



UNIVERSIDADE
ESTADUAL DE LONDRINA

JAQUIEL SALVI FERNANDES

**APLICABILIDADE DE UM ESPECTRÔMETRO PORTÁTIL
DE CdTe E NaI (TI) PARA A MEDIDA DA ATIVIDADE DE
CÉSIO-137 (^{137}Cs) E BERÍLIO-7 (^7Be)**

Londrina
2005

JAQUIEL SALVI FERNANDES

**APLICABILIDADE DE UM ESPECTRÔMETRO PORTÁTIL
DE CdTe E NaI (Tl) PARA A MEDIDA DA ATIVIDADE DE
CÉSIO-137 (^{137}Cs) E BERÍLIO-7 (^7Be)**

Dissertação apresentada ao curso de Pós-graduação
em Física da Universidade Estadual de Londrina,
como requisito parcial à obtenção do título de
Mestre.

Orientador: Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni

Londrina
2005

JAQUIEL SALVI FERNANDES

**APLICABILIDADE DE UM ESPECTRÔMETRO PORTÁTIL
DE CdTe E NaI (TI) PARA A MEDIDA DA ATIVIDADE DE
CÉSIO-137 (^{137}Cs) E BERÍLIO-7 (^7Be)**

COMISSÃO EXAMINADORA

Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni
Universidade Estadual de Londrina

Prof. Dr. Richard Maximiliano da Cunha e Silva
CENA / USP - Piracicaba

Prof. Dr. Avacir Casanova Andrello
Universidade Estadual de Londrina

Londrina, 22 de fevereiro de 2005.

DEDICATÓRIA

Primeiramente a Deus, pela excelente vida que tem me presenteado durante toda a minha existência.

A minha esposa Carla e seus pais Adelmir e Juracy Santin e aos meus pais, Celso Fernandes e Tânia Maria Fernandes, pelo eterno incentivo, apoio e carinho.

AGRADECIMENTOS

Agradeço, em especial, ao Professor Doutor Carlos Roberto Appoloni pela amizade, companheirismo e excelente orientação, que foi indispensável para a realização deste trabalho.

Aos meus irmãos, Leila Cristina Fernandes e Anderson Fernandes, pelo incentivo e compreensão em todos os momentos.

Aos amigos e colegas de mestrado Elder, Elizabeth, Fernando, Josefa, Karila, Manuela, Marilene, Thiago e Wilson, pelo companheirismo e, sobretudo, pela amizade durante esses dois anos.

Aos amigos Elias Antunes dos Santos e Walmir Eno Pöttker, pela amizade, companheirismo e apoio para que eu realizasse e concluísse o mestrado.

Aos amigos Fábio Lopes e Paulo Sérgio Parreira, técnicos do Laboratório de Física Nuclear Aplicada, pelo companheirismo, amizade e grande ajuda na realização das pesquisas.

Aos amigos Anderson, Natasha, Ricardo, Marcelo, Diego, Leonardo, Viviane, Eduardo, Rômulo e outros tantos do Grupo de Física Nuclear Aplicada e do Departamento de Física da UEL, pelo convívio e amizade.

Aos professores e funcionários do Departamento de Física pela hospitalidade, amizade e conhecimento transmitido.

Às seguintes instituições, pela formação, oportunidade de realização do curso, infra-estrutura e facilidades oferecidas na execução deste trabalho: UEL, Departamento de Física, Fundação Araucária e CAPES.

FERNANDES, Jaquiel Salvi. **Aplicabilidade de um espectrômetro portátil de CdTe e E NaI (TI) para a medida da Atividade de Césio-137 (^{137}Cs) e Berílio-7 (^7Be).** 2005. 115f. Dissertação (Mestrado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, Londrina. 2005.

RESUMO

Neste trabalho foi estudada a aplicabilidade de um espectrômetro gama *in situ* (ROVER) de Amptek Inc., composto por um detector de Telureto de Cádmio (CdTe) de 3 mm x 3 mm x 1 mm e um detector de Iodeto de Sódio dopado com Tálcio [NaI (TI)] de 30 mm x 30 mm. As fontes radioativas usadas no trabalho foram tipo pastilha, seladas em alumínio e polietileno de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{152}Eu , 3 fontes de ^{137}Cs e amostras de solo contaminadas com ^{137}Cs . Realizou-se também, um planejamento fatorial 2^3 para otimizar o sistema de espectrometria gama *in situ*, onde determinamos que a melhor temperatura para o cristal de CdTe operar é de $-22\text{ }^\circ\text{C}$, com “Shaping Time” de $3\ \mu\text{s}$ e “Rise Time Discrimination” (RTD) com valor 3. Com o auxílio das fontes radioativas, determinamos a curva de eficiência dos dois detectores, sendo o detector de CdTe colocado a uma distância padrão de 1 metro das fontes e a 4,15 cm. O detector de NaI (TI) também foi colocado a uma distância padrão de 1 metro das fontes e a 2,8 cm. Foram realizadas medidas para determinar a Atividade Mínima Detectável (AMD) para os dois detectores. Para as fontes tipo pastilha, a AMD para o detector de CdTe a 4,15 cm da fonte de ^{137}Cs e analisando a linha de energia de 32 keV, foi de 6 kBq e a 1 metro da fonte de ^{137}Cs e analisando a linha de 661,65 keV a AMD foi de 67 kBq. Para as amostras de solo o detector de CdTe a 4,15 cm apresentou uma AMD de $693\ \text{kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para a linha de 32 keV do ^{137}Cs , e para a amostra de solo contendo ^7Be a AMD encontrada foi de $2867\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ a 4,15 cm. Para o detector de NaI (TI), analisando a linha de 661,65 keV do ^{137}Cs , a AMD para fonte tipo pastilha a 1 metro de distância foi de 7 kBq, e para as amostras de solo a 2,8 cm a AMD medida foi de $71\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Para a amostra de solo contendo ^7Be , a 2,8 cm do detector de NaI (TI), a AMD encontrada foi de $91\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Em virtude das atividades mínimas detectadas encontradas para os dois detectores, concluímos que o sistema de espectrometria gama *in situ* utilizado, possibilita a quantificação da atividade de amostras de solo contaminadas com ^{137}Cs e ^7Be , com atividades cerca de uma ou mais ordens de grandeza maior que as naturais.

Palavras-chave: Espectrômetro. Análise espectral.

ABSTRACT

In this work it was studied the application of an *in situ* gamma spectrometer (ROVER) of Amptek Inc., composed by a Cadmium Telluride detector (CdTe) of 3 mm x 3 mm x 1 mm and a 30 mm x 30 mm Sodium Iodide detector doped with Thallium [NaI (TI)]. The radioactive sources used were type pastille, sealed in aluminum and polyethylene, of ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{152}Eu , 3 sources of ^{137}Cs and soil samples contaminated with ^{137}Cs . It was performed a factorial planning 2^3 to optimize the *in situ* spectrometry system. This way it was determined that the best temperature for CdTe crystal operation is $-22\text{ }^\circ\text{C}$, with Shaping Time of $3\ \mu\text{s}$ and Rise Time Discrimination (RTD) with value 3. With the help of the certified radioactive sources, we determined the efficiency curve of the two detectors. The CdTe detector was positioned at the standard distance of 1 meter of the sources and also at 4.15 cm. The NaI (TI) detector was also positioned at the standard distance of 1 meter of the sources and at 2.8 cm. Measures were performed to determine the Minimum Detectable Activity (MDA) for both detectors. For the pastille type sources, the ^{137}Cs MDA for the CdTe detector at 4.15 cm, analyzing the energy line of 32 keV, was 6 kBq and at 1 meter of the ^{137}Cs source, analyzing the line of 661.65 keV, the MDA was 67 kBq. For soil samples, CdTe detector at 4.15 cm presented a MDA of $693\ \text{kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ for the line of 32 keV, and for the soil sample ^7Be content the MDA found was $2867\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ at 4.15 cm. For the NaI (TI) detector, analyzing the line of 661.65 keV, the ^{137}Cs MDA for pastille type source at 1 meter of distance was 7 kBq, and for soil sample at 2.8 cm the measured ^{137}Cs MDA was $71\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. For the soil sample ^7Be content, at 2.8 cm of the NaI (TI) detector, the obtained MDA was $91\ \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Due to the minimum detectable activities found for the two detectors, we concluded that the employed *in situ* gamma ray spectrometer system allows the quantification of ^{137}Cs and ^7Be activities in soil samples, for activities of about one or more orders of magnitude larger than those of natural samples.

Keywords: Spectrometer. Spectrum analysis.

LISTA DE FIGURAS

| | | |
|-------------|--|----|
| Figura 1 – | Esquema do decaimento beta menos (β^-) do ^{14}C | 17 |
| Figura 2 – | Esquema do decaimento beta mais (β^+) do ^{18}F | 17 |
| Figura 3 - | Esquema de decaimento para alguns emissores beta | 19 |
| Figura 4 - | Esquema de decaimento dos raios gama (γ)...... | 20 |
| Figura 5 – | Esquema de decaimento dos raios gama (γ) do ^{152}Dy | 20 |
| Figura 6 - | Radionuclídeos naturais e artificiais conhecidos..... | 27 |
| Figura 7 - | Seqüência de passos que conduzem à fissão nuclear, de acordo com o modelo da gota líquida..... | 29 |
| Figura 8 – | Esquema de fissão nuclear do ^{235}U , criando o ^{100}Sr e o ^{134}Xe | 29 |
| Figura 9 – | Esquema de fusão nuclear do ^2H e ^3H | 30 |
| Figura 10 - | Número de testes nucleares atmosféricos. Na figura à esquerda observa-se os dois picos principais e na figura da direita os países responsáveis pelos testes | 32 |
| Figura 11 - | Deposição global de ^{137}Cs devido ao “fallout” radioativo nos hemisférios norte e sul, durante o período de 1954 a 1990..... | 34 |
| Figura 12 - | Visão global do espectro de fundo..... | 35 |
| Figura 13 - | Visão parcial do espectro de fundo..... | 36 |
| Figura 14 - | Visão parcial do espectro de fundo..... | 36 |
| Figura 15 - | Visão parcial do espectro de fundo..... | 37 |
| Figura 16 - | Visão parcial do espectro de fundo..... | 37 |
| Figura 17 - | Visão parcial do espectro de fundo..... | 38 |
| Figura 18 - | Esquema de níveis do processo de decaimento do ^{137}Cs | 39 |
| Figura 19 - | Diagrama do ciclo do ^{137}Cs na natureza | 41 |
| Figura 20 – | Captura eletrônica da camada K pelo ^7Be | 43 |
| Figura 21 – | Esquema do decaimento radioativo do ^7Be para o ^7Li | 44 |
| Figura 22 – | Inventário acumulado de ^7Be e chuvas diárias em uma área cultivada em uma elevação próximo a Crediton, Devon, UK durante o período de novembro de 1997 a janeiro de 1998 | 47 |
| Figura 23 - | Diagrama esquemático do funcionamento da fotomultiplicadora. | 51 |
| Figura 24 – | Sistema de espectrometria gama da Amptek..... | 52 |
| Figura 25 – | Representação das dimensões do detector de NaI (TI) utilizado no trabalho..... | 52 |
| Figura 26 – | Configuração interna parcial do detector de CdTe..... | 53 |

| | | |
|-------------|---|----|
| Figura 27 – | Modelo esquemático do sistema de espectrometria gama da Amptek. | 54 |
| Figura 28 – | Representação esquemática do ROVER | 55 |
| Figura 29 – | Espectro do ^{57}Co adquirido com o detector de CdTe com RTD ligado e desligado..... | 57 |
| Figura 30 – | Espectro do ^{137}Cs mostrando a resolução em energia do detector de NaI (Tl) para a linha de 661,65 keV | 59 |
| Figura 31 – | Espectro do ^{239}Pu com detectores de NaI, CZT, CdTe e Ge..... | 60 |
| Figura 32 – | Curva da interação dos raios gama com o volume ativo do cristal de NaI (Tl) .. | 61 |
| Figura 33 – | Curva da eficiência intrínseca do detector de CdTe para as energias de 1 a 1000 keV | 62 |
| Figura 34 – | Mesa de medidas da espectrometria gama <i>in situ</i> do LFNA..... | 64 |
| Figura 35 – | Espectro da amostra de solo F0 com o detector de NaI (Tl) com e sem blindagem (tempo de cada medida 15 minutos)..... | 65 |
| Figura 36 – | Espectro da amostra de solo F0 com o detector de CdTe com e sem blindagem (tempo de cada medida 72 horas)..... | 65 |
| Figura 37 – | Amostra de solo F0. | 68 |
| Figura 38 – | Sistema de espectrometria gama <i>in situ</i> do LFNA acondicionado para transporte. | 71 |
| Figura 39 – | Sistema de espectrometria gama <i>in situ</i> do LFNA. | 71 |
| Figura 40 – | Tela principal do software PMCA da Amptek..... | 72 |
| Figura 41 – | Gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área bruta do fotopico de ^{137}Cs | 80 |
| Figura 42 – | Gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área líquida do fotopico de ^{137}Cs | 81 |
| Figura 43 – | Gráfico da distribuição normal dos efeitos para o FWHM do fotopico de ^{137}Cs | 81 |
| Figura 44 – | Varição da área bruta do fotopico com os níveis dos três fatores..... | 82 |
| Figura 45 - | Varição da área líquida do fotopico com os níveis dos três fatores..... | 82 |
| Figura 46 - | Varição do valor de FWHM do fotopico com os níveis dos três fatores..... | 83 |
| Figura 47 – | Gráfico da calibração em energia do detector de CdTe para o ganho 01 com as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs | 84 |
| Figura 48 – | Gráfico da calibração em energia do detector de CdTe para o ganho 14 com as fontes de ^{241}Am e ^{137}Cs | 85 |

| | | |
|-------------|---|----|
| Figura 49 – | (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas; (b) região de 1500 a 3500 canais do espectro ampliado. | 86 |
| Figura 50 – | (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 1 m do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas; (b) região de 2000 a 3500 canais do espectro ampliado. | 86 |
| Figura 51 – | Espectro da fonte de ^{241}Am a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 25 minutos. | 87 |
| Figura 52 – | Espectro da fonte de ^{137}Cs a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 15 minutos. | 88 |
| Figura 53 – | Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias). | 89 |
| Figura 54 – | Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 216 horas (9 dias). | 89 |
| Figura 55 – | Espectro de fundo com o detector de CdTe com o ganho 14 e tempo de medida de 72,5 horas (~ 3 dias). | 90 |
| Figura 56 – | Curva da Eficiência do detector de CdTe 1 metro da fonte com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas. | 91 |
| Figura 57 - | Curva da Eficiência do detector de CdTe 4,15 cm da fonte com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas. | 92 |
| Figura 58 - | Curva da Eficiência do detector de CdTe 4,15 cm da fonte com o ganho 14 e tempo de medida de 15 minutos. | 93 |
| Figura 59 – | Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 4,15 cm do detector de CdTe com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias). | 94 |
| Figura 60 – | Espectro da amostra de solo contendo ^7Be a uma distância de 4,15 cm do detector de CdTe com o ganho 01 e tempo de medida de 431 horas (18 dias). | 95 |
| Figura 61 – | Gráfico da calibração em energia do detector de NaI (Tl) com as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs | 97 |
| Figura 62 – | (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 1 hora; (b) região de 1700 a 3000 canais do espectro ampliado. | 98 |
| Figura 63 – | Espectro da fonte de ^{137}Cs a uma distância de 1m do detector e tempo de medida de 1 hora. | 98 |

| | | |
|-------------|---|-----|
| Figura 64 – | Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 46 horas..... | 99 |
| Figura 65 – | (a) Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 17,5 horas; (b) região de 1000 a 2000 canais do espectro ampliado..... | 100 |
| Figura 66 – | (a) Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 1m do detector e tempo de medida de 8 dias; (b) região de 1000 a 2100 canais do espectro ampliado. | 100 |
| Figura 67 – | (a) Espectro de fundo com o detector de NaI (TI) com um tempo de medida de aproximadamente 4,5 dias; (b) região de 1000 a 3000 canais do espectro ampliado. | 101 |
| Figura 68 - | Curva da Eficiência do detector de NaI 1 m da fonte e tempo de medida de 66 horas. | 102 |
| Figura 69 - | Curva da Eficiência do detector de NaI 2,8 cm da fonte e tempo de medida de 1 hora. | 103 |
| Figura 70 – | Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 2,8 cm do detector de NaI (TI) com um tempo de medida de 8 horas. | 104 |
| Figura 71 – | (a) Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 16 horas; (b) região de 1000 a 2000 canais do espectro ampliado. | 104 |
| Figura 72 - | Espectro da amostra de solo contendo ^7Be a uma distância de 2,8 cm do detector de NaI (TI) com o tempo de medida de 138 horas (~5,5 dias)..... | 105 |

LISTA DE TABELAS

| | | |
|-------------|---|-----|
| Tabela 1 - | Valores teóricos aproximados da vida média para o decaimento gama. | 23 |
| Tabela 2 - | Produtos iniciais e finais das séries radioativas..... | 24 |
| Tabela 3 - | Materiais radioativos naturais não incluídos nas séries radioativas..... | 24 |
| Tabela 4 - | Raios X e raios gama encontrados num espectro de fundo registrado por 24 dias, com suas respectivas energias, origem e taxa de contagem. | 26 |
| Tabela 5 – | Resumo dos principais radionuclídeos liberados pelos testes atmosféricos de armas nucleares e pelo acidente de Chernobyl..... | 31 |
| Tabela 6 – | Fontes e amostras de solo utilizadas na calibração dos detectores e no cálculo da eficiência..... | 67 |
| Tabela 7 – | Fatores envolvidos no planejamento fatorial 2^3 | 74 |
| Tabela 8 – | Matriz de Planejamento fatorial 2^3 dos parâmetros Shaping Time (1), RTD (2) e Temperatura (3). | 75 |
| Tabela 9 – | Matriz de contrastes para a resposta do detector de CdTe. | 76 |
| Tabela 10 – | Efeitos primários, secundários e terciário dos parâmetros envolvidos na aquisição dos espectros com o detector de CdTe (em contagens). | 77 |
| Tabela 11 – | Correspondência entre os efeitos calculados para a área bruta do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa. | 78 |
| Tabela 12 – | Correspondência entre os efeitos calculados para a área líquida do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa. | 78 |
| Tabela 13 – | Correspondência entre os efeitos calculados para o FWHM do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa. | 79 |
| Tabela 14 – | Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 1 m do detector. | 91 |
| Tabela 15 – | Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 4,15 cm do detector. | 92 |
| Tabela 16 - | Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{241}Am , ^{133}Ba e ^{137}Cs a 4,15 cm do detector..... | 93 |
| Tabela 17 – | Atividade mínima detectável para o detector de CdTe com diferentes configurações de fontes e geometrias. | 96 |
| Tabela 18 – | Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 1 m do detector..... | 102 |

| | | |
|-------------|---|-----|
| Tabela 19 – | Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 2,8 cm do detector. | 103 |
| Tabela 20 – | Valores da eficiência em função da energia para as amostras de solo F0 e F10 contaminadas com ^{137}Cs a 2,8 cm do detector de NaI (Tl)..... | 105 |
| Tabela 21 – | Atividade mínima detectável para o detector de NaI (Tl) com diferentes configurações de fontes e geometrias. | 106 |
| Tabela 22 – | Eficiência dos detectores de CdTe e NaI (Tl) para as amostras de solo F0 e F10 para as energias de 32 e 661,65 keV | 108 |

SUMÁRIO

| | |
|---|----|
| 1 INTRODUÇÃO E OBJETIVOS | 15 |
| 2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA | 17 |
| 2.1 PROCESSOS DE DECAIMENTO | 17 |
| 2.1.1 Decaimento Beta (β)..... | 17 |
| 2.1.2 Decaimento Gama (γ)..... | 20 |
| 2.2 RADIOATIVIDADE NATURAL | 23 |
| 2.2.1 Radiação Cósmica e seus Produtos de Interação | 25 |
| 2.3 RADIOATIVIDADE ARTIFICIAL | 27 |
| 2.3.1 Fissão Nuclear..... | 28 |
| 2.3.2 Fusão Nuclear | 30 |
| 2.3.3 “Fallout” Radioativo..... | 31 |
| 2.4 ESPECTROMETRIA GAMA DA RADIAÇÃO DE FUNDO | 34 |
| 2.5 RADIONUCLÍDEO CÉSIO-137 (^{137}Cs)..... | 38 |
| 2.5.1 Processo de Decaimento..... | 38 |
| 2.5.2 Características Químicas do Césio-137 | 39 |
| 2.5.3 Comportamento do Radionuclídeo Césio-137 no Solo | 39 |
| 2.6 RADIONUCLÍDEO BERÍLIO-7 (^7Be) | 42 |
| 2.7 QUANTIFICAÇÃO DA EROSÃO DO SOLO | 44 |
| 3 REVISÃO DA LITERATURA | 48 |
| 4 MATERIAIS E MÉTODOS | 51 |
| 4.1 DETECTORES UTILIZADOS | 51 |
| 4.1.1 Detector de Iodeto de Sódio Dopado com Tálcio - NaI (TI)..... | 51 |
| 4.1.2 Detector de Telureto de Cádmio – CdTe | 52 |
| 4.2 SISTEMA ROVER | 54 |
| 4.2.1 Amplificador | 54 |
| 4.2.2 “Rise Time Discrimination” (RTD)..... | 56 |
| 4.2.3 Multicanal (MCA) | 57 |
| 4.2.4 Fontes de Alimentação | 58 |
| 4.3 SISTEMA DE DETECÇÃO E GEOMETRIA..... | 58 |

| | |
|--|------------|
| 4.3.1 Calibração em Energia..... | 58 |
| 4.3.2 Resolução em Energia | 59 |
| 4.3.3 Eficiência de Detecção | 60 |
| 4.3.4 Blindagem do Sistema de Detecção..... | 63 |
| 4.3.5 Limite Mínimo de Detecção..... | 66 |
| 4.4 AMOSTRAS E FONTES UTILIZADAS..... | 67 |
| 4.4.1 Determinação da Atividade..... | 68 |
| 4.5 ESPECTROMETRIA GAMA IN SITU..... | 69 |
| 4.6 SOFTWARES UTILIZADOS..... | 72 |
| 4.7 OTIMIZAÇÃO DOS PARÂMETROS DE MEDIDAS | 73 |
| 5 RESULTADOS E DISCUSSÕES..... | 74 |
| 5.1 PROBE IN SITU DE CDTe..... | 74 |
| 5.1.1 Planejamento Fatorial 2^3 | 74 |
| 5.1.2 Espectros de Energia | 84 |
| 5.1.3 Curva de Eficiência..... | 90 |
| 5.1.4 Limite Mínimo de Detecção..... | 95 |
| 5.2 PROBE IN SITU DE NAI (TL) | 96 |
| 5.2.1 Espectros de Energia | 96 |
| 5.2.2 Curva de Eficiência..... | 101 |
| 5.2.3 Limite Mínimo de Detecção..... | 106 |
| 6 CONCLUSÕES..... | 107 |
| REFERÊNCIAS..... | 109 |

1 INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

A realização de medidas no próprio local de estudo, denominadas "Técnicas de medida *in situ*", fornecem respostas rápidas por não haver a necessidade de coleta, transporte, tratamento químico de amostras e armazenamento que normalmente consomem muito tempo, adiando por dias a tomada de decisões baseadas nos resultados. Em casos de situações de emergência, por exemplo, permite a identificação dos radionuclídeos que estão contribuindo para a taxa de exposição e, com isso, facilita as decisões sobre a aplicabilidade do procedimento de emergência a ser adotado. Vários métodos foram e continuam sendo desenvolvidos para esta finalidade.

