de auto-absorção em função da densidade, para as geometrias medidas e as energias 186 keV e 1,46 MeV.

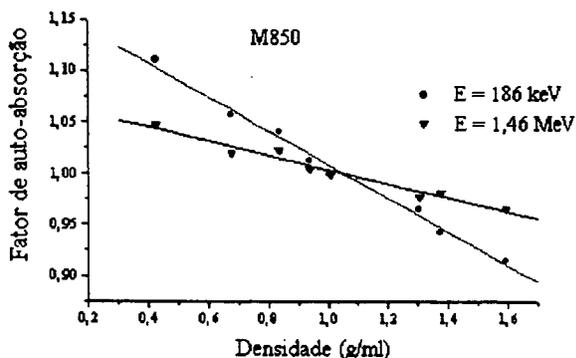


Figura 2. Variação do fator de auto-absorção para a geometria M850.

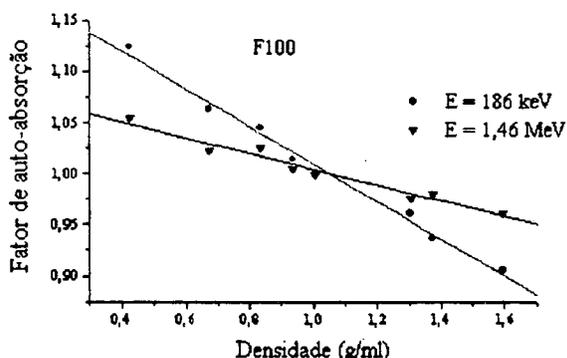


Figura 3. Variação do fator de auto-absorção para a geometria F100.

TABELA 4. Fatores de Auto-Absorção Ajustados para a Geometria M850.

E (keV)	0,42 g/ml	0,67 g/ml	0,83 g/ml	0,93 g/ml	1,30 g/ml	1,37 g/ml	1,59 g/ml
186	1.103	1.062	1.036	1.020	0.960	0.948	0.911
238	1.097	1.060	1.036	1.021	0.966	0.956	0.923
295	1.092	1.057	1.035	1.021	0.971	0.961	0.931
351	1.087	1.054	1.034	1.021	0.974	0.965	0.937
583	1.071	1.045	1.029	1.018	0.980	0.973	0.950
609	1.070	1.044	1.028	1.018	0.980	0.973	0.951
911	1.057	1.036	1.022	1.014	0.982	0.977	0.958
1461	1.044	1.027	1.016	1.009	0.983	0.979	0.964

A Tabelas 4 e 5 mostram os fatores de auto-absorção ajustados para as geometrias medidas e para as principais transições gama dos radionuclídeos presentes nas séries naturais.

Observamos que o fator de auto-absorção varia linearmente com a densidade, como já havia sido previsto por Debertin. Deste modo, os fatores de correção podem ajustados por meio da relação:

$$fa(E) = a(E) + b(E) \cdot \rho \quad (9)$$

A tabela 6 mostra os fatores de correção para o leite em pó. Nesta tabela, f_c é o fator de correção calculado dividindo-se a eficiência experimental calculada para a água pela eficiência experimental calculada para o leite em pó.

O método utilizado para o ajuste da curva de eficiência experimental já foi descrito anteriormente [3]. As incertezas das eficiências experimentais são da ordem de 3%, de forma que os valores de f_c e f_a implicam na mesma correção dentro das incertezas estatísticas. A

Figura 4 mostra a variação do fator de absorção em função da energia para a geometria F100.

Apesar dos bons resultados obtidos, existem limitações a serem respeitadas.

As primeiras delas dizem respeito ao método de medida dos fatores de atenuação. Os coeficientes de

atenuação calculados desta forma são válidos quando $1/\mu_m$ e $1/\mu_a$ são menores do que o caminho livre médio dos fótons na amostra. condição esta necessária para que o fator de build-up possa ser desprezado.

TABELA 5. Fatores de Auto-Absorção Ajustados para a Geometria F100.