A técnica de medida *in situ* está sendo incorporada nas medidas da taxa de erosão e/ou deposição do solo com o uso da metodologia do ^{137}Cs , onde a comparação do valor do inventário de ^{137}Cs de um ponto amostrado com um valor de referência, que representa a quantidade de ^{137}Cs depositado pelo "fallout" na região estudada, fornece através de modelos, a taxa de erosão e/ou deposição do solo. Valores do inventário de ^{137}Cs menor do que o valor de referência é um indicativo de perda de solo, enquanto valores de inventário maior que o de referência é um indicativo de ganho de solo.

Muitos métodos *in situ* foram desenvolvidos, porém há três métodos que são mais citados na literatura: o método dos múltiplos picos, método da razão pico vale e método do prato de chumbo. O método dos múltiplos picos usa a razão entre a taxa de contagem do pico de 32 keV e a de 661,65 keV do ^{137}Cs . A atenuação relativa destas linhas é fortemente dependente da distribuição de profundidade da atividade e, conseqüentemente, a taxa de contagem é uma função da profundidade. O método da razão pico vale analisa a razão entre a taxa de contagem do pico e a taxa de contagem da região de baixa energia do lado esquerdo do pico (vale). O método do prato de chumbo consiste em realizar uma medida normal a 1 metro sobre a superfície do solo e outra com um prato circular de chumbo posicionado entre o detector e o solo (MACDONALD et al., 1999).

Neste trabalho estudaremos a aplicabilidade de um espectrômetro *in situ* de CdTe e NaI (TI) para medidas de ^{137}Cs e ^7Be no solo, com o objetivo de usá-lo no processo da determinação da taxa de erosão e/ou deposição de solo.

O ^{137}Cs é um radionuclídeo artificial e foi depositado na superfície terrestre devido aos testes nucleares atmosféricos, realizados principalmente na década de 60 quando ocorreu a maior deposição ou "fallout". O ^{137}Cs tem uma meia vida relativamente longa de

30,07 anos e em 95 % dos casos decai por β^- para o ^{137m}Ba , que possui meia vida de 2,55 minutos e em 85 % dos casos emite um gama com energia de 661,65 keV. Além da energia de 661,65 keV, o ^{137m}Ba emite raios X de 31,81 keV, 32,19 keV e 36,4 keV, que também caracteriza o radionuclídeo ^{137}Cs . Em contato com o solo, o ^{137}Cs é forte e rapidamente adsorvido pelas partículas mais finas (argila e matéria orgânica). Uma vez adsorvido o ^{137}Cs não é facilmente removido pelos processos químicos naturais do solo, “marcando” o solo. Desta forma quando o solo “marcado” é erodido, o ^{137}Cs é transportado junto com ele.

O ^7Be é um radionuclídeo natural de origem cosmogênica, com meia vida de 53,22 dias, formado pelo processo de espalação de núcleos leves da atmosfera, tais como: carbono, nitrogênio e oxigênio. Uma vez formado, o ^7Be é rapidamente associado às partículas de aerossóis da ordem de submicron. Estes aerossóis entram nos ambientes marinhos, terrestres e vegetais através da deposição úmida ou seca. Após a deposição, o ^7Be na forma iônica ($^7\text{Be}^{+2}$) tende a associar-se rápido e fortemente aos materiais particulados, solos superficiais e vegetação do ambiente em questão.

As medidas de espectrometria gama *in situ* observadas na literatura, são quase que exclusivamente realizadas com detectores de HPGe, os detectores de Telureto de Cádmio foram introduzidos no final da década de 90 nas medidas *in situ*. Este detector proporciona grandes expectativas no que diz respeito a medidas de campo, pois possuem uma boa resolução em energia e funcionam em temperaturas ambientes, devido a um sistema de resfriamento termoelétrico (efeito peltier). Pouco se sabe sobre a sua performance em medidas de campo para baixas atividades. Desta forma os principais objetivos deste trabalho foram explorar o uso do sistema ROVER de espectrometria gama *in situ* da Amptek, composto por um probe de CdTe e outro de NaI (TI), otimizando suas condições de operação, determinar suas curvas de eficiência e medir a atividade mínima detectável dos dois detectores para os radionuclídeos de interesse.

2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

2.1 PROCESSOS DE DECAIMENTO

2.1.1 Decaimento Beta (β)

O processo de decaimento β mais básico consiste na conversão de um próton em um nêutron ou de um nêutron em um próton, através da emissão ou absorção de elétrons.

O processo de decaimento envolvendo a emissão de um elétron é mostrado na Figura 1, recebendo o nome de decaimento β^- . E envolvendo a emissão de um pósitron, é apresentado na Figura 2, denominado decaimento β^+ . O processo inverso ao decaimento β^- , a absorção de um elétron pelo núcleo, é o processo de captura eletrônica no decaimento beta (EC).

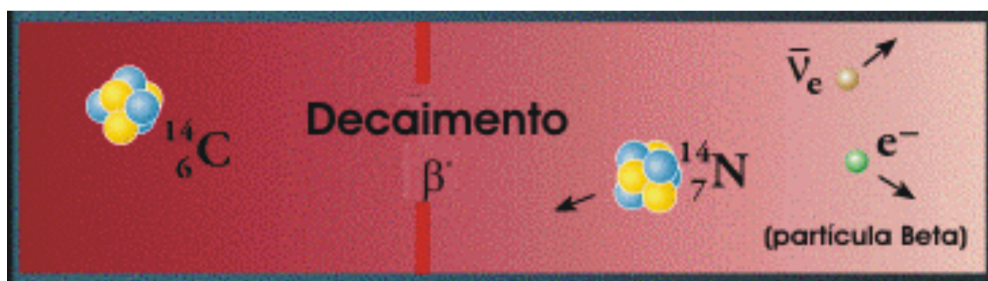


Figura 1 – Esquema do decaimento beta menos (β^-) do ^{14}C (adaptado de <http://www.lbl.gov/abc/wallchart>).

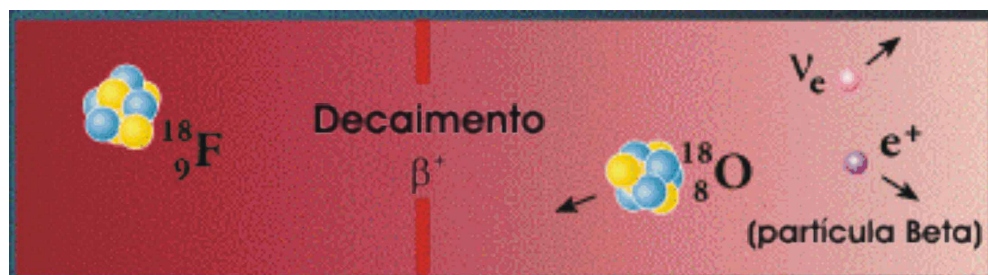


Figura 2 – Esquema do decaimento beta mais (β^+) do ^{18}F (adaptado de <http://www.lbl.gov/abc/wallchart>).

A distribuição de energia do decaimento beta de elétrons forneceu resultados experimentais confusos no início das pesquisas em radioatividade. Notou-se que no decaimento β , a conservação da energia e momento não eram compatíveis com o problema de dois corpos, pois além do espectro de linha monoenergética dos elétrons de conversão, existia o espectro contínuo dos elétrons de desintegração. Assim, como o decaimento é uma transição entre dois estados de energia definida, era inconsistente os elétrons emitidos não terem sempre a mesma energia. Para solucionar este problema, foi postulado por Pauli a existência de uma outra partícula que acompanha o elétron no decaimento beta e que carrega uma quantidade de energia igual à diferença entre a energia do elétron emitido e a energia máxima do espectro beta. Essa partícula foi chamada neutrino (ν).

O decaimento β^- é o processo no qual um nêutron decai em um próton mais um elétron (partícula β^-) e um antineutrino, que é representado esquematicamente por:



Num processo geral do decaimento β^- de um núcleo ${}_Z X^A$, pode-se representar:



onde $Q_{\beta^-} = M(Z, A) - M(Z+1, A)$

O decaimento β^+ é o processo no qual um próton decai em um nêutron mais um pósitron (partícula β^+) e um neutrino, representado esquematicamente por:

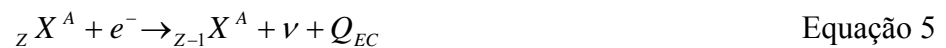


que, em um processo geral é representado como:



onde, $Q_{\beta^+} = M(Z, A) - M(Z-1, A)$

A captura eletrônica é o processo pelo qual um próton do núcleo captura um elétron da camada K ou L. A captura de um elétron da camada K tem maior probabilidade de ocorrer devido ao fato desta camada estar mais próxima do núcleo, este processo é chamado captura-K. A vacância na camada K ou na camada L é preenchida por um elétron das camadas mais exteriores com a emissão de raios X, característico do núcleo produto. Este processo é representado esquematicamente como:



onde,

$$Q_{EC} = M(Z, A) - M(Z - 1, A) - B(e_K) \quad \text{Equação 6}$$

Como neste processo nenhuma partícula carregada é emitida, ele só pode ser observado por causa da emissão de raios X do núcleo filho.

A seguir apresenta-se o exemplo de um esquema de desintegração beta, que fornece informações sobre os níveis de energia dos núcleos produto.

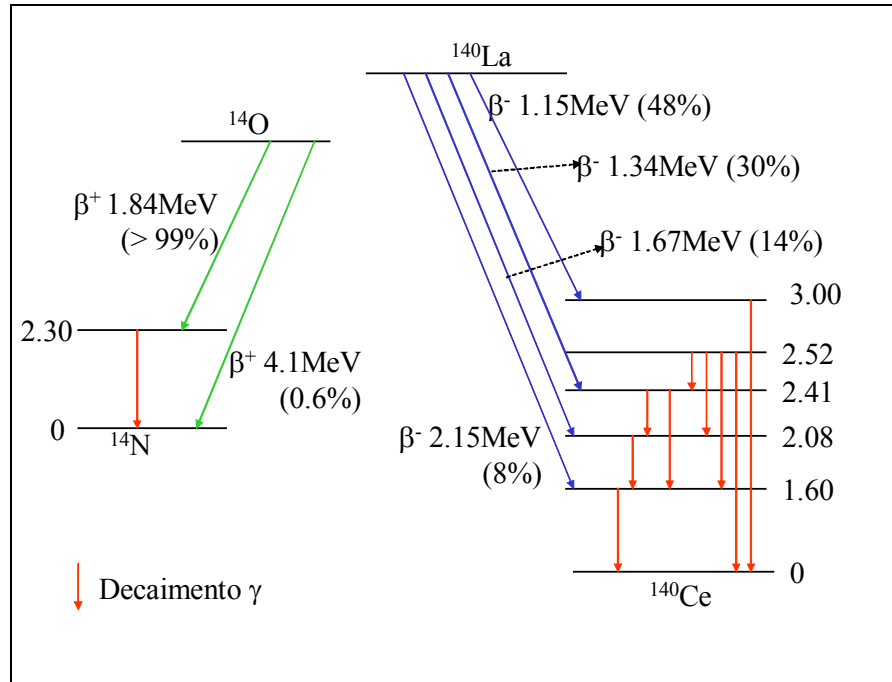


Figura 3 - Esquema de decaimento para alguns emissores beta (extraída de KAPLAN, 1963).

2.1.2 Decaimento Gama (γ)

A maioria dos decaimentos alfa e beta deixa o núcleo final em um estado excitado. Estes estados excitados decaem rapidamente para o estado fundamental através da emissão de um ou mais raios gama. A radiação gama é, portanto, uma radiação eletromagnética emitida espontaneamente pelos núcleos atômicos quando estes decaem de estados excitados nucleares para estados menos excitados, conforme as Figuras 4 e 5.

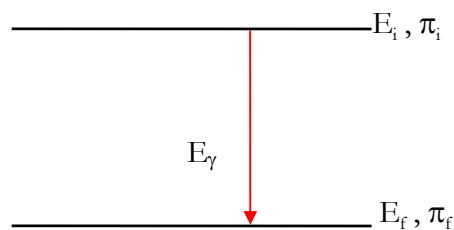


Figura 4 - Esquema de decaimento dos raios gama (γ).



Figura 5 – Esquema de decaimento dos raios gama (γ) do ^{152}Dy (adaptado de <http://www.lbl.gov/abc/wallchart>).

O quantum de energia emitido deve estar de acordo com as condições de conservação de momento angular e paridade π .

De modo geral, a radiação eletromagnética do núcleo é separada em tipos distintos, chamados radiação multipolar. Esta separação é feita de acordo com a quantidade de momento angular L carregado por cada fóton emitido, ou seja, raios γ com uma certa energia podem ser emitidos com diferentes momentos angulares. A probabilidade total de emissão é a soma das probabilidades parciais de emissão para cada tipo de raios γ (raios γ com diferentes momentos angulares), sendo que o primeiro termo não nulo é o que predomina, pois tem a maior probabilidade de ocorrer. Os fótons têm somente valores inteiros de momento angular L ,

dado pela regra de seleção, que está de acordo com a conservação do momento angular $|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f|$, onde J_i e J_f são os números quânticos de spins do estado inicial e final, respectivamente, do núcleo emissor. Entretanto, transições gama entre os estados $J_i = 0$ e $J_f = 0$ são proibidas como consequência do fato que as ondas eletromagnéticas são de natureza transversal e, portanto, não são emitidos fótons com $L = 0$.

As radiações multipolares são caracterizadas pela sua ordem dada por 2^L . A ordem representa o tipo de multipolo que é o emissor da radiação eletromagnética. Citam-se alguns casos: para uma radiação multipolar com momento angular $L=1$, tem-se uma ordem de 2^1 que representa um dipolo vibrando. Para uma radiação multipolar com momento angular $L=2$, tem-se uma ordem 2^2 que representa um quadrupolo vibrando, para $L=3$ um octopolo e assim por diante. Entretanto, para cada valor de momento angular L existem duas classes de radiação, a radiação do tipo elétrica (E) e a radiação do tipo magnética (M). Estas radiações diferem pelas suas paridades. A paridade do campo multipolar para radiação do tipo elétrica é dada por:

$$\pi = (-1)^L \quad \text{Equação 7}$$

e para radiação do tipo magnética,

$$\pi = (-1)^{L+1} \quad \text{Equação 8}$$

Da conservação da paridade para os estados considerados na Figura 4, tem-se:

$$\Delta\pi = \frac{\pi_i}{\pi_f} \quad \text{Equação 9}$$

Se $\Delta\pi = +1$, significa que os estados iniciais e finais tem a mesma paridade (paridade par) e se $\Delta\pi = -1$, significa que há mudança de paridade (paridade ímpar).

Como exemplo, considerar um estado inicial de momento angular $J_i=1/2$ e paridade positiva (+) e um estado final de momento angular $J_f=3/2$ e paridade negativa (-), de forma que se terá para a radiação gama os possíveis momentos angulares $|1/2 - 3/2| \leq L \leq |1/2 + 3/2|$, ou seja, $L = 1, 2$ com paridade negativa. As possíveis

transições multipolares serão E1 e M2, isto é, uma radiação elétrica tipo dipolo e uma radiação magnética tipo quadrupolo.

Para transições de multipolo elétrico de ordem 2^L , a probabilidade de decaimento, usando o modelo de camadas ou de partícula independente, é dada por (extraído de KAPLAN, 1963):

$$\lambda_{EL} = 2\pi\nu \frac{e^2}{\eta c} S \left(\frac{R}{\Delta} \right)^{2L} \quad \text{Equação 10}$$

Onde λ_{EL} é a constante de desintegração para o decaimento γ com a emissão de radiação E_L , ν é a frequência da radiação emitida, $\Delta = \lambda/2\pi$, onde λ é o comprimento de onda da radiação emitida, R é o raio do núcleo e S é uma quantidade que depende de L , dada por (extraída de KAPLAN, 1963):

$$S = \frac{2(L+1)}{L[1 \times 3 \times 5 \dots (2L+1)]^2} \left(\frac{3}{L+3} \right)^2 \quad \text{Equação 11}$$

Para transições de multipolos magnéticos de ordem 2^L , a probabilidade de decaimento é dada por (extraída de KAPLAN, 1963):

$$\lambda_{ML} = 2\pi\nu \frac{e^2}{\eta c} (10S) \left(\frac{\eta}{McR} \right)^2 \left(\frac{R}{\Delta} \right)^{2L} \quad \text{Equação 12}$$

onde M é a massa do nucleon.

De acordo com as equações (Equação 8 e Equação 10), a emissão de radiação de multipolo elétrico é mais provável que a emissão de radiação de multipolo magnético como segue :

$$\frac{\lambda_{EL}}{\lambda_{ML}} = \frac{1}{10} \left(\frac{R}{\eta/Mc} \right)^2 = 4,4A^{2/3} \quad \text{Equação 13}$$

onde foi usado que $\eta/Mc = 0,211 \times 10^{-13}$ cm e $R = 1,4A^{1/3} \times 10^{-13}$ cm.

A Tabela 1 mostra valores teóricos aproximados da meia vida para o decaimento γ para vários valores de momento angular L. Nesta tabela pode-se observar que para raios γ com pequeno momento angular (L=1 ou 2), a probabilidade de decaimento é grande e, portanto, a meia vida é muito pequena. Para raios γ com momento angular maior que 3, a probabilidade de decaimento torna-se pequena e conseqüentemente a meia vida torna-se grande.

Tabela 1 - Valores teóricos aproximados da vida média para o decaimento gama.

| Tipo de Radiação | Mudança no momento angular L (em unidade de η) | Vida média (s) | | |
|------------------|--|------------------------|---------------------|---------------------|
| | | Energia dos Raios Gama | | |
| | | 1,00 MeV | 0,20 MeV | 0,05 MeV |
| E1 | 1 | 3×10^{-16} | 3×10^{-14} | 2×10^{-12} |
| M1 | 1 | 3×10^{-14} | 3×10^{-12} | 2×10^{-10} |
| E2 | 2 | 7×10^{-12} | 3×10^{-8} | 3×10^{-5} |
| M2 | 2 | 8×10^{-10} | 3×10^{-6} | 4×10^{-3} |
| E3 | 3 | 6×10^{-7} | 5×10^{-2} | 8×10^2 |
| M3 | 3 | 7×10^{-5} | 6 | 9×10^4 |
| E4 | 4 | 6×10^{-2} | 1×10^5 | 3×10^{10} |
| M4 | 4 | 7 | 1×10^7 | 3×10^{12} |
| E5 | 5 | 8×10^4 | 4×10^{12} | 2×10^{19} |
| M5 | 5 | 9×10^6 | 4×10^{14} | 2×10^{21} |

Fonte: KAPLAN,1963.

2.2 RADIOATIVIDADE NATURAL

Após ser estabelecida a natureza física e química de todos os elementos radioativos conhecidos existentes na natureza, verificou-se que cada radionuclídeo é um membro de uma das quatro séries ou cadeias radioativas, com exceção de poucos radioisótopos de origem cosmogênica. Na Tabela 2 estão relacionadas as quatro séries radioativas, seus nuclídeos iniciais, finais e seu número de massa. A série do Netúnio não pode mais ser observada na natureza, devido a este elemento ter meia vida menor que a idade da Terra, logo esta pode ser verificada apenas artificialmente.

Tabela 2 - Produtos iniciais e finais das séries radioativas.

| Nome da série | Número de massa | Inicial | Período | Final |
|----------------------|------------------------|-------------------|--------------------------|-------------------|
| Tório | 4n | ²³² Th | 1,4 x 10 ¹⁰ a | ²⁰⁸ Pb |
| Netúnio | 4n+1 | ²³⁷ Np | 2,2 x 10 ⁶ a | ²⁰⁹ Bi |
| Urânio | 4n+2 | ²³⁸ U | 4,5 x 10 ⁹ a | ²⁰⁶ Pb |
| Actínio | 4n+3 | ²³⁵ U | 7,2 x 10 ⁸ a | ²⁰⁷ Pb |

Fonte: BURCHAM, 1974.

Destas séries, a do ²³⁵U é a menos freqüentemente detectada devido à pequena porcentagem do isótopo na natureza (em uma amostra de urânio natural, 99,27 % é constituída pelo ²³⁸U, e apenas 0,72 % pelo ²³⁵U), (EJENISMAN et al., 1994). O decaimento dos núcleos destas séries ocorre preferencialmente por emissão de partículas alfa e ou beta.

Existem ainda alguns elementos radioativos naturais que não estão incluídos nas séries radioativas. Estes elementos têm origem cósmica e serão tratados mais detalhadamente no próximo item. Alguns destes elementos estão na Tabela 3.

Tabela 3 - Materiais radioativos naturais não incluídos nas séries radioativas.

| Isótopo Radioativo | Período (anos) | Radiação | Energia da Partícula observada (MeV) |
|---------------------------|------------------------|-----------------------|---|
| ⁴⁰ K | 1,3 x 10 ⁹ | β ⁻ , (CE) | 1,32 |
| ⁵⁰ V | 5 x 10 ¹⁵ | β ⁻ , (CE) | 1,19 ; 2,39 |
| ⁸⁷ Rb | 5 x 10 ¹⁵ | β ⁻ | 0,273 |
| ¹¹⁵ In | 6 x 10 ¹⁴ | β ⁻ | 0,6 |
| ¹³⁸ La | 1 x 10 ¹¹ | β ⁻ , (CE) | 0,21 |
| ¹⁴⁴ Nd | 3 x 10 ¹⁵ | α | 1,8 |
| ¹⁴⁷ Sm | 1,3 x 10 ¹¹ | α | 2,2 |
| ¹⁷⁶ Lu | 4,5 x 10 ¹⁰ | β ⁻ , (CE) | 0,43 |
| ¹⁸⁷ Re | 4 x 10 ¹² | β ⁻ | 0,043 |

Fonte: BURCHAM, 1974.

2.2.1 Radiação Cósmica e seus Produtos de Interação

Chama-se de radiação cósmica o fluxo primário de partículas de alta energia que incidem continuamente sobre a Terra, procedentes do espaço, e também as radiações secundárias, que se originam da interação das partículas primárias na atmosfera. Grande parte dos radionuclídeos cosmogênicos são produzidos da espalação de átomos na atmosfera pelo bombardeamento de raios cósmicos. A reação de espalação são interações de alta energia, tipicamente com um limiar em torno de 50 MeV, embora para algumas reações o limiar seja em torno de centenas de megaeletronvolts. Um dos radionuclídeos produzidos por essa interação é o Berílio-7. Neste caso, o radionuclídeo tem uma meia vida bastante pequena, de 53,22 dias, em comparação com a do ^{137}Cs . Além das reações com a atmosfera, existe a possibilidade da produção de vários radionuclídeos diferentes pelas reações de raios cósmicos com a Terra e pela fissão induzida pelos raios cósmicos.

Os raios cósmicos que atingem a atmosfera da Terra são constituídos de prótons (85 %), partículas alfa (14 %) e núcleos de número atômico entre 3 e 26 (1 %). Essas partículas são extremamente energéticas, possuindo uma energia média de 10 GeV e na sua interação com os núcleos atômicos dos gases da atmosfera produzem outras partículas. Dessa forma, ao nível do mar, cerca de 75 % da radiação cósmica é constituída de múons que resultam do decaimento dos mésons pi. O restante é constituído essencialmente por elétrons e fótons. Como o campo magnético desvia partículas carregadas, a intensidade da radiação cósmica é mínima na região do equador e máxima nos pólos, devido ao campo magnético terrestre. A intensidade da radiação cósmica a 2000 e 3000 metros de altitude é, respectivamente, cerca de duas a três vezes maior que aquela ao nível do mar (OKUNO, 1998).

O estudo dos raios cósmicos é importante, pois eles têm uma contribuição considerável no espectro de fundo das medidas de radioatividade natural. Na Tabela 4 apresentam-se as linhas observadas em um espectro de fundo medido durante 24 dias, dando destaque para a origem das linhas e a taxa de contagem, utilizando um detector de GeHP. Pode-se ver que 14 das 22 linhas são originadas pela radiação cósmica.

Tabela 4 - Raios X e raios gama encontrados num espectro de fundo registrado por 24 dias, com suas respectivas energias, origem e taxa de contagem.

| Energia (keV) | Radionuclídeo | Origem | Taxa de Contagem (s ⁻¹) |
|---------------|---------------------------------------|------------------|-------------------------------------|
| 53,3 | ⁷³ Ge ^m | Cósmica | 0,00058 (2)* |
| 66,8 | ⁷³ Ge ^m | Cósmica | 0,00078 (2) |
| 72,8/75,0 | PbK _{α2} / PbK _{α1} | Cósmica | 0,00350 (4) |
| 85/87 | PbK _{β1} / PbK _{β2} | Cósmica | 0,00176 (3) |
| 138,8 | ⁷⁵ Ge ^m | Cósmica | 0,00055 (2) |
| 159,7 | ⁷⁷ Ge ^m | Cósmica | 0,00016 (1) |
| 198,8 | ⁷⁵ Ge | Cósmica | 0,00047 (2) |
| 277,4 | ²⁰⁸ Tl | Cadeia do Tório | 0,00021 (1) |
| 295,2 | ²¹⁴ Pb | Cadeia do Urânio | 0,00026 (1) |
| 351,9 | ²¹⁴ Pb | Cadeia do Urânio | 0,00020 (1) |
| 511,0 | Aniquilação | Cósmica | 0,01075 (7) |
| 569,6 | ²⁰⁷ Pb | Cósmica | 0,00025 (1) |
| 596 | ⁷⁴ Ge(n,n') | Cósmica | 0,00180 (3) |
| 609,3 | ²¹⁴ Bi | Cadeia do Urânio | 0,00025 (1) |
| 661,7 | ¹³⁷ Cs | Contaminação | 0,00009 (1) |
| 669,9 | ⁶³ Cu | Cósmica | 0,00014 (1) |
| 693 | ⁷² Ge(n,n') | Cósmica | 0,00240 (3) |
| 803,3 | ²⁰⁶ Pb | Cósmica | 0,00032 (1) |
| 962,0 | ⁶³ Cu | Cósmica | 0,00021 (1) |
| 2614,7 | ²⁰⁸ Tl | Cadeia do Tório | 0,00008 (1) |
| 50 - 3000 | | Espectro Total | 0,510 (1) |

Fonte: MOUCHEL & WORDEL, 1992

* Os números entre parênteses fornecem a incerteza estatística do último dígito mostrado.

2.3 RADIOATIVIDADE ARTIFICIAL

A descoberta de Curie e Joliot, de que os produtos de algumas transformações nucleares induzidas são radioativos, iniciou uma nova etapa na física nuclear. Em seus estudos descobriram que o bombardeio de partículas α sobre núcleos de elementos leves pode originar elementos radioativos, daí o nome radioatividade artificial. Descobriu-se ainda que reações nucleares induzidas por prótons, dêuterons, nêutrons e fótons também podem resultar em produtos radioativos.

Os radionuclídeos artificiais podem ser caracterizados pela meia vida e pela radiação que emitem, análogos aos radionuclídeos naturais. A Figura 6 mostra um gráfico dos radionuclídeos artificiais e naturais conhecidos.

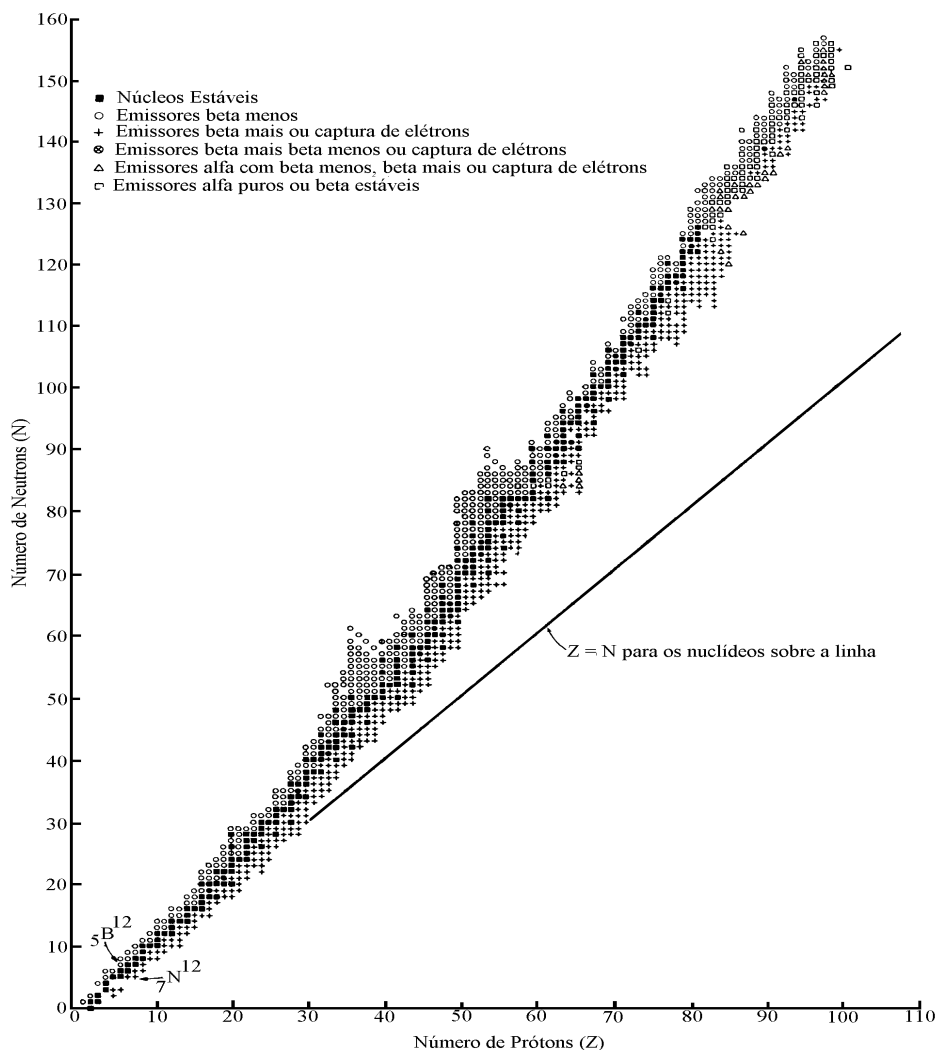


Figura 6 - Radionuclídeos naturais e artificiais conhecidos (extraída de KAPLAN, 1963).

2.3.1 Fissão Nuclear

A fissão nuclear induzida é um processo no qual o núcleo composto, resultante da captura de uma partícula incidente, divide-se em dois fragmentos (FERMI et al., 1934). Fermi sabia que um núcleo com excesso de nêutrons sofre decaimento β^- , com um nêutron transformando-se em um próton. Assim, Fermi imaginou que se o urânio absorvesse nêutrons, este teria excesso de nêutrons no núcleo, ocorrendo então o decaimento β^- e formando um núcleo com mais prótons, obtendo-se assim um novo elemento com número atômico maior que do urânio e sem existência natural. No entanto, Hahn, Strassman e Meitner tentando separar estes elementos quimicamente, notaram que era produzido o bário, e então, Meitner interpretou esse fenômeno como sendo a fissão nuclear (OSADA, 1972).

O processo de fissão pode ser descrito usando o modelo da gota líquida para se fazer algumas predições em torno da existência da fissão nuclear espontânea e sobre a habilidade de núcleos pesados sofrerem fissão pela absorção de nêutrons lentos ou rápidos. Deste modo, a forma esférica da gota (considerando o núcleo como uma gota líquida) depende do balanço entre as forças de tensão superficial e das forças coulombianas repulsivas. Se a energia de excitação, resultante da captura de um nêutron lento, é adicionada à gota, ocorrerão oscilações que tenderão a distorcer a forma esférica da gota para uma forma elipsoidal. Se esta energia de excitação é suficientemente grande, a gota pode atingir a forma de um halter e então, as forças de repulsão coulombiana empurrarão as duas extremidades do halter até que ocorra a divisão em duas gotas de forma esférica. A Figura 7 mostra os passos no processo de fissão com o modelo de gota líquida para o núcleo. Se a energia de excitação não é grande o suficiente, a gota elipsoidal tende a retornar a sua forma esférica, com a energia de excitação sendo liberada em forma de radiação gama.

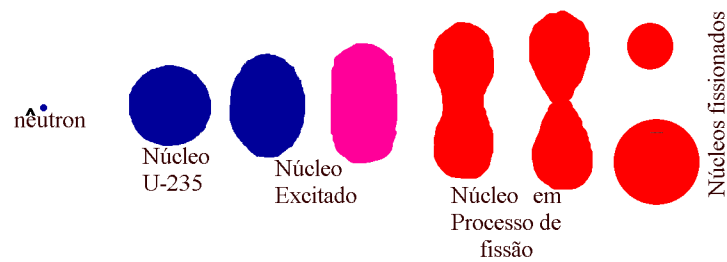


Figura 7 - Seqüência de passos que conduzem à fissão nuclear, de acordo com o modelo da gota líquida (extraída de KAPLAN, 1963).

O núcleo do urânio-235 (^{235}U) foi inicialmente o mais estudado devido às pesquisas de Fermi terem como base este nuclídeo. Quando um núcleo de urânio sofre fissão, um grande número de nuclídeos de carga e massa diferentes são formados.

Os núcleos produtos da fissão do ^{235}U , tem a razão nêutron/próton maior do que os valores compatíveis para os nuclídeos estáveis, de tal modo que estes núcleos aproximam-se da estabilidade pelo decaimento β^- ou, se existe energia de excitação suficiente, pela “evaporação” de um ou mais nêutrons do núcleo composto e é por isto que existe a probabilidade da reação em cadeia, quando estes nêutrons são usados para realizar novas fissões. A Figura 8 mostra o esquema de fissão nuclear do ^{235}U .



Figura 8 – Esquema de fissão nuclear do ^{235}U , criando o ^{100}Sr e o ^{134}Xe (adaptado de <http://www.lbl.gov/abc/wallchart>).

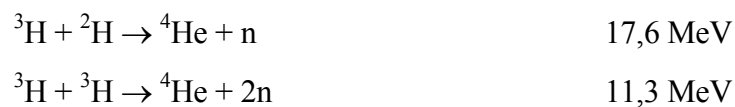
2.3.2 Fusão Nuclear

No processo de fissão nuclear os elementos pesados (urânio e plutônio) podem liberar uma grande quantidade de energia. Entretanto, os elementos leves podem também liberar grandes quantidades de energia num processo conhecido como fusão nuclear, representado na Figura 9. Neste processo, elementos leves sofrem uma combinação nuclear formando um núcleo mais pesado. Este processo é de grande importância devido ser a fonte de energia nas estrelas.



Figura 9 – Esquema de fusão nuclear do ^2H e ^3H (adaptado de <http://www.lbl.gov/abc/wallchart>).

O processo de fusão foi usado na produção de bombas de hidrogênio, as quais usam bombas de fissão de plutônio para promoverem as condições de pressão e temperatura adequadas para produção das reações de fusão dos núcleos de ^2H e ^3H . Essas reações de fusão são denominadas de reações termonucleares, dadas por:



as quais produzem mais energia por massa de material do que as reações de fissão, com os nêutrons emitidos tendo energia suficiente para provocar a fissão de núcleos não físséis como o ^{235}U , que constituem na terceira etapa de liberação de energia do artefato nuclear.

2.3.3 “Fallout” Radioativo

Os testes superficiais das bombas nucleares ou acidentes com reatores nucleares ocasionaram a introdução de vários elementos radioativos artificiais, encontrados atualmente em todo o globo terrestre devido ao “fallout”. A Tabela 5 mostra o resumo dos principais radionuclídeos liberados pelos testes atmosféricos de armas nucleares e pelo acidente de Chernobyl, de 1952 até 1997.

Tabela 5 – Resumo dos principais radionuclídeos liberados pelos testes atmosféricos de armas nucleares e pelo acidente de Chernobyl.

| Nuclídeo | Meia vida | Testes Nucleares (x 10 ¹⁸ Bq) | Chernobyl (x 10 ¹⁸ Bq) |
|-------------------|---------------------------|---|--------------------------------------|
| ³ H | 12,32 anos | 240 | |
| ¹⁴ C | 5730 anos | 0,22 | |
| ⁵⁴ Mn | 312,5 anos | 5,2 | |
| ⁵⁵ Fe | 2,74 anos | 2 | |
| ⁸⁵ Kr | 10,7 anos | | 0,033 |
| ⁸⁹ Sr | 50,55 dias | 91,4 | 0,094 |
| ⁹⁵ Zr | 64 dias | 143 | 0,16 |
| ¹⁰³ Ru | 39,3 dias | 238 | 0,14 |
| ¹²⁵ Sb | 2,73 anos | 0,524 | |
| ¹³¹ I | 8 dias | 651 | 0,67 |
| ¹³³ Xe | 5,24 dias | | 1,7 |
| ¹³⁴ Cs | 2,07 anos | | 0,019 |
| ¹³⁷ Cs | 30 anos | 0,912 | 0,037 |
| ¹⁴⁰ Ba | 12,8 dias | 732 | 0,28 |
| ¹⁴¹ Ce | 32,5 dias | 254 | 0,13 |
| ²³⁹ Np | 2,36 dias | | 0,97 |
| ²³⁸ Pu | 87,7 anos | | 3.10 ⁻⁵ |
| ²⁴⁰ Pu | 6,56.10 ³ anos | 0,00435 | 3,7.10 ⁻⁵ |
| ²⁴¹ Pu | 14,4 anos | 0,142 | |
| ²⁴¹ Am | 432,7 anos | 0,0038* | |

Fonte: CHOPPIN et al., 1995 & DEVELL, 1988.

* Estimado do decaimento do ²⁴¹Pu no período de 1963 até 2000.

O primeiro teste de explosão nuclear ocorreu em 1945, e até 1963 cerca de 500 testes nucleares foram realizados no hemisfério norte, quando foi assinado, em agosto de 1963, o tratado de proibição parcial de testes nucleares por 108 países, restringindo os testes às explosões subterrâneas, que não provocam a liberação de fragmentos radioativos para além das fronteiras dos países. Como a França e a China não participaram desse acordo, esses países realizaram explosões nucleares após essa data, porém em um número bem menor. A Figura 10 mostra o número de testes nucleares atmosféricos realizados. Os testes nucleares atmosféricos atingiram dois picos, o primeiro entre 1954 a 1958, devido aos testes dos Estados Unidos, União Soviética e Reino Unido. O segundo maior pico, entre os anos de 1961 a 1964 foi devido basicamente às contribuições dos Estados Unidos e União Soviética.

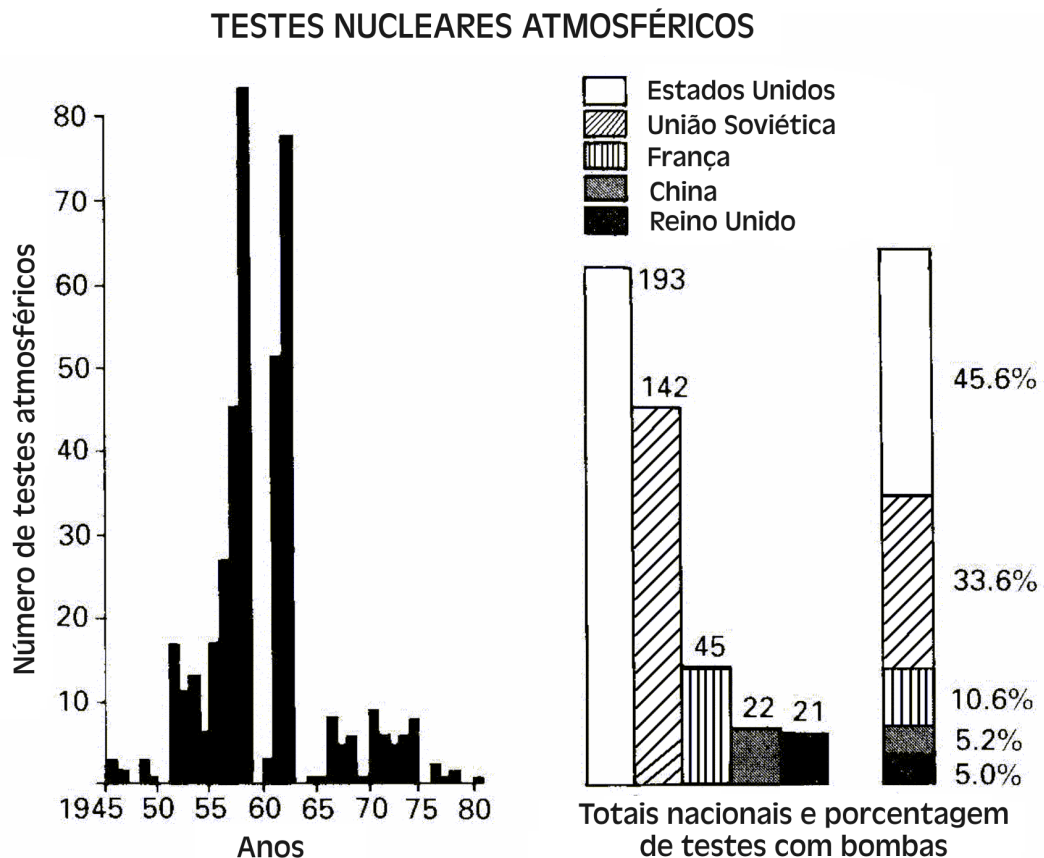


Figura 10 - Número de testes nucleares atmosféricos. Na figura à esquerda observa-se os dois picos principais e na figura da direita os países responsáveis pelos testes (adaptada de UNEP, 1991).