E (keV)	0,42 g/ml	0,67 g/ml	0,83 g/ml	0,93 g/ml	1,30 g/ml	1,37 g/ml	1,59 g/ml
186	1116	1.067	1.041	1.022	0.954	0.941	0.901
238	1.109	1.068	1.041	1.024	0.962	0.951	0.014
295	1.103	1.064	1.040	1.024	0.967	0.957	0.923
351	1.097	1.061	1.038	1.024	0.971	0.961	0.929
583	1.080	1.051	1.032	1.020	0.977	0.969	0.934
609	1.078	1.050	1.031	1.020	0.978	0.970	0.945
911	1.065	1.041	1.025	1.016	0.980	0.974	0.953
1461	1.049	1.030	1.018	1.010	0.981	0.976	0.959

TABELA 6. Fatores de Correção para o Leite em Pó.

Energia (keV)	M850		F100	
	f_a	f_c	f_a	f_c
186	1,087	1,076	1,097	1,102
238	1,083	1,079	1,093	1,091
295	1,078	1,079	1,088	1,083
351	1,074	1,079	1,083	1,077
583	1,061	1,076	1,068	1,062
609	1,060	1,075	1,067	1,061
911	1,049	1,069	1,055	1,051
1461	1,037	1,058	1,042	1,044

Os materiais sólidos devem ser quebrados em pedaços tão pequenos quanto possível e distribuídos uniformemente no frasco, para evitar que a presença de grandes espaços vazios mal distribuídos, resultem em valores incorretos dos fatores de atenuação. A altura da

camada de amostra e da camada de água devem ser iguais, o que é de difícil verificação (e aproximação) quando a amostra não é quebrada em pedaços pequenos.

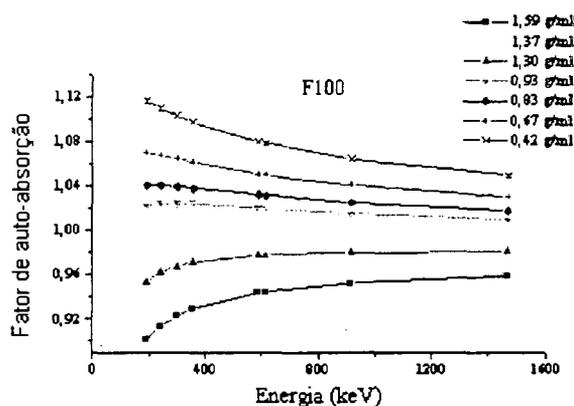


Figura 4. Fator de auto-absorção em função da energia para a geometria F100.

A função utilizada para o ajuste dos coeficientes de atenuação descreve os pontos experimentais apenas na faixa de energias utilizada, não devendo ser extrapolada. Havendo pontos experimentais suficientes, a curva de

atenuação pode ser bem descrita pela soma de duas ou mais exponenciais quando a seção de choque do material não apresentar degraus.

Finalmente, a divisão do volume do frasco Marinelli em volumes parciais apresenta restrições quanto às dimensões do frasco e é discutida por Debertin na apresentação de seu modelo.

REFERÊNCIAS

[1] Debertin, K. and Jianping, R. **Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli beakers.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol. A278, p541-549, 1989.

2] **Reactor Physics Constants.** ANL-5800, Argonne National Laboratory, USNCR 1963. Ed. United States Energy Commission.

3] Venturini, L. and Vanin, V. R. **HPGe detector efficiency calibration for extended source in the 50 - 1400 keV energy range.** Applied Radiation and Isotopes, vol. 44, p999-1002, 1993.

ABSTRACT

Corrections for self-attenuation were calculated for gamma-ray spectrometry of environmental samples with densities from 0.42 g/ml up to 1.59 g/ml, measured in Marinelli beakers and polyethylene flasks. These corrections are to be used when the counting efficiency is calculated for water measured in the same geometry. The model of Debertin for Marinelli beaker, numerical integration and experimental linear attenuation coefficients were used.