Quando a explosão nuclear ocorre, uma nuvem de gás e vapor, a alta temperatura, é produzida. A altura e o diâmetro da nuvem depende da potência da bomba

nuclear. A explosão de armas nucleares de potência menor que um megaton, na superfície terrestre, produz uma nuvem que atinge apenas a troposfera, sendo que os fragmentos maiores caem à terra por efeito gravitacional, provocando o “fallout” local poucas horas depois da explosão, numa extensão de alguns quilômetros ao redor do ponto da explosão. Os fragmentos menores que alcançam a troposfera são transportados ao redor do globo terrestre pelos ventos, que têm sentido predominante de oeste para leste, sendo depositados na superfície terrestre pela precipitação atmosférica numa faixa de 20° a 30° a partir da latitude onde ocorre a explosão, num período de 4 a 7 semanas (GLASSTONG, 1964).

A explosão de armas nucleares de potência maior que um megaton, na superfície terrestre, produz uma nuvem que atinge a estratosfera, onde os ventos têm sentido de leste a oeste. Os fragmentos menores ficam bastante tempo na estratosfera devido ao movimento lento e pouca umidade, impedindo a precipitação destes fragmentos. Estes fragmentos são transferidos para a troposfera terrestre no início da primavera, quando ocorre o surgimento da descontinuidade na tropopausa, devido à sua elevação desta pelo aumento da temperatura do ar. Devido a essa elevação da tropopausa, o material radioativo é depositado no solo pela incorporação de ar da estratosfera inferior para a troposfera e a formação de nuvens nesta região, seguida da forte precipitação associada à primavera. Este é o mecanismo responsável pelo maior “fallout” neste período. No equador a tropopausa não sofre descontinuidade e é muito mais elevada que na zona temperada. Devido à ocorrência de temperaturas altas e relativamente uniformes, a concentração dos produtos de fissão na região do equador é muito inferior às encontradas a médias latitudes (GLASSTONG, 1964).

O tempo entre a injeção dos produtos de fissão na estratosfera e o “fallout” decorrente varia de 5 meses até 5 anos ou mais, dependendo da latitude, da altitude e da estação do ano onde ocorreu a explosão. Esse tempo é mais curto quando ocorre longe do equador e entre o final do outono e início do inverno, e mais longo quando ocorre próximo do equador e no meio da primavera.

A Figura 11 mostra um gráfico da deposição de ^{137}Cs , incluindo o pico referente ao acidente de Chernobyl, que contribui para um “fallout” local, não atingindo todo o globo terrestre.

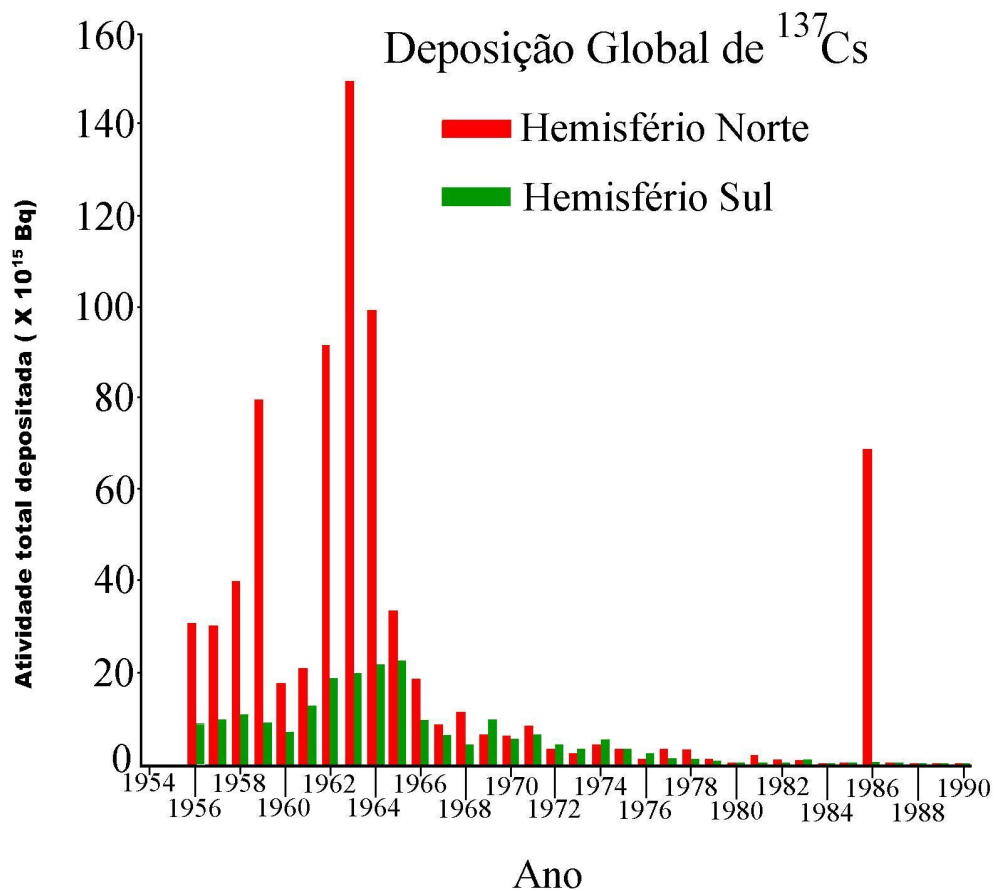


Figura 11 - Deposição global de ^{137}Cs devido ao “fallout” radioativo nos hemisférios norte e sul, durante o período de 1954 a 1990 (Adaptada de WALLING & QUINE, 1990).

O “fallout” total de ^{137}Cs no hemisfério norte é maior que no hemisfério sul, porque uma maior quantidade de testes atmosféricos nucleares foram feitos no hemisfério norte, como mostra a Figura 11. Eventos locais como o acidente de Chernobyl tem impacto significativo na região onde ocorreu o acidente, ou seja, na região do “fallout” local, mas têm impacto limitado nas taxas de “fallout” global.

2.4 ESPECTROMETRIA GAMA DA RADIAÇÃO DE FUNDO

A seguir, apresenta-se o espectro identificado de uma medida de radiação de fundo (EJENISMAN et al., 1994). As medidas foram realizadas em laboratório, utilizando um

detector GeHP, sem blindagem, com volume de 155 cm^3 , resolução de $2,0 \text{ keV}$ e eficiência relativa de 30% para a linha de 1332 keV do ^{60}Co . Na Figura 12, tem-se uma visão global do espectro. Nas Figuras 13 a 17 tem-se visões parciais do espectro, mostrando as principais linhas e suas respectivas energias. Nestas figuras é possível observar as transições gama observadas acima de 100 keV . As abreviações, SE e DE, significam escape simples e escape duplo, respectivamente. Nota-se claramente a presença das principais linhas das séries radioativas naturais. Da série do urânio foram medidas as linhas do ^{214}Bi e ^{214}Pb ; da série do tório as linhas do ^{228}Ac , ^{224}Ra , ^{212}Pb e ^{208}Tl ; e da série do actínio a presença do ^{235}U . Além das séries radioativas naturais, nota-se também a presença do ^{40}K , de origem natural.

Os radionuclídeos ^{134}Cs e ^{137}Cs são produtos de fissão e sua presença deve-se ao fato de, geralmente, estarem presentes nas fontes radioativas de calibração.

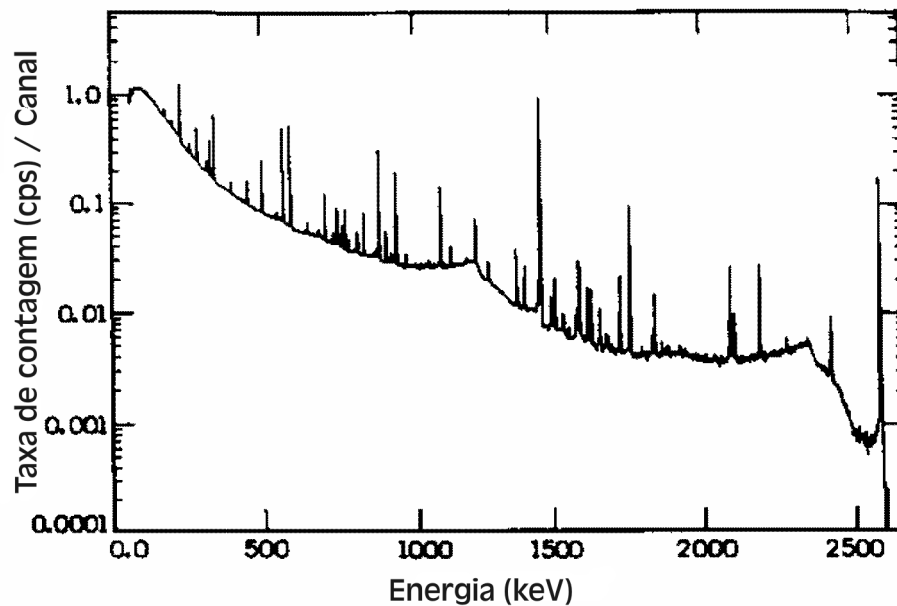


Figura 12 - Visão global do espectro de fundo (adaptado de EJNISSMAN et al., 1994).

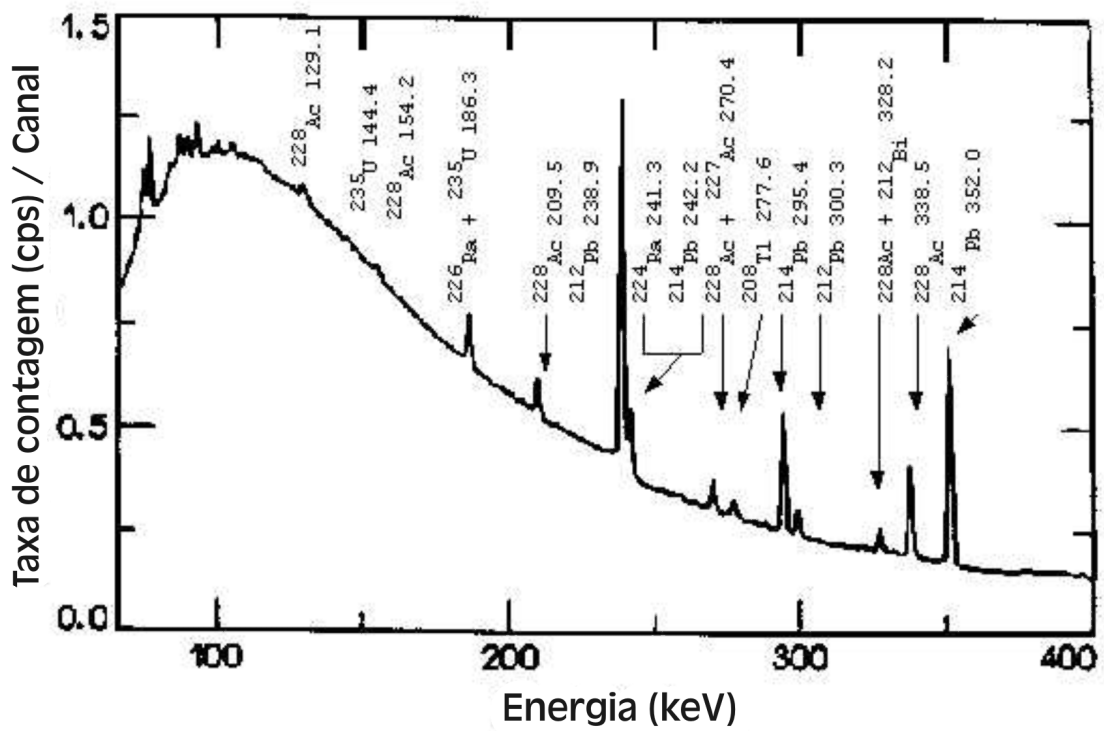


Figura 13 - Visão parcial do espectro de fundo (adaptado de EJNISMAN et al., 1994).

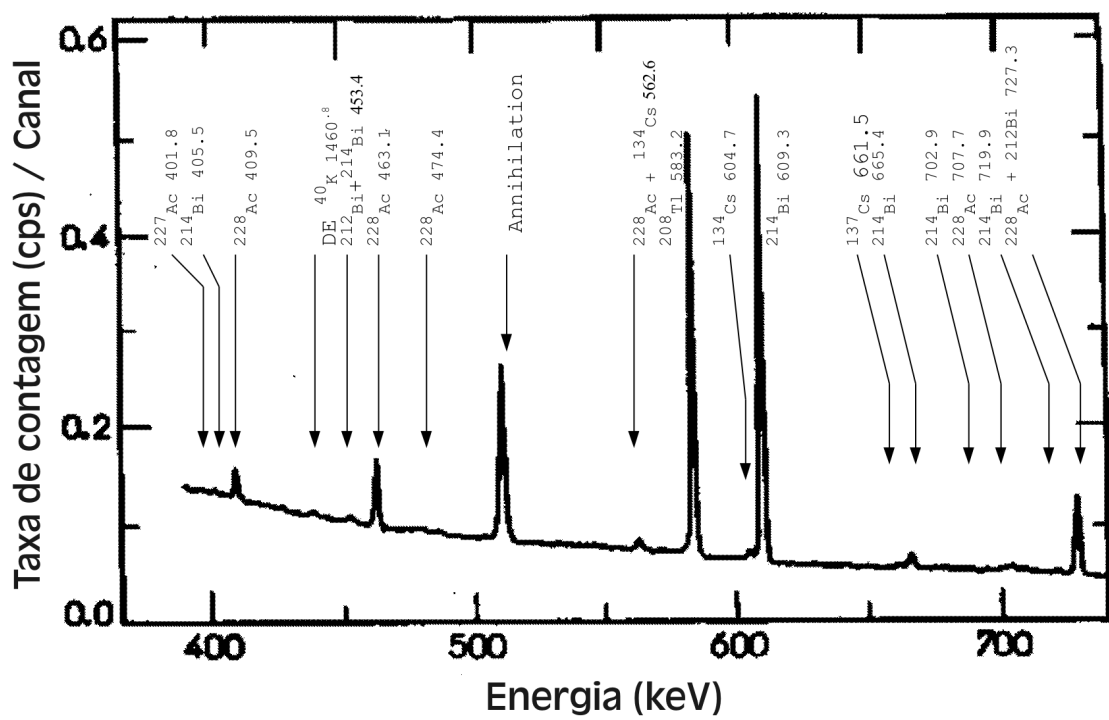


Figura 14 - Visão parcial do espectro de fundo (adaptado de EJNISMAN et al., 1994).

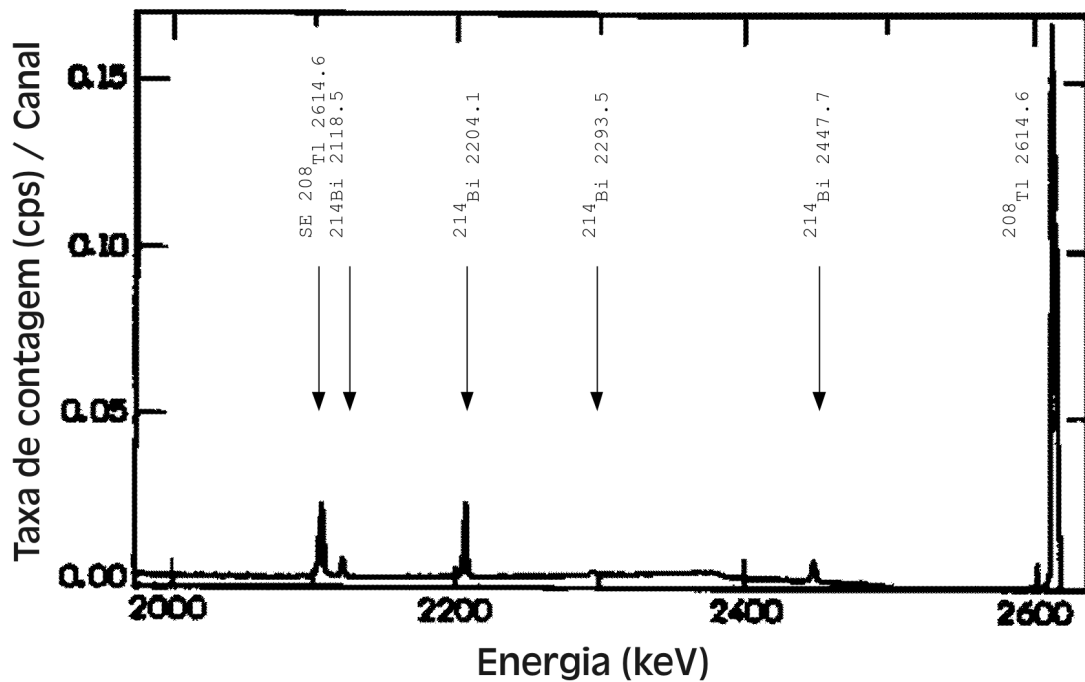


Figura 17 - Visão parcial do espectro de fundo (adaptado de EJNISSMAN et al., 1994).

2.5 RADIONUCLÍDEO CÉSIO-137 (^{137}Cs)

2.5.1 Processo de Decaimento

O ^{137}Cs é um radionuclídeo artificial produzido através do processo de fissão do ^{235}U , ^{238}U e ^{239}Pu . O ^{137}Cs tem uma meia vida de 30,07 anos e constante de decaimento $\lambda = 0,02305112 \text{ anos}^{-1}$ (IAEA, 2001). Decai por emissão β^- para o núcleo $^{137\text{m}}\text{Ba}$, que decai pela transição do estado $(11/2)^-$ para o estado $(3/2)^+$ por emissão γ para o ^{137}Ba , com uma meia vida de 2,55 minutos. Os raios gama emitidos do estado $(11/2)^-$ possui energia de 661,65 keV, que caracteriza o radionuclídeo ^{137}Cs no estudo por espectrometria gama. O esquema de níveis do processo de decaimento do radionuclídeo ^{137}Cs está representado na Figura 18. Além da energia de 661,65 keV, o $^{137\text{m}}\text{Ba}$ emite raios X de 31,81 keV, 32,19 keV e 36,4 keV, que também caracteriza o radionuclídeo ^{137}Cs .

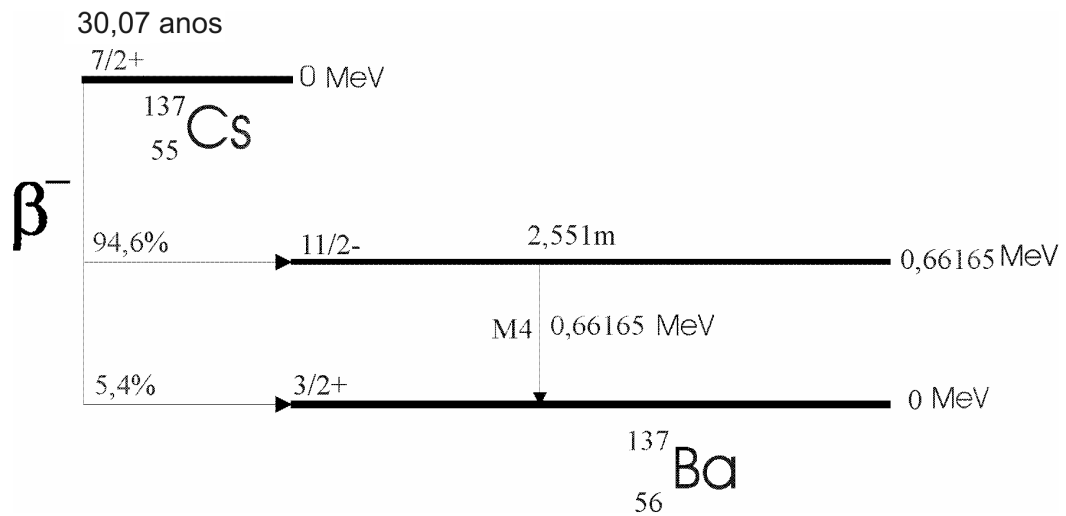


Figura 18 - Esquema de níveis do processo de decaimento do ^{137}Cs (adaptado de BROWNE et al., 1978).

2.5.2 Características Químicas do Césio-137

O césio é um metal alcalino de número atômico 55 e tem apenas um nuclídeo natural, o ^{133}Cs , cuja abundância na superfície da terra é muito pequena. As propriedades químicas e fisiológicas do césio são semelhantes às do potássio, sendo encontrado nos tecidos vegetais e animais. O césio é um elemento de alta eletropositividade e o mais reativo de todos os metais, tendo imediata oxidação quando exposto ao ar; tem bases fortes e seus sais são solúveis em água (MAHAN, 1970).

2.5.3 Comportamento do Radionuclídeo Césio-137 no Solo

A introdução do radionuclídeo ^{137}Cs no meio ambiente, através do “fallout” dos testes de armas nucleares, estimulou o estudo do seu comportamento no solo. Vários estudos têm mostrado que a capacidade de adsorção de césio pelos solos depende de algumas características do solo, tais como: nível de pH, conteúdo de argila e matéria orgânica, a capacidade de troca de cátions e o conteúdo de potássio (SHEMBER & ERIKSOON, 1993).

Além da adsorção de césio depender dessas características do solo, foi observado que pequenas quantidades de césio mostravam diferenças na adsorção quando comparadas com grandes quantidades de césio (SCHULZ et al., 1960). O ^{137}Cs proveniente do “fallout” ocorre em pequenas quantidades quando comparado com a área de solo onde é espalhado, de modo que os solos são capazes de retê-lo, mesmo quando repetidos ataques químicos com diferentes agentes são realizados, levando a conclusão que o césio é adsorvido em quantidades ditadas pela capacidade de troca de cátions de cada solo, dependendo do número de pontos seletivos encontrados nos minerais componentes do solo (HIRD et al., 1995 e 1996). Esses pontos seletivos são devidos aos cátions monovalentes, como o Cs^+ , serem fortemente ligados às argilas, pois os cátions monovalentes tem baixa energia de hidratação e produzem a desidratação e o colapso da estrutura cristalina da argila. Assim, ao contato com o solo, o césio é rapidamente adsorvido às partículas mais finas e à matéria orgânica do solo, tendo seu movimento bastante limitado por processos químicos (RITCHIE et al., 1974).

O ^{137}Cs foi globalmente distribuído dentro da estratosfera e depositado pelo “fallout” (WALLING & QUINE, 1990). O maior período de deposição global de ^{137}Cs pelo “fallout” ocorreu nos períodos de 1958 e 1963/1964, tendo havido um período menor de deposição em 1971 e 1974, causado por testes nucleares de superfície por países que não concordaram com o tratado de proibição de testes nucleares de 1963.

A adsorção de ^{137}Cs no solo é rápida, mostrando uma distribuição exponencial em perfis de solo não perturbado e uma distribuição uniforme através da camada de cultivo em solos mecanizados (OWENS & WALLING, 1996; RITCHIE & MCHENRY, 1990).

O aumento das concentrações de íons que competem com o Cs^+ , tais como Na^+ , K^+ e H^+ , decresce muito pouco a adsorção de ^{137}Cs e o uso de diferentes ácidos e bases removem menos do que 1 % de ^{137}Cs adsorvido em amostras de solo e sedimento, confirmando o fato que o ^{137}Cs é fortemente adsorvido pelas partículas de solo e tem sua mobilidade limitada pelos processos químicos (BROUWER et al., 1994) e (BLAGOEVA & ZIKOSKY, 1995).

A deposição seca ocorre principalmente nas proximidades do teste nuclear (“fallout” local) e a deposição de ^{137}Cs da atmosfera para o solo varia linearmente com as chuvas dentro de uma zona latitudinal. O transporte de ^{137}Cs através de uma região envolve a transferência entre três componentes primários: a vegetação, o solo e a água. O ^{137}Cs depositado na vegetação é transferido para o solo pela lavagem ou quando a vegetação morre e se decompõe. A entrada de ^{137}Cs do solo ou da água para a vegetação é baixa e é menos importante que a deposição direta sobre a folhagem pelo “fallout”, sendo que a remoção de ^{137}Cs da região pela colheita é muito pequena (BROWN et al., 1981).

O ^{137}Cs no solo é devido à deposição direta da atmosfera, da vegetação e da redeposição das partículas de solo erodido. Como o ^{137}Cs é fortemente adsorvido nas posições de troca de cátions, o seu movimento no solo devido a processos químicos e biológicos é limitado. Os processos físicos, tais como erosão e cultivo, são os causadores da redistribuição de ^{137}Cs em solos e do movimento de ^{137}Cs dos solos para a água.

O ^{137}Cs em sedimentos é devido à deposição direta na superfície da água e à entrada de ^{137}Cs adsorvido às partículas de solos erodidos. O ^{137}Cs depositado sobre a superfície da água é adsorvido pelos materiais em suspensão na água e tornam-se parte do processo de sedimentação. Embora os processos químicos e biológicos possam mover quantidades limitadas de ^{137}Cs entre a vegetação, a água e o solo, os processos físicos são os predominantes na transferência de ^{137}Cs na natureza (RITCHIE et al., 1974) e (RITCHIE & MCHENRY, 1990). A Figura 19 mostra um diagrama do ciclo do ^{137}Cs na natureza.

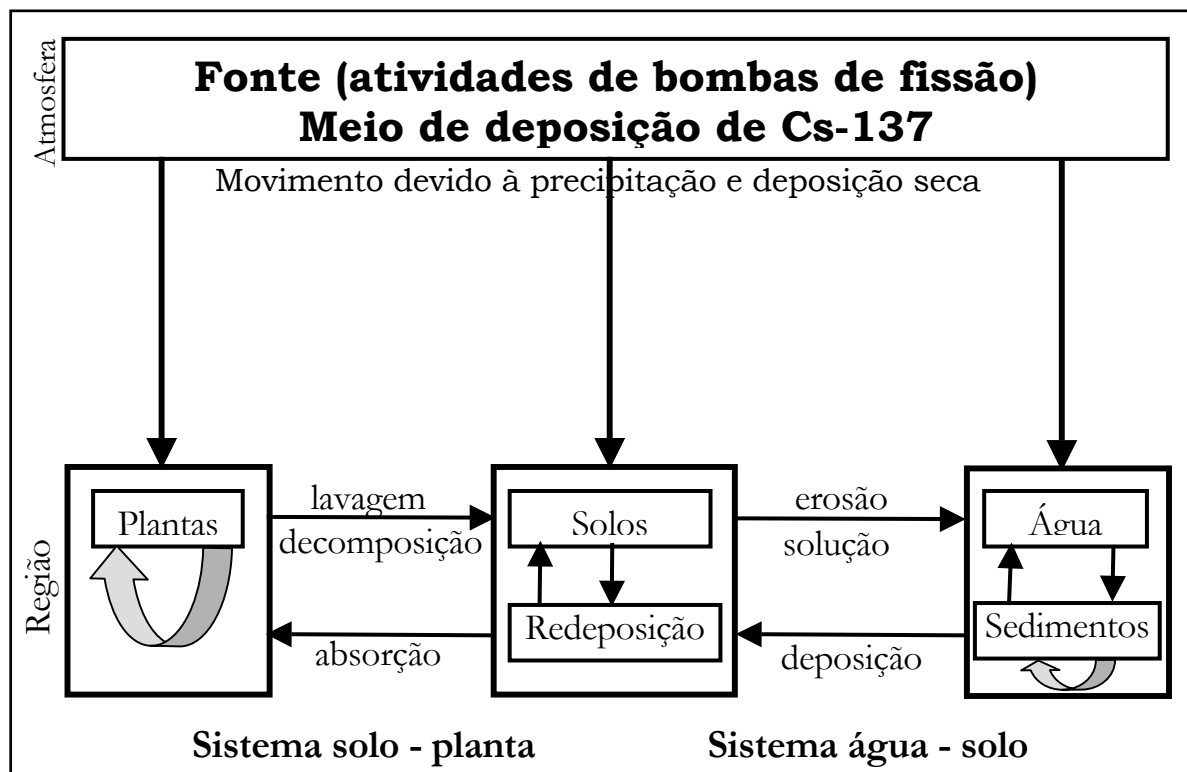


Figura 19 - Diagrama do ciclo do ^{137}Cs na natureza (adaptado de RITCHIE & MCHENRY, 1990).

2.6 RADIONUCLÍDEO BERÍLIO-7 (${}^7\text{Be}$)

O ${}^7\text{Be}$ é um radionuclídeo natural de origem cosmogênica, formado pelo processo de espalação de núcleos leves da atmosfera, tais como: carbono, nitrogênio e oxigênio. No processo de espalação, o núcleo alvo absorve prótons ou nêutrons de alta energia dos raios cósmicos primários. A produção de ${}^7\text{Be}$ é representada pelas seguintes reações (PAPASTEFANOU, C. & IOANNIDOU, 1995 e 1996):



Dois terços do ${}^7\text{Be}$ é formado na estratosfera e somente um terço na troposfera. O tempo de residência deste radionuclídeo na estratosfera é da ordem de alguns poucos anos e na troposfera, de uns poucos dias a semanas. Como a meia vida do ${}^7\text{Be}$ é curta quando comparada ao seu tempo de residência na estratosfera e grande quando comparada ao tempo de residência na troposfera, a maior parte do ${}^7\text{Be}$ depositado é proveniente da troposfera. Uma vez formado, o ${}^7\text{Be}$ é rapidamente associado às partículas de aerossóis da ordem de submicron na forma química de BeO ou $\text{Be}(\text{OH})_2$ (HUG, 1999). Estes aerossóis entram nos ambientes marinhos, terrestres e vegetais através da deposição úmida ou seca. Após a deposição, o ${}^7\text{Be}$ na forma iônica (${}^7\text{Be}^{+2}$) tende a associar-se rápido e fortemente aos materiais particulados, solos superficiais e vegetação do ambiente em questão. O ${}^7\text{Be}$ concentra-se tipicamente nos primeiros 15 mm da camada superior do solo. Depois de adsorvido, o ${}^7\text{Be}$ sofre migração preferencialmente pelos processos físicos do que pelos processos químicos (BLAKE et al., 2002).

O ${}^7\text{Be}$ é um núcleo radioativo leve que decai pela captura de um elétron orbital da camada mais interna da eletrosfera, geralmente da camada K, mas pode ocorrer com as camadas mais externas com menor probabilidade, com meia vida de 53,22 dias, e que pode ser detectado por espectrometria gama através dos raios gama de 477,61 keV emitido pelo núcleo filho ${}^7\text{Li}$. As Figuras 20 e 21 apresentam um exemplo de captura K pelo núcleo de ${}^7\text{Be}$ e o seu decaimento radioativo, respectivamente. Este radionuclídeo tem sido reconhecido como uma ferramenta útil no estudo e descrição dos processos ambientais, tais como: transito e tempo de residência de aerossóis na troposfera, velocidade de deposição dos aerossóis, aprisionamento dos aerossóis pela vegetação acima do solo, transito e tempo de residência de sedimentos em rios, avaliação de processos erosivos superficiais, sendo que nestes últimos dois casos, a meia vida curta do ${}^7\text{Be}$ oferece um meio de identificar sedimentos recém depositados (BLAKE et al., 1999).

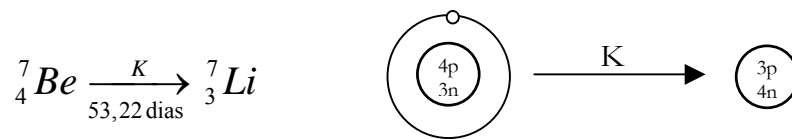


Figura 20 – Captura eletrônica da camada K pelo ${}^7\text{Be}$ (adaptada de TAUHATA & ALMEIDA, 1981).

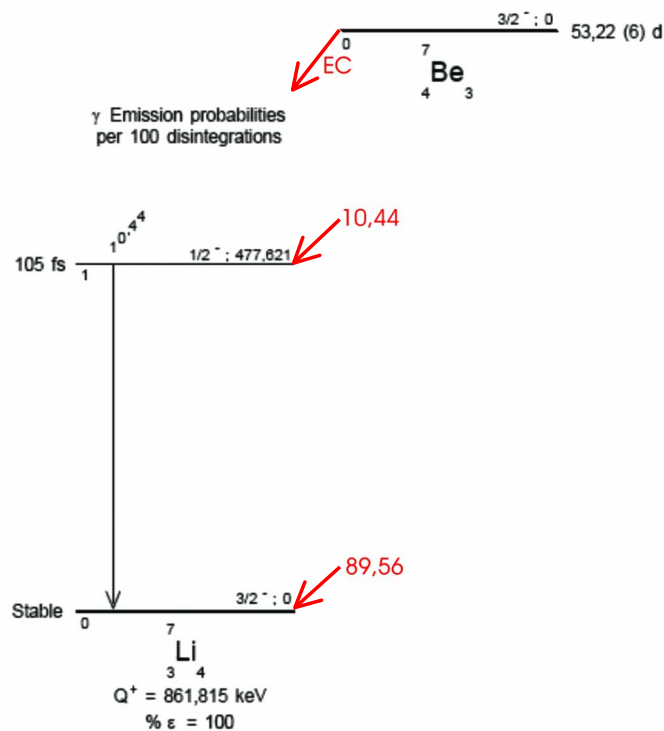


Figura 21 – Esquema do decaimento radioativo do ${}^7\text{Be}$ para o ${}^7\text{Li}$ (extraído de http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP_WG/Be-7_com.pdf).

2.7 QUANTIFICAÇÃO DA EROSIÃO DO SOLO

Os problemas advindos do uso irracional do solo têm despertado cada vez mais o interesse de estudiosos e pesquisadores do mundo inteiro. O aumento da população mundial e a crescente demanda por alimentos têm levado cientistas a buscar soluções para um uso mais eficiente do solo, equacionando uma maior produção com menores perdas de solo.

O aumento no processo de erosão, além de causar uma deterioração dos recursos naturais do solo, fazendo com que haja um aumento no uso de adubação química, provoca o assoreamento de rios, lagos e reservatórios de água, diminuindo a capacidade de armazenamento de água nos reservatórios e lagos, causando constantes inundações nos períodos de grande pluviosidade.

A erosão remove a camada superficial e nutrientes das áreas de planalto, isso faz com que haja uma degradação da camada de solo cultivável devido ao transporte de solo rico em matéria orgânica e nutrientes para as plantas. O processo de erosão é mais pronunciado em solos agrícolas nos quais o cultivo convencional é adotado sem técnicas de conservação do solo.

O preparo convencional de solo perturba algumas propriedades físicas do solo, as quais são de importância no controle da erosão. Uma propriedade do solo que é perturbada é a porosidade, que influencia no escoamento da água de chuva. Se a porosidade do solo é afetada de modo a diminuir a quantidade de macroporos no solo, haverá uma maior dificuldade no escoamento ou infiltração da água no solo, facilitando assim, a ocorrência da erosão.

Os dados de erosão mostram considerável variação de ano para ano, e assim sendo, parcelas de erosão devem ser monitoradas por muitos anos antes que médias significativas de perdas de solos possam ser calculadas. Tais estudos com parcelas têm se demonstrado inestimáveis, mas são trabalhos intensivos, difíceis e provêm valores de erosão para um único tipo de solo e uma única classe de declive (GUIMARÃES, 1988).

A técnica de estimativa de erosão pelo levantamento topográfico para determinar a espessura da camada superior é altamente dependente da suposição que um solo de referência, virgem e não erodido de similar classificação fosse distribuído uniformemente através da região. Os resultados podem somente ser aplicáveis muito próximo da posição de referência e ainda não são apropriados para extrapolação.

O ^{137}Cs é um radionuclídeo de meia vida relativamente longa (30,07 anos) injetado na atmosfera pelas explosões nucleares e devolvido à superfície do solo por precipitação. O ^{137}Cs é fortemente adsorvido às partículas de solo (SCHULZ et al., 1960) e é redistribuído na região junto com as partículas de solo pelo processo de erosão. A possibilidade de usar o radionuclídeo ^{137}Cs para estimar a erosão no solo foi primeiramente levantada por Rogowski e Tamura, em 1965 (ROGOWSKI & TAMURA, 1965).

O ^{137}Cs é em sua maior parte encontrado em associação com as argilas e a matéria orgânica, ou seja, as frações mais susceptíveis à erosão. Desta forma, a erosão é um dos processos físicos responsáveis pelo transporte dos produtos de fissão (RITCHIE & MCHENRY, 1977).

A diminuição ou aumento do conteúdo de ^{137}Cs no solo, em um ponto numa região, relativo ao conteúdo de ^{137}Cs depositado pelo “fallout” em uma posição de referência, reflete a perda ou ganho de solo pelo processo de erosão atuando neste ponto desde que o ^{137}Cs tem estado presente no ambiente. Portanto comparações entre o conteúdo de ^{137}Cs em uma determinada posição em relação à posição de referência, fornece informações qualitativas a respeito da distribuição espacial da erosão e deposição de solo. Estimativas quantitativas sobre erosão e deposição de solos dependem da existência de meios realizáveis, em converter a

relação entre o valor do inventário (conteúdo de ^{137}Cs num dado ponto) em relação ao inventário de referência, para obter uma estimativa da taxa de erosão ou deposição.

Como um meio de promover a padronização dos procedimentos de calibração, os autores WALLING & HE (1997), selecionaram seis modelos incluindo softwares compatíveis com microcomputadores, que podem ser obtidos via INTERNET, no site da IAEA através do endereço <ftp://ftp.iaea.or.at/dist/gnip/ripc_1hs>.

Este conjunto de modelos inclui o modelo proporcional, o modelo de balanço de massa simplificado ou modelo de balanço de massa 1, o modelo de balanço de massa 2, que leva em conta o tempo de entrada do ^{137}Cs pelo “fallout”, modelo de balanço de massa 3 que leva em conta o movimento de solo resultante do cultivo, modelo de distribuição de ^{137}Cs em profundidade e um modelo de difusão e migração.

Estes modelos são usados depois de uma série de procedimentos, onde primeiramente são retiradas várias amostras de solo da área de interesse, depois disso o solo é dividido em incrementos de profundidades distintos, estas frações são destorroadas, peneiradas e deixadas secar a sombra, e somente depois deste processo, que é relativamente demorado, as amostras de solo são analisadas em laboratório com o auxílio de detectores de HPGe, por um tempo de 12 horas para detectores com 65 % de eficiência (ANDRELLO, 2004).

Outro radionuclídeo usado na determinação da erosão ou deposição de solo é o ^7Be , radionuclídeo natural de origem cosmogênica, com uma meia vida de 53,22 dias, formado pelo processo de espalação de núcleos leves da atmosfera. O ^7Be agrega-se a aerossóis atmosféricos, que é então depositado no solo através da deposição seca ou úmida.

O ^7Be após ser depositado, associa-se rápido e fortemente ao material particulado, solos superficiais e vegetação, concentrando-se tipicamente nos primeiros 15 mm da camada superior do solo, apresentando uma distribuição exponencial com a profundidade dentro da camada. Por estar em constante produção e uma meia vida considerada curta, o ^7Be mostra-se um importante meio de investigar a erosão e/ou deposição para curtos intervalos de tempo, possibilitando assim, o estudo de eventos individuais, como chuvas e outros fenômenos físicos. A Figura 22 apresenta o inventário acumulado de ^7Be comparando com períodos de chuvas em uma área cultivada, referente a uma elevação próximo a Crediton, Devon, UK, durante o período de novembro de 1997 a janeiro de 1998, onde pode-se perceber claramente o aumento do inventário devido a um período maior de chuvas (BLAKE et al., 2002).

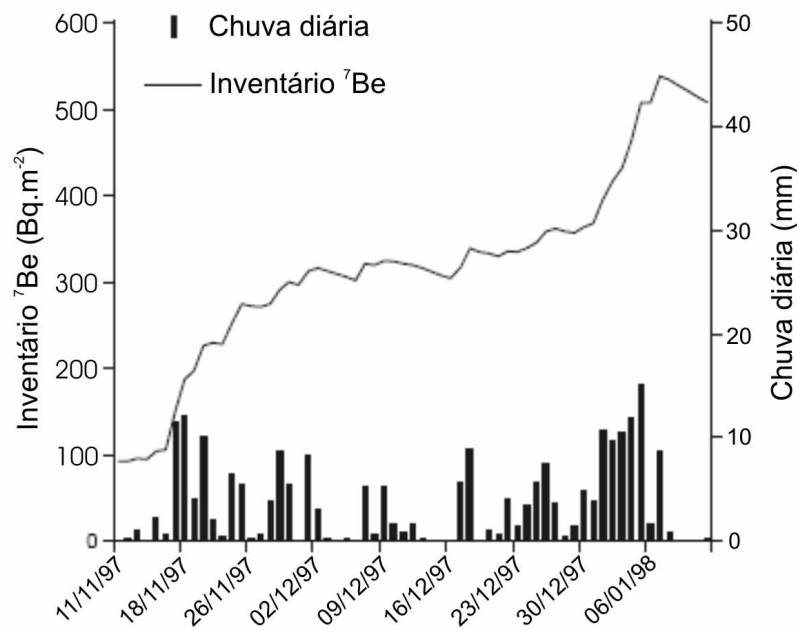


Figura 22 – Inventário acumulado de ${}^7\text{Be}$ e chuvas diárias em uma área cultivada em uma elevação próxima a Crediton, Devon, UK durante o período de novembro de 1997 a janeiro de 1998 (adaptada de BLAKE et al., 2002).

Para a quantificação do inventário de ${}^7\text{Be}$ no solo, são usados os mesmos procedimentos relatados anteriormente para o radionuclídeo ${}^{137}\text{Cs}$, onde a análise das amostras são feitas em laboratório com um detector de HPGe.

Como se pode perceber, o processo de quantificação é demorado e exige um grande número de tarefas a serem executadas. Com o intuito de deixar o método do ${}^{137}\text{Cs}$ e do ${}^7\text{Be}$ mais rápido, BECK et al., (1972) desenvolveu a espectrometria gama *in situ*, como mostra o item 4.4.

3 REVISÃO DA LITERATURA

Um dos primeiros pesquisadores a utilizar os radionuclídeos depositados pelo “fallout” em estudos de erosão foi MENZEL (1960). Ele relacionou perdas de ^{90}Sr com as de solo em parcelas de erosão. Seu trabalho tratava do transporte deste radionuclídeo por deflúvio em campos com diversos tipos de culturas. O ^{137}Cs possui características diferentes do ^{90}Sr por restringir-se à superfície do solo, por isso é um traçador de superfície, pois a erosão é um fenômeno essencialmente superficial.

O trabalho realizado por SAKAI (1977), comparou medidas realizadas no hemisfério norte, em Porto Rico no ano de 1972, e no hemisfério sul, mais precisamente no estado da Bahia. O referido trabalho encontrou, nos solos da Bahia, inventários de ^{137}Cs que variavam em torno de 22,2 a 222 Bq.m^{-2} , enquanto que no hemisfério norte, em Porto Rico, a variação foi em torno de 1369 a 7030 Bq.m^{-2} . Essa diferença de atividade encontrada nos solos do hemisfério norte e hemisfério sul, evidencia a hipótese de que os aerossóis radioativos artificiais transportando a longas distâncias, através da troposfera, somente se dá dentro de um mesmo hemisfério, ficando assim, “restrito” ao hemisfério onde ocorreram as explosões nucleares.

DU et al., (1998) fizeram um estudo da distribuição de ^{137}Cs devida ao “fallout” em diferentes perfis de solo, usando dados da literatura. Três tipos de funções de distribuição de ^{137}Cs com a profundidade foram encontrados pelo uso de métodos estatísticos de regressão: tipo exponencial, tipo pico e tipo decrescente (incluindo distribuição uniforme). Relações entre perdas de ^{137}Cs e a taxa de erosão de solo foram encontradas introduzindo as funções de regressão. A influência da distribuição de ^{137}Cs com a profundidade na estimativa de taxas de erosão foram simuladas. Os resultados mostraram que as taxas de erosão de solos muito diferentes poderiam ser deduzidas para diferentes distribuições de profundidades quando as perdas de ^{137}Cs forem as mesmas. Isso indica que os padrões de distribuição com a profundidade devem ser considerados quando a erosão de solo for estimada pelo uso do ^{137}Cs . Os resultados da simulação também sugeriram que isto é ainda mais importante quando se estiver determinando a distribuição de ^{137}Cs próximo à superfície do solo, bem como, a perda média relativa anual de ^{137}Cs usando a distribuição com a profundidade como um critério na estimativa de taxa de erosão de solo.

NIR-EL (2000) realizou medidas *in situ* para determinar a concentração de radionuclídeos em manchas com alta atividade, decorrentes de espalhamento acidental e

lançamento de rejeitos radioativos. O detector de HPGe, com eficiência de 65 % e FWHM 2,05 keV para a linha de 1,33 MeV do ^{60}Co , foi localizado a duas distâncias do solo, 1 m e 0,1 m. As medidas localizadas a 0,1m do solo apresentaram excelentes resultados na detecção da radioatividade natural de ^{40}K , ^{232}Th , ^{238}U e de radionuclídeos como o ^{137}Cs , em comparação com medidas realizadas a 1 m do solo e medidas de laboratório.

BLAKE et al., (1999) estudou o uso do radionuclídeo cosmogênico ^7Be como um traçador alternativo na investigação da erosão e deposição do solo a curto prazo, devido a sua meia vida relativamente curta (53,3 dias), determinando a taxa de perda de solo para eventos individuais como chuvas pesadas em curtos intervalos de tempo, em 6,7 ha de um campo cultivado na região de Devon, Reino Unido.

MACDONALD et al. (1999) compararam, teorica e experimentalmente, três dos melhores métodos de espectrometria gama *in situ*, o Método do Pico Vale, o Método dos Múltiplos Picos e o Método do Prato de Chumbo com o Método do Detector Submerso. Constatou-se que o Método do Detector Submerso melhorou a precisão da espectrometria *in situ* quando comparado com o melhor dos três métodos propostos anteriormente, o Método do Prato de Chumbo, apresentando menores incertezas sistemáticas e aleatórias, sem aumentar o tempo de aquisição dos espectros.

VO & RUSSO (2002) compararam com o auxílio das fontes de ^{57}Co (122 keV) e ^{137}Cs (662 keV), a resolução em energia dos detectores de CdTe com cristal de 10 x 9 x 1,5 mm³, detector de HPGe com cristal de 25 mm de diâmetro e 15 mm de altura, detector de NaI com cristal de 25 mm x 25 mm e um detector de CdZnTe com cristal de 15 x 15 x 7 mm³. Os valores do FWHM encontrados para a linha de 122 keV foram: NaI (15,1 keV), CdZnTe (7,7 keV), CdTe (1,8 keV) e Ge (0,52 keV); e para a linha de 662 keV: NaI (50,6 keV), CdZnTe (19,9 keV), CdTe (3,8 keV) e Ge (1,27 keV).

PEREZ-ANDUJAR & PIBIDA (2004) compararam o desempenho do detector de NaI (10 cm x 10 cm), CdTe (9 mm x 2 mm) e HPGe (54,9 mm x 54,2 mm). Utilizaram fontes de ^{241}Am , ^{57}Co , ^{109}Cd , ^{125}I , ^{125}Sb , ^{137}Cs , e ^{153}Gd , com atividades de 10^4 a 10^6 Bq. Utilizaram também, fontes de ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu e ^{207}Bi , apenas para o detector de HPGe, com a mesma faixa de atividade, onde calcularam a eficiência, e a resolução em energia para os três detectores. Verificaram que o detector de NaI possui eficiência da ordem de 8 a 10 vezes melhor que o detector de HPGe (para certas regiões), porém a sua resolução em energia é cerca de 30 a 50 vezes pior que o detector de HPGe. Já o detector de CdTe possui a pior eficiência dos três detectores, sendo, para certas energias, da ordem de 10^3 a 10^5 vezes menor que a do

detector de NaI. Para a resolução em energia, o detector de CdTe apresenta um FWHM de aproximadamente 8 vezes melhor que o NaI e aproximadamente 5 vezes pior que o HPGe.

DUSI et al. (2003) realizaram medidas com um detector de CdTe (10 mm x 3 mm x 3 mm) a diferentes ângulos de incidência, com fontes de ^{57}Co (14 e 122 keV) e ^{241}Am (60 keV) com o intuito de melhorar a resolução em energia do detector e aumentar o número de contagens. Observaram que para energias baixas a melhora não é muito significativa, porém para energias altas (122 keV), o detector mostrou uma grande melhora na resolução em energia e um grande aumento no número de contagens registradas. Isto se deve ao fato de que para energias altas o livre caminho médio é maior, sendo o detector posto em ângulo com o feixe incidente, aumenta a espessura do cristal, facilitando assim a detecção de radiações com energias mais altas.

4 MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 DETECTORES UTILIZADOS

4.1.1 Detector de Iodeto de Sódio Dopado com Tálho - NaI (Tl)

Os detectores de Iodeto de Sódio dopado com Tálho são cintiladores inorgânicos e pertencem ao grupo dos cristais alcali-halogênios, são constituídos de um cristal capaz de transformar a radiação incidente em luz visível ou ultravioleta. Funcionam acoplados a um transdutor óptico-elétrico, este transdutor é comumente chamado de fotomultiplicadora. Estes tipos de detectores são muito utilizados na detecção da radiação gama, devido a sua alta eficiência nas medidas dos feixes de fótons gama de baixa intensidade.

O detector utilizado neste trabalho, foi o NaI (Tl) da Amptek, probe do sistema ROVER, com um cristal de 30 mm x 30 mm, acoplado a uma base fotomultiplicadora, juntamente com uma fonte de alta tensão (300 – 1200 V). Para o presente trabalho a tensão utilizada foi de 500 V. A Figura 23 mostra um diagrama esquemático do funcionamento da fotomultiplicadora e a Figura 24 apresenta o sistema de espectrometria gama da Amptek, onde pode ser observado o detector de NaI (Tl), o detector de CdTe, o ROVER e o palmtop. O detector de NaI (Tl) tem uma massa de aproximadamente 450 g e suas dimensões podem ser melhor observadas na Figura 25.

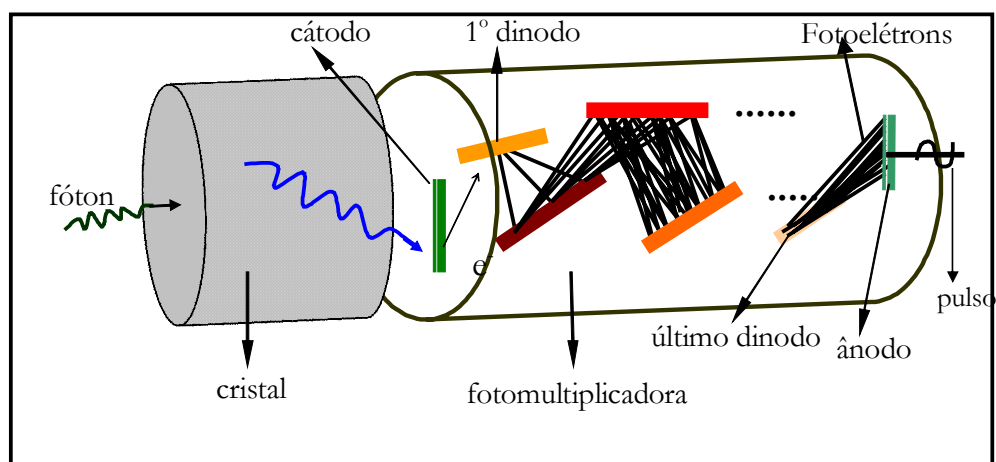


Figura 23 - Diagrama esquemático do funcionamento da fotomultiplicadora.

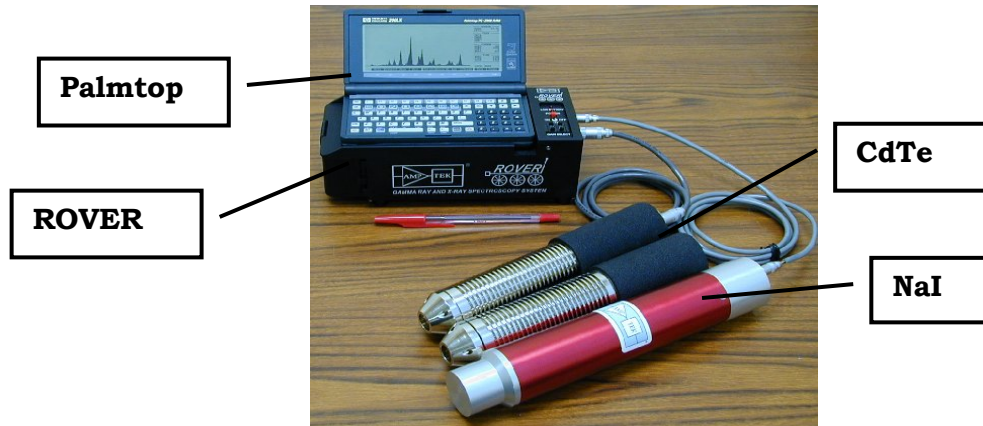


Figura 24 – Sistema de espectrometria gama da Amptek.

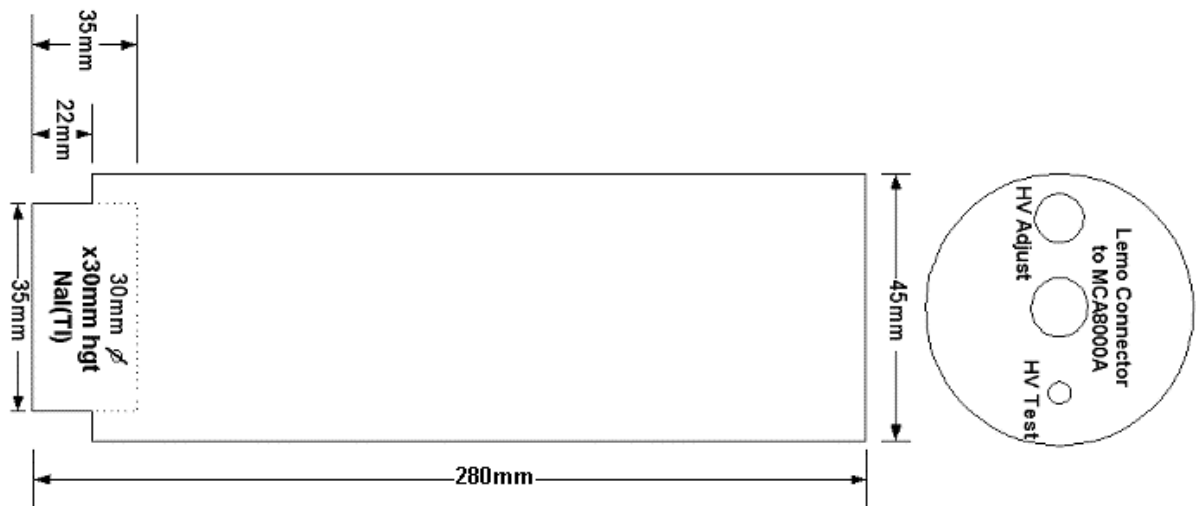


Figura 25 – Representação das dimensões do detector de NaI (Tl) utilizado no trabalho (extraído de AMPTEK, 2001).

4.1.2 Detector de Telureto de Cádmio – CdTe

A realização de medidas no próprio local de estudo, ou seja, medidas *in situ*, necessitam de equipamentos portáteis e de fácil manuseio. Com isso houve a necessidade de aprimorar um detector que possuísse uma boa resolução em energia e que funcionasse a temperaturas ambientes, poupando assim o uso de resfriamento com nitrogênio líquido. Conseqüentemente, desenvolveu-se o detector de CdTe, que é constituído de um cristal semiconductor, formado por um cristal de Telúrio dopado com Cádmio.

O cristal de CdTe é como um diodo, com geometria de $3 \times 3 \times 1 \text{ mm}^3$, protegido por uma janela de berílio com 0,25 mm de espessura e capaz de suportar altas voltagens a temperatura ambiente. A tensão utilizada no presente trabalho foi de 600 V. O cristal trabalha a uma temperatura de $-25 \text{ }^\circ\text{C}$ a $-20 \text{ }^\circ\text{C}$, sendo usado no trabalho a temperatura de $-22 \text{ }^\circ\text{C}$. Esta temperatura é alcançada devido ao resfriamento termoelétrico (Efeito Peltier) que o cristal é submetido, assim oferecendo boa resolução, e tornando o sistema de espectrometria gama *in situ* mais leve, fácil de transportar e manusear.

A Figura 26 apresenta a configuração interna parcial do detector de CdTe, onde pode ser observada a janela de berílio que protege o cristal, o cristal de CdTe, o monitorador de temperatura, cooler e o pino suporte.

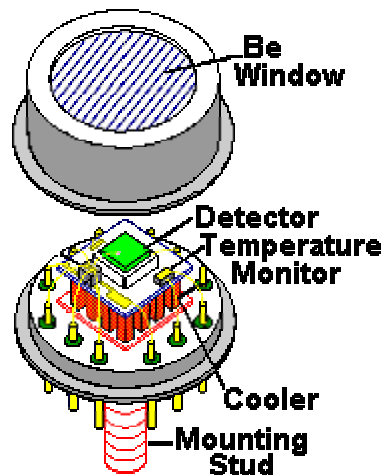


Figura 26 – Configuração interna parcial do detector de CdTe (extraído de AMPTEK, 2001).

O detector de CdTe vem acompanhado de um pré-amplificador e uma fonte de alta tensão, como apresentado no modelo esquemático da Figura 27. Possui uma massa de aproximadamente 400 g, sendo leve e muito prático de ser manuseado no campo, facilitando ainda mais as medidas de espectrometria gama *in situ*.

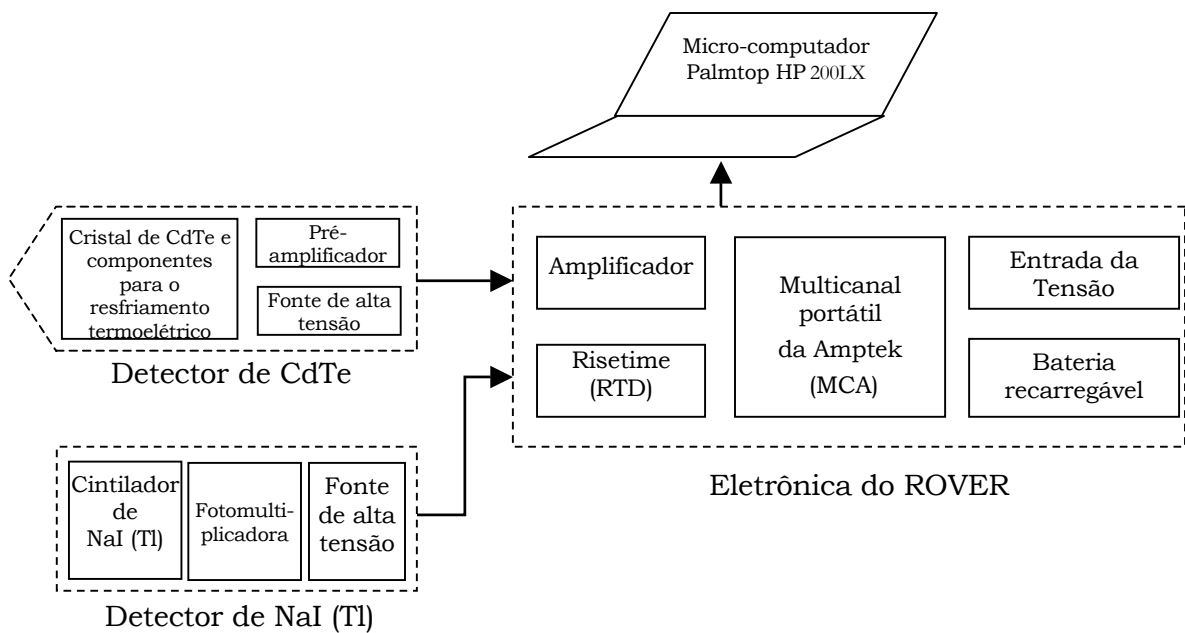


Figura 27 – Modelo esquemático do sistema de espectrometria gama da Amptek.

4.2 SISTEMA ROVER

O sistema Rover foi desenvolvido pela empresa Amptek, possui avançada tecnologia em um único sistema portátil, com aproximadamente 2,0 kg de massa e dimensões de 21,59 cm x 5,08 cm x 7,62 cm.

O Rover é composto por um amplificador, “rise time discrimination” (RTD), multicanal, entrada para fonte externa de alimentação e bateria.

4.2.1 Amplificador

O amplificador serve para processar os sinais vindos do pré-amplificador do detector. Ele tem a função de dar forma e ganho de amplitude ao pulso, proveniente do sinal de carga coletado. Um fator importante a ser considerado é o tempo de formação do pico (Shaping Time), que deve ser selecionado para otimizar a performance total.

O Rover possui quatro valores de “shaping time”, sendo $0,25 \mu\text{s}$, $1,5 \mu\text{s}$, $2 \mu\text{s}$ e $3 \mu\text{s}$, ajustáveis na tampa traseira, como representado na Figura 28. Para baixas taxas de contagem, o Rover deve ser operado com tempos maiores de formação do pico. Porém para altas taxas de contagem, e melhorar a resolução em energia do detector, o tempo de formação deve ser menor, evitando assim o empilhamento de pulsos (pile-up).

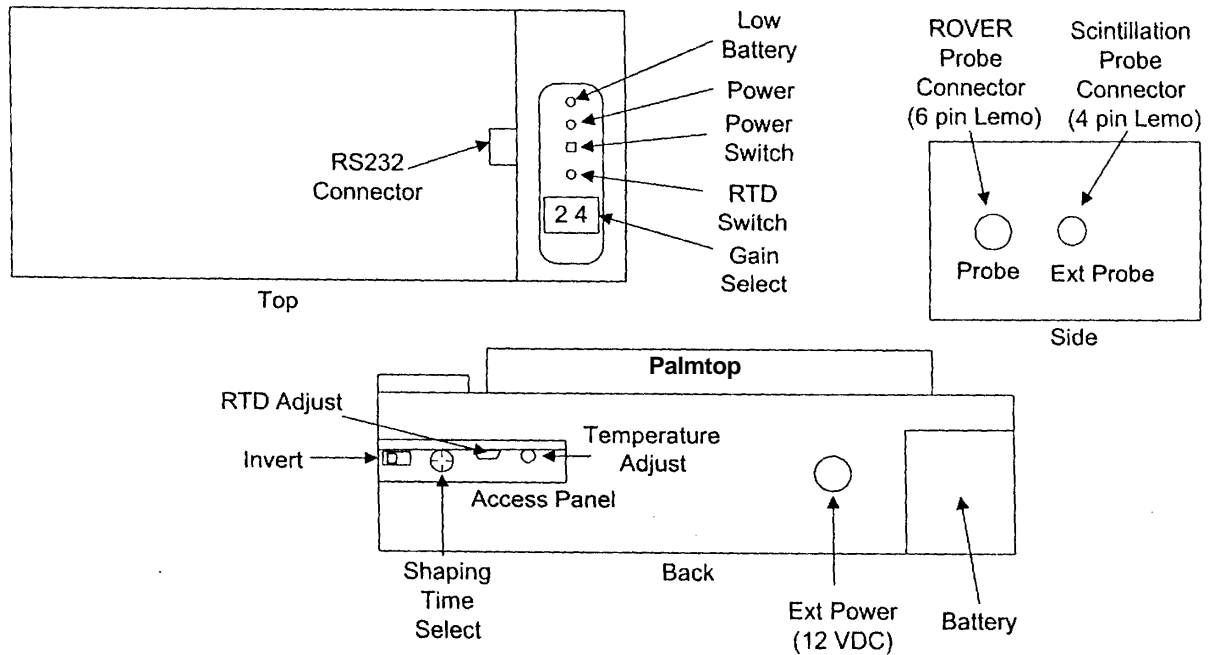


Figura 28 – Representação esquemática do ROVER (extraída de AMPTEK, 2001).

O tempo de formação do pico do amplificador utilizado foi de $3 \mu\text{s}$. O amplificador possui um controle de ajuste de ganho na parte superior do Rover, representado na Figura 28, este ganho pode ser ajustado de 01 a 99, sendo utilizado para o detector de CdTe o ganho 01, fornecendo um espectro de energia de 0 a 1000 keV e ganho 14, fornecendo um espectro de energia de 0 a 72,67 keV.

4.2.2 “Rise Time Discrimination” (RTD)

O propósito do RTD é a eliminação das interações produzidas pela aquisição de cargas incompletas. O ROVER possui um moderno circuito de discriminação do tempo de subida (RTD) fundado no fato de que aquisição de cargas em um intervalo pequeno de tempo é proporcional à corrente no detector. O RTD é alcançado comparando a corrente que passa no detector para uma fração do sinal de carga adquirido. Quando o RTD é acionado, os pulsos com má formação que seriam enviados para o multicanal são interiormente barrados. Somente pulsos correspondendo a raios gama ou raios X “completos” são enviados ao multicanal para análise.

O ROVER possui dois controles para o RTD: 1) O RTD pode ser ativado ou desativado usando o interruptor na parte superior do ROVER. 2) A fração de eventos que serão aceitas pelo RTD podem ser ajustadas usando uma chave seletora localizada na parte de trás do ROVER (0-10). Estes dois controladores podem ser observados na Figura 28 apresentada anteriormente.

Ajustando o RTD pode-se melhorar a cauda que fica à esquerda do pico, conseqüentemente melhorando também a resolução em energia do detector. Dois espectros do ^{57}Co , com tempos de aquisição e geometrias idênticas, são mostrados na Figura 29, adquiridos com o RTD ligado e desligado, onde pode-se observar claramente a mudança na resolução em energia dos dois espectros. Ajustando o RTD podem ser obtidos espectros intermediários, dependendo da necessidade do operador. O RTD utilizado pelo detector de CdTe foi estabelecido mediante um planejamento fatorial apresentado na seção 5.1.1, onde foi obtido um valor otimizado 3 como sendo o melhor RTD para o presente trabalho.

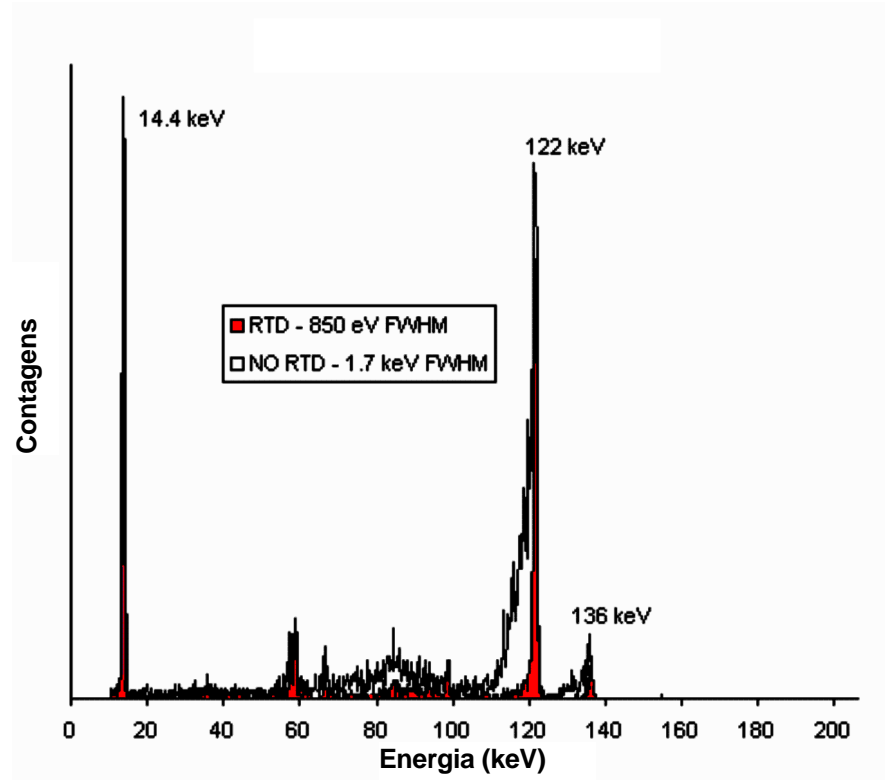


Figura 29 – Espectro do ^{57}Co adquirido com o detector de CdTe com RTD ligado e desligado (adaptado de AMPTEK, 2001).

4.2.3 Multicanal (MCA)

O multicanal, modelo MCA8000A, integrante do ROVER, é conectado a um palmtop, com capacidade de ajuste de janela para 16000, 8000, 4000, 2000, 1000, 500 e 250 canais. As medidas realizadas neste trabalho foram realizadas na janela com 4000 canais.

O MCA é um analisador de altura de pulsos (em volts), originados no detector, que é proporcional à energia dos raios gama. Um conversor analógico-digital no MCA converte a altura do pulso de voltagem em um número de canal. Cada canal corresponde a uma faixa estreita de voltagem. À medida que os pulsos de voltagem vão chegando no MCA, esta vai guardando na memória uma distribuição das contagens dos pulsos com respeito à altura dos mesmos. Esta distribuição arranjada em ordem crescente de altura de pulso (energia de raios gama detectado) é chamada de espectro. O aplicativo PMCA realiza a interface entre o MCA e o palmtop ou microcomputador, de maneira que o espectro coletado no MCA possa ser armazenado e analisado posteriormente.

4.2.4 Fontes de Alimentação

O ROVER é alimentado por uma bateria recarregável de Ni-MH de 6V, modelo Duracell DR11, que pode alimentar o sistema por aproximadamente 12 horas de operações normais. Porém, se o detector de CdTe for operado sob condições de temperaturas mais elevadas, o sistema requer uma potência maior para poder refrigerar o cristal, através do resfriamento termoelétrico. Entretanto, se o ROVER for operado com o palmtop desconectado, a vida útil da bateria aumenta para aproximadamente 13,5 horas.

O ROVER também pode ser alimentado por uma rede externa de 100-240 V e 50/60 Hz, comumente usada em todo o país.

4.3 SISTEMA DE DETECÇÃO E GEOMETRIA

4.3.1 Calibração em Energia

Para uma exata determinação das linhas de energia gama de um dado radionuclídeo, o sistema de espectrometria gama *in situ* necessita que se faça uma calibração em energia. A calibração em energia é realizada através da medida de espectros de fontes de radionuclídeos, dos quais já se conhecem os raios gama emitidos, fazendo-se a associação destas energias com o seu respectivo canal no multicanal. Normalmente esta calibração é realizada com duas, três ou mais linhas conhecidas de energias distribuídas dentro da faixa de energia de interesse. Após a calibração em energia do sistema, é possível associar ao canal da centróide de um pico a energia correspondente e através de tabelas de radionuclídeos determinar a qual radionuclídeo pertence tais raios gama. Neste trabalho, a calibração em energia foi feita através do programa PMCA da Amptek, responsável pelo controle e armazenamento dos dados adquiridos pelo multicanal.

Para fazer esta calibração, foram usadas as fontes descritas na Tabela 6 do item 4.4, as quais foram utilizadas dependendo da faixa de energia de interesse.

4.3.2 Resolução em Energia

A resolução em energia de um detector está relacionada com a largura a meia altura do pico, FWHM (“full width at half maximum”), que o detector exibe para uma determinada linha de energia. Quanto menor é a largura a meia altura do pico, melhor é a habilidade do detector em identificar a energia da radiação incidente. O detector de NaI (Tl) utilizado no trabalho, possui um FWHM de aproximadamente 6,9 % para a energia de 661,65 keV do ^{137}Cs , como mostra a Figura 30 (fornecida pela Amptek) e de 14 % para a energia de 59,5 keV do ^{241}Am . Já o detector de CdTe, possui um FWHM de aproximadamente 1 % para a energia dos raios gama de 661,65 keV do ^{137}Cs e de 2 % para a energia dos raios X de 32 keV do ^{137}Cs . Esta grande melhoria na resolução pode ser observada juntamente com a resolução do detector de NaI na Figura 31, onde é feita a comparação com quatro detectores mais utilizados.

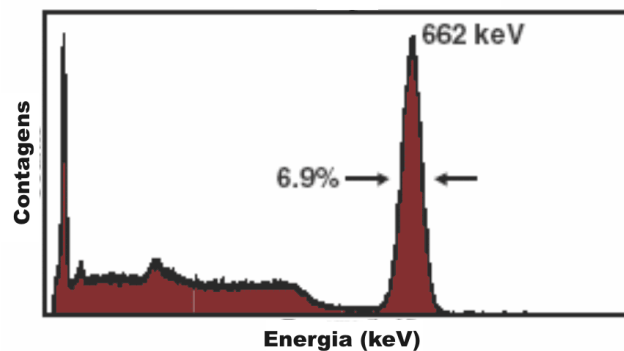


Figura 30 – Espectro do ^{137}Cs mostrando a resolução em energia do detector de NaI (Tl) para a linha de 661,65 keV (adaptado de AMPTEK, 2001).

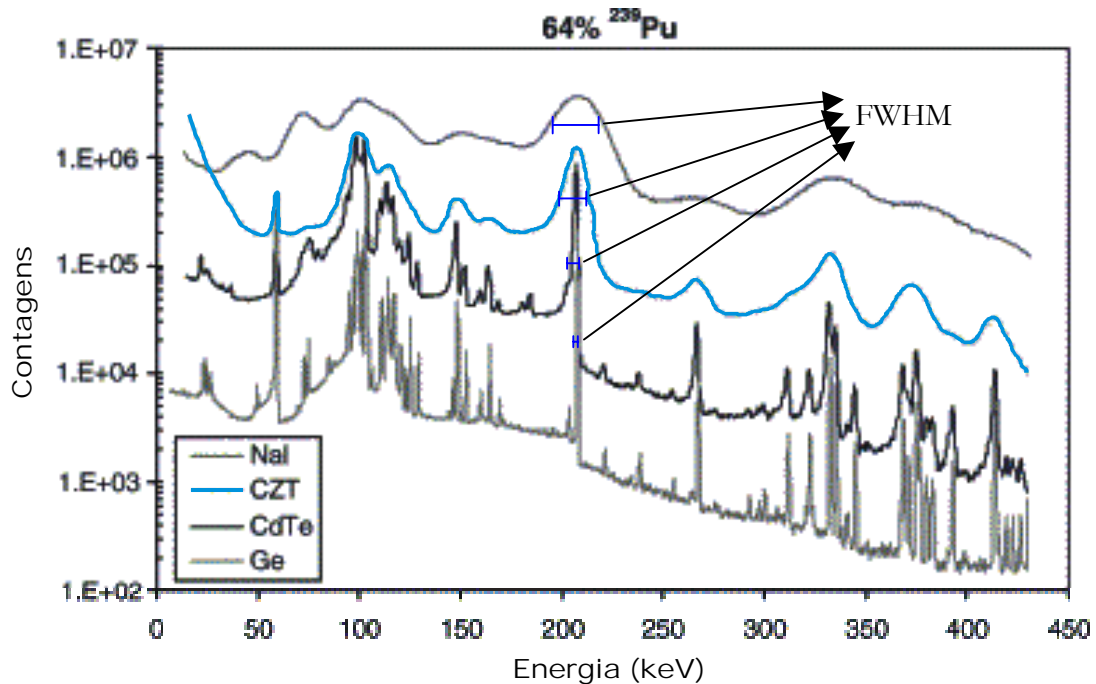


Figura 31 – Espectro do ²³⁹Pu com detectores de NaI, CZT, CdTe e Ge (adaptado de VO & RUSSO, 2002).

4.3.3 Eficiência de Detecção

A eficiência de detecção é a capacidade dos detectores produzirem um pulso de saída para cada fóton de radiação que interage com o volume ativo do detector. Para detectores de radiação secundária (radiação eletromagnética e partículas sem carga), que é o caso deste trabalho, a eficiência de detecção é menor que 100 % devido ao fato de que radiações secundárias têm um livre caminho médio muito grande, podendo passar pelo detector sem interagir ou interagindo parcialmente com o seu volume ativo.

A eficiência de detectores de radiação secundária pode ser dividida em três classes: eficiência absoluta, eficiência intrínseca e eficiência relativa. A eficiência absoluta é definida como a razão entre o número de pulsos registrados no detector e o número de quanta de radiação emitido pela fonte. A eficiência intrínseca é a razão entre o número de pulsos registrados no detector e o número de quanta de radiação incidente no detector. A eficiência relativa é a razão entre a eficiência absoluta do detector considerado e a eficiência absoluta de um detector de cintilação de NaI(Tl), de 3" x 3", a 25 cm de distância da fonte, como definido em "Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Rays Detectors" (I.E.E.E., 1971).

A probabilidade de interação dos raios gama com o volume ativo do detector de NaI (Tl) é mostrada na Figura 32. A interação está diretamente relacionada com a energia do fóton incidente no cristal.

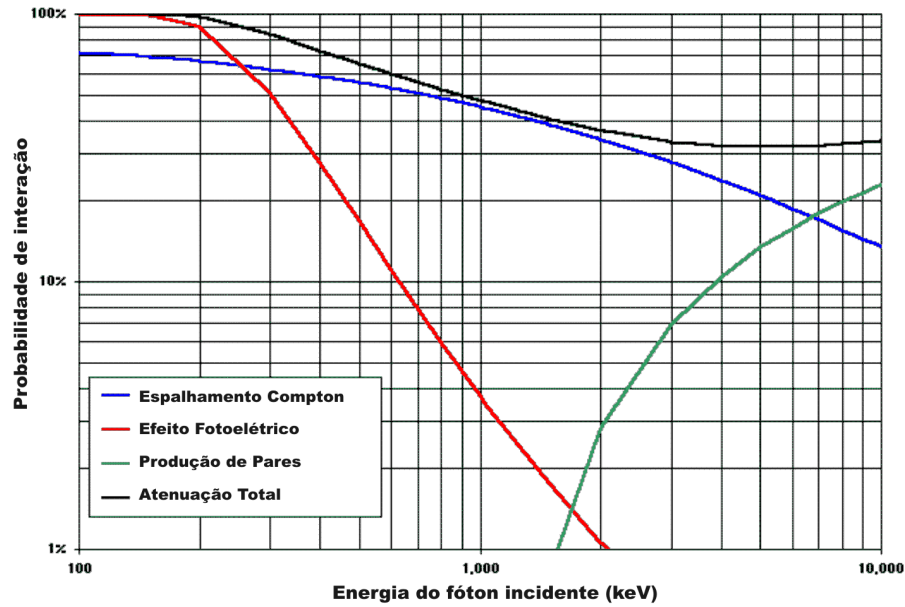


Figura 32 – Curva da interação dos raios gama com o volume ativo do cristal de NaI (Tl) (adaptada de AMPTEK, 2001).

A eficiência intrínseca do detector de CdTe está representada na Figura 33 para uma faixa de energia de 1 a 1000 keV.

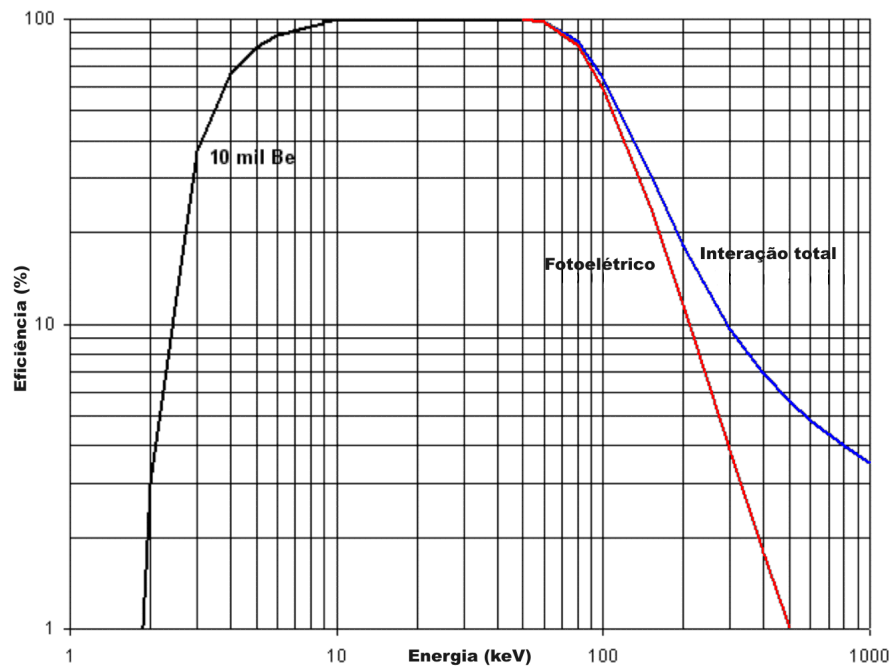


Figura 33 – Curva da eficiência intrínseca do detector de CdTe para as energias de 1 a 1000 keV (adaptada de AMPTEK, 2001).

A eficiência absoluta dos detectores de NaI (Tl) e CdTe foi determinada pela Equação 20, através de medidas de fontes padrão de ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{152}Eu e amostras de solo contaminadas com ^{137}Cs .

$$\mathcal{E}(E) = \frac{N}{A \cdot P_{\gamma} \cdot m \cdot t} \quad \text{Equação 20}$$

onde,

- A é a atividade ou concentração do radionuclídeo que chega no detector (Bq ou $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$);
- N representa a contagem líquida do fotopico de interesse;
- ε é a eficiência absoluta do detector para a linha de interesse;
- P_{γ} é a probabilidade de transição pelo decaimento gama;
- m é a massa da amostra (kg);
- t é o tempo de contagem (s);

A atividade do radionuclídeo que chega no detector (A) foi determinada através do cálculo do ângulo sólido dos detectores, como mostra a Equação 21.

$$A = \frac{A'}{4 \cdot \pi \cdot r^2} \cdot a \quad \text{Equação 21}$$

onde,

- A é a atividade ou concentração de radionuclídeo que chega ao detector, correspondente ao ângulo sólido de cada detector (Bq ou Bq.kg⁻¹) na geometria fonte-detector considerada;
- A' é a atividade do radionuclídeo da fonte (Bq ou Bq.kg⁻¹);
- r é a distância que separa o detector da fonte (m);
- a é a área do cristal do detector (m²).

4.3.4 Blindagem do Sistema de Detecção

Torna-se necessária a utilização de uma blindagem no sistema de detecção devido ao contínuo bombardeio de radiação que atinge a superfície terrestre, proveniente de raios cósmicos e de raios gama de fontes naturais e artificiais. Isto faz com que exista um espectro de fundo em todas as medidas.

As fontes dessa radiação de fundo podem ser a radiação cósmica, os materiais constituintes do detector, dos equipamentos ou da blindagem localizada ao redor do detector. Um exemplo é o potássio natural presente no concreto e em outros materiais de construção, que apresenta uma linha de 1460 keV bastante destacada no espectro de fundo.

Quando se analisam fontes com alta taxa de emissão, o espectro de fundo não interfere relevantemente. Porém, na análise de baixa emissão de radiação ou de amostras ambientais, o fundo contaminará todo o espectro. Para que a contribuição dos raios gama externos (espectro de fundo) seja mínima no espectro da amostra ou da fonte analisada, é extremamente necessária a utilização de uma blindagem no detector.

O material mais usado para este tipo de blindagem é o chumbo, devido ao seu alto número atômico e sua alta densidade. No entanto, existe ainda a possibilidade da emissão de radiação por traços de isótopos radioativos encontrados no chumbo e pelo fato da radiação cósmica, ao interagir com a blindagem de chumbo, formar radiação secundária, que podem ser

observadas nos espectros deste trabalho, mas que não são de grande relevância para as linhas gama em questão neste trabalho.

A Figura 34 mostra o sistema de espectrometria gama *in situ* do Laboratório de Física Nuclear Aplicada (LFNA), onde pode-se observar a blindagem de chumbo utilizada no trabalho para os detectores de NaI (Tl) e CdTe. A blindagem possui 15 cm de diâmetro, 37 cm de altura, um orifício central de 5 cm de diâmetro e paredes laterais de 5 cm de chumbo. Com estas medidas, a blindagem, juntamente com a tampa, possui uma massa de 59 kg e 9,5 kg, respectivamente.



Figura 34 – Mesa de medidas da espectrometria gama *in situ* do LFNA.

Para definir se havia necessidade do uso da blindagem nas medidas com os detectores de NaI (Tl) e CdTe, foram realizados alguns testes. Inicialmente foi realizada uma medida sem blindagem nenhuma. Depois uma outra medida utilizando a blindagem de chumbo.

Após comparar os espectros de cada medida, mostrados na Figura 35, observa-se que para o detector de NaI (Tl), na região de 661,65 keV, o uso da blindagem de chumbo faz a área líquida do pico aumentar aproximadamente 59 %, tornando o uso da blindagem de grande importância, pois pode-se observar claramente que o espectro de fundo é significativo. Já para o detector de CdTe, na região de 32 keV como pode ser observado na Figura 36, o aumento na área líquida do pico é de 96 %, mais uma vez comprovando que o uso da blindagem de chumbo é necessária para melhorar o desempenho dos detectores.

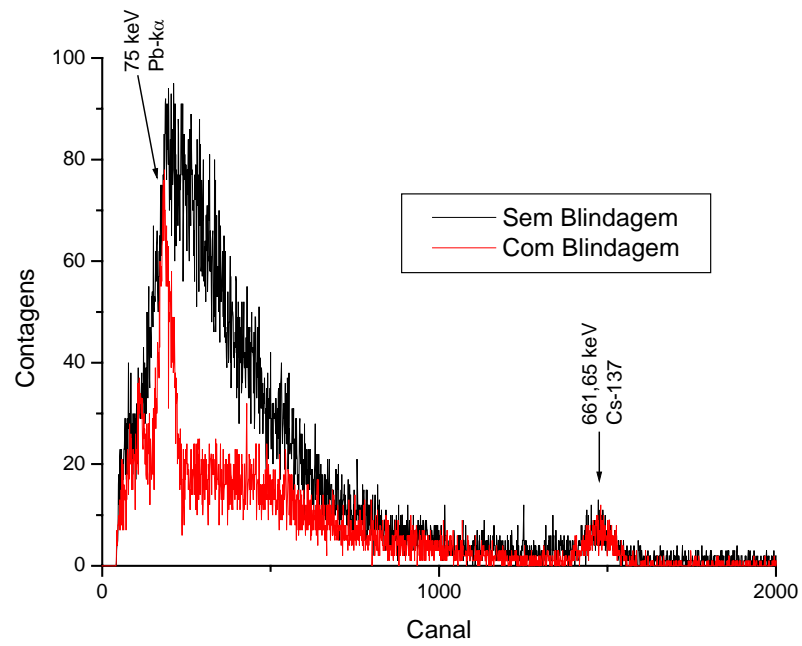


Figura 35 – Espectro da amostra de solo F0 com o detector de NaI (Tl) com e sem blindagem (tempo de cada medida 15 minutos).

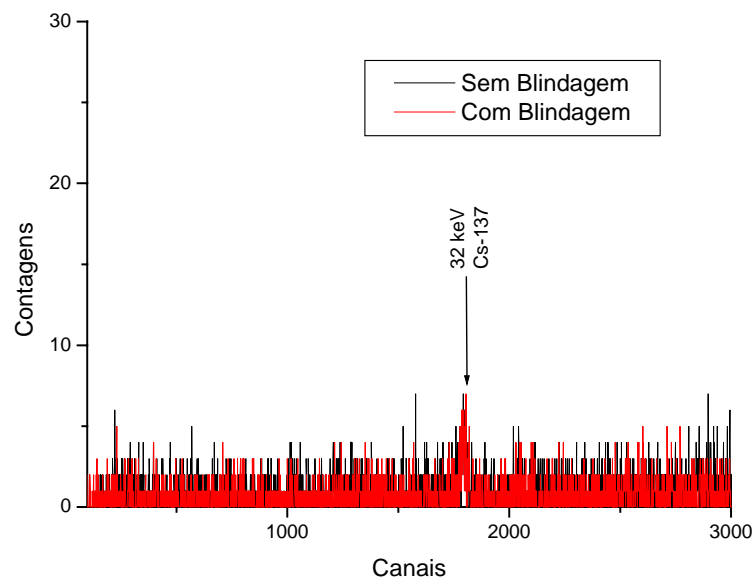


Figura 36 – Espectro da amostra de solo F0 com o detector de CdTe com e sem blindagem (tempo de cada medida 72 horas).

4.3.5 Limite Mínimo de Detecção

O limite mínimo de detecção de um espectrômetro de raios gama é a medida de sua habilidade em detectar um pico de raios gama na presença de interferência da radioatividade natural e do espalhamento Compton de raios gama de alta energia originados na fonte.

Quando uma amostra é introduzida no detector, o termo usualmente associado com o limite de detecção é a atividade mínima detectável (AMD), que é expressa pela

Equação 22.

$$AMD = \frac{N_{Lmín}}{\varepsilon \cdot P_{\gamma} \cdot m \cdot t} \quad \text{Equação 22}$$

onde,

- ε é a eficiência de contagem do detector para a linha de energia gama em questão;
- P_{γ} é a probabilidade de transição pelo decaimento gama para a energia dos raios gama;
- m é a massa da amostra;
- t é o tempo de contagem;
- $N_{Lmín}$ representa a área líquida mínima do espectro medido, com 95 % de confiabilidade (IAEA, 1989), dada por:

$$N_{Lmín} = 4,66 \sqrt{F_L} \quad \text{Equação 23}$$

onde F_L é o fundo líquido na região da linha gama de interesse no espectro da amostra considerada.

Como pode ser visto na Equação 22, os fatores que influenciam o limite de detecção são a eficiência de contagem, a quantidade da amostra, o tempo de contagem associado ao fundo e o valor do fundo.

4.4 AMOSTRAS E FONTES UTILIZADAS

A aquisição dos espectros das amostras pelo sistema de espectrometria gama *in situ* fornece a área sob o pico desejado, que neste estudo são as linhas de 32 keV e 661,65 keV do ^{137}Cs e a linha de 477,61 keV do ^{7}Be , em contagens, de modo que é necessário medir a eficiência do detector para relacionar a área sob o pico desejado com a atividade destes radionuclídeos de interesse na amostra. Com o valor da eficiência de contagem do detector, foi possível determinar a atividade do radionuclídeo de interesse nas amostras estudadas. Na determinação da eficiência para este estudo, foram usadas fontes padrão de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu e amostras de solo calibradas com diferentes atividades de ^{137}Cs . A Tabela 6 apresenta as características das fontes e amostras de solo usadas no trabalho.

Tabela 6 – Fontes e amostras de solo utilizadas na calibração dos detectores e no cálculo da eficiência.

| Fonte | Radionuclídeo | Atividade certificada | Data de referência | Atividade corrigida para 06/12/04 |
|-------------------|-------------------|--|--------------------|-----------------------------------|
| ^{241}Am | ^{241}Am | 361,1 kBq \pm 1 % * | 01/01/82 | 348,1 kBq |
| ^{133}Ba | ^{133}Ba | 376 kBq \pm 3 % ** | 01/10/03 | 347,7 kBq |
| ^{137}Cs | ^{137}Cs | 185 kBq \pm 1 % * | 01/08/01 | 171,3 kBq |
| ^{137}Cs | ^{137}Cs | 377,5 kBq \pm 1 % * | 01/01/82 | 223,3 kBq |
| ^{137}Cs | ^{137}Cs | 519 kBq \pm 3 % ** | 01/10/03 | 505,1 kBq |
| ^{152}Eu | ^{152}Eu | 613 kBq \pm 3 % ** | 01/10/03 | 577,1 kBq |
| Solo - F0 | ^{137}Cs | 3,7 kBq.kg ⁻¹ \pm 10 % * | 05/09/91 | 2,7 kBq.kg ⁻¹ |
| Solo - F10 | ^{137}Cs | 0,225 kBq.kg ⁻¹ \pm 10 %* | 05/09/91 | 0,166 kBq.kg ⁻¹ |

* Nível de confiança: 95 %.

** Nível de confiança: 68 %.

As três fontes de ^{137}Cs , e as fontes de ^{241}Am , ^{133}Ba e ^{152}Eu , são fontes padrão, tipo pastilha, lacradas em polietileno e alumínio, certificadas pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN.

As duas amostras de solo calibradas F0 e F10, são solos da classe LRd2, que foram secos ao ar e passado em peneira de 2 mm de malha, preparados com uma solução $^{137}\text{CsCl}$ diluída em água deionizada. A massa das amostras F0 e F10 são de 0,1148 kg para o detector de NaI (TI) e de 0,0953 kg para o detector de CdTe. Este solo foi colocado em um recipiente de vidro aberto de 8,5 cm de diâmetro por 2,5 cm de altura, como pode ser observado na Figura 37.



Figura 37 – Amostra de solo F0.

4.4.1 Determinação da Atividade

Para se obter uma boa análise espectrométrica, é necessário calibrar o sistema com amostras certificadas ou padrões dos radionuclídeos desejados. É necessário, ainda, ajustar parâmetros de acordo com o tipo de amostra (geometria), equipamentos disponíveis, a composição dos radionuclídeos e a atividade da amostra. O tempo de aquisição de dados varia de acordo com o limite de detecção desejado, com a eficiência de detecção e os radionuclídeos de interesse.

A atividade de um dado radionuclídeo é determinada pela Equação 24 (IAEA 295, 1989):

$$A = \frac{N_L}{\varepsilon \cdot P_\gamma \cdot m \cdot t} \quad \text{Equação 24}$$

onde,

- A é a atividade da amostra em $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$;

- N_L é o número de contagens líquido medido sob o fotopico;
- ε é a eficiência absoluta do detector para a linha e geometria de interesse;
- P_γ é a probabilidade de transição absoluta por decaimento gama através da energia selecionada.
- m é a massa da amostra em quilogramas
- t é o tempo de medida em segundos

4.5 ESPECTROMETRIA GAMA *IN SITU*

A realização de medidas no próprio local de estudo, denominadas "Técnicas de medida *in situ*", fornece respostas rápidas por não haver a necessidade de coleta, transporte, tratamento químico e/ou físico de amostras. As medidas *in situ* surgiram devido à necessidade do monitoramento de locais sujeitos a acidentes nucleares, onde em casos de situações de emergência, por exemplo, permite a rápida identificação dos radionuclídeos que estão contribuindo para a taxa de exposição e, com isso, facilita as decisões sobre a aplicabilidade do procedimento de emergência a ser adotado.

A espectrometria gama *in situ* foi inicialmente proposta por BECK et al. (1972), que desenvolveu o fator de calibração global (N_f/S_A) do detector *in situ*, sendo composto por três fatores, como mostra a Equação 25.

$$\frac{N_f}{S_A} = \frac{N_f}{N_0} \cdot \frac{N_0}{\phi} \cdot \frac{\phi}{S_A} \quad \text{Equação 25}$$

onde, N_f/N_0 é um fator de correção angular considerado para a resposta do detector na energia E , N_0/ϕ é a eficiência do detector para o fluxo de raios gama incidente normal à face do detector e ϕ/S_A é o fluxo de raios gama no detector por unidade de concentração de atividade no solo.

A espectrometria gama *in situ* é um método prático e rápido de se obter informações sobre radionuclídeos no meio ambiente. É particularmente útil na resposta a situações de emergência, onde uma rápida avaliação da atividade ou da taxa de exposição, devido a um dado radionuclídeo depositado no solo, se faz necessária. Este método também está

sendo utilizado para determinar a atividade de ^{137}Cs , a qual é empregada para quantificar a erosão e/ou deposição de solo, onde o detector é colocado a 1 metro de altura do solo.

A diminuição ou aumento do conteúdo de ^{137}Cs no solo, em um ponto numa região, relativo ao conteúdo de ^{137}Cs depositado pelo “fallout” em uma posição de referência, reflete a perda ou ganho de solo pelo processo de erosão atuando neste ponto desde que o ^{137}Cs tem estado presente no ambiente. Portanto, comparações entre o conteúdo de ^{137}Cs em uma determinada posição em relação à posição de referência, fornece informações qualitativas a respeito da distribuição espacial da erosão e deposição de solo. Estimativas quantitativas dependem da existência de modelos que correlacionem a relação entre o valor do inventário (conteúdo de ^{137}Cs num dado ponto) em relação ao inventário de referência com a taxa de erosão ou deposição de solo.

A geometria do sistema de espectrometria gama *in situ* foi definida colocando a blindagem de chumbo, descrita no item 4.3.3, na posição vertical sobre uma mesa de medidas com 40 x 60 cm, especialmente preparada para medidas em campo, sendo totalmente desmontável, facilitando assim o seu transporte. A Figura 38 mostra a mesa de medidas desmontada, juntamente com o restante do sistema de espectrometria gama *in situ* do LFNA, já acondicionados no carrinho feito especialmente para o transporte do sistema. A mesa foi ajustada para ficar a 1 metro de altura do solo, podendo variar sua altura de acordo com a necessidade.

Conseqüentemente, os detectores são colocados no interior da blindagem, ficando com o volume ativo voltado para baixo. O ROVER, devido as suas dimensões reduzidas, também fica acondicionado em cima da mesa de medida, como mostra a Figura 39.

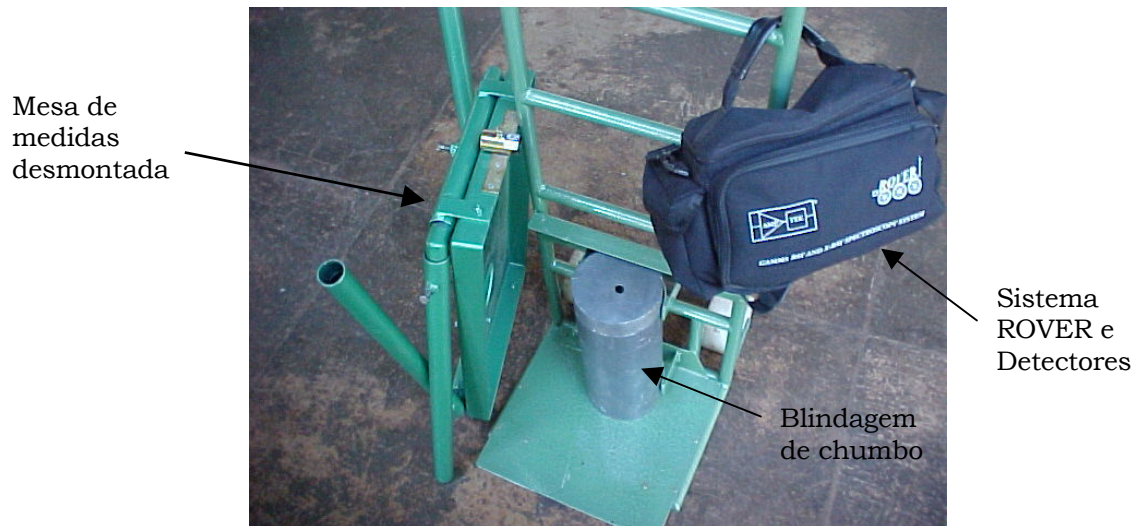


Figura 38 – Sistema de espectrometria gama *in situ* do LFNA acondicionado para transporte.



Figura 39 – Sistema de espectrometria gama *in situ* do LFNA.

As fontes e as amostras de solo foram colocadas a 2,8 cm, 4,15 cm e 100 cm abaixo do detector, perpendicular ao cristal. Estas distâncias foram escolhidas devido ao fato de que 100 cm é a distância padrão das medidas de espectrometria gama *in situ* na literatura. Já as distâncias de 2,8 e 4,15 cm, foram escolhidas para maximizar a taxa de contagem da linha de 32 keV, raios X do ^{137}Cs , sendo que os fótons desta energia são relativamente atenuados pelo ar na distância padrão de 1 metro do detector.

4.6 SOFTWARES UTILIZADOS

Foi utilizado o *software* PMCA versão 2.0.1 da Amptek, que funciona diretamente no computador portátil (palmtop) que acompanha o sistema ROVER, ou em um computador normal de mesa. Através do software PMCA é possível identificar os picos do espectro, sua energia e radionuclídeo, assim como, utilizando a função ROI obter a área sob o pico desejado. É possível também realizar a subtração de espectros, para obter-se o espectro líquido da amostra. A Figura 40 apresenta a tela principal do software PMCA da Amptek, onde, do lado direito inferior, o programa fornece informações sobre o pico selecionado, tais como: centróide, FWHM, área líquida, taxa de contagem e área bruta, entre outras informações que podem ser observadas diretamente na figura.

Utilizou-se ainda do software HP Connectivity para baixar os espectros do palmtop para o computador normal de mesa, que podem ser transferidos para o software Origin 5.0 (MICROCAL SOFTWARE, 1997), onde foram impressos os espectros.

O software Excel foi utilizado para construção das planilhas de dados medidos neste trabalho, programações de equações, cálculo das atividades e seus respectivos desvios.

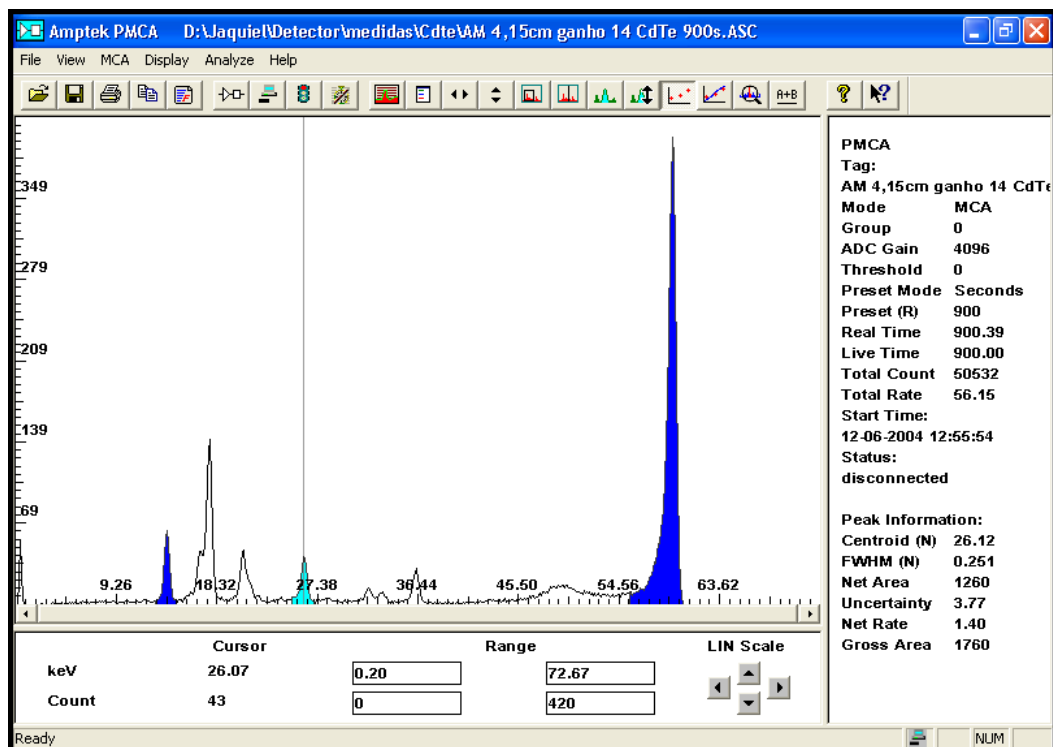


Figura 40 – Tela principal do software PMCA da Amptek.

4.7 OTIMIZAÇÃO DOS PARÂMETROS DE MEDIDAS

Para melhorar a performance do sistema de espectrometria gama *in situ*, foi realizado um planejamento fatorial a dois níveis (BARROS NETO et al., 2001). Nível é o valor atribuído ao parâmetro e, portanto, um estudo a dois níveis refere-se ao estudo de dois valores atribuídos ao parâmetro, sendo um valor superior (+) e um valor inferior (-). Portanto, o efeito de qualquer parâmetro sobre a resposta pode ser determinado fazendo tal parâmetro variar de nível e observar o resultado que essa variação produz na resposta.

Para realizar um planejamento fatorial completo, é necessário fazer experimentos com todas as possíveis combinações dos níveis dos parâmetros. Como existiam três parâmetros envolvidos, o shaping time, RTD e a temperatura do cristal, um planejamento completo de dois níveis exigiu $2 \times 2 \times 2 = 2^3$ ensaios diferentes, totalizando 8 ensaios. Um planejamento deste tipo é chamado de planejamento fatorial 2^3 .

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 PROBE *IN SITU* DE CdTe

O detector de Telureto de Cádmio foi introduzido no final da década de 90 para medidas ambientais, devido a isso existem poucas informações disponíveis sobre este detector. A maioria dos artigos encontrados na literatura trata da aplicação deste detector na medida de amostras com altíssimo nível de atividade (milhares de kBq.kg^{-1} ou mais) ou amostras de combustível nuclear irradiado.

5.1.1 Planejamento Fatorial 2^3

Para fazer o planejamento 2^3 , foram realizados ensaios e registradas as respostas observadas em todas as possíveis combinações de níveis dos três parâmetros. A lista dessas combinações é chamada de matriz de planejamento. Para realizar a montagem da matriz de planejamento, existe uma ordem padrão de disposição dos ensaios. Todas as colunas da matriz de planejamento começam com o nível inferior (-) e depois vão se alternando um a um na primeira coluna (-+--+...), dois a dois na segunda coluna (-++--+...) e assim por diante, onde cada coluna dobra o número de sinais repetidos.

Os parâmetros selecionados para o ajuste foram o shaping time, RTD e a temperatura do cristal. A Tabela 7 mostra os níveis inferiores (-) e superiores (+) dos parâmetros selecionados.

Tabela 7 – Fatores envolvidos no planejamento fatorial 2^3 .

| Parâmetro \ Nível | (-) | (+) |
|------------------------------------|-----------------|-----------------|
| 1 - Shaping Time (μs) | 1,5 | 3 |
| 2 - RTD | 3 | 10 |
| 3 - Temperatura | -25°C (248K) | -22°C (251K) |

A Tabela 8 apresenta a matriz de planejamento para as medidas realizadas para o planejamento fatorial 2^3 , onde foram realizadas duas repetições para cada configuração de fatores envolvidos. O tempo de cada medida foi de uma hora, sendo, portanto, um total de dezesseis horas de medidas. Os números que estão abaixo de cada resposta média, representam o desvio associado para aqueles Algarismos, com 95 % de confiança.

Para estas medidas foi utilizada a linha de 32 keV dos raios X de uma fonte de ^{137}Cs , tipo pastilha, selada em alumínio, com atividade de 377,5 kBq em 01/01/81, sendo estas medidas realizadas em 10/03/2004. A fonte foi colocada a uma distância de 4,15 cm do detector.

Tabela 8 – Matriz de Planejamento fatorial 2^3 dos parâmetros Shaping Time (1), RTD (2) e Temperatura (3).

| Ensaio | Parâmetro | | | Contagens | | | | FWHM (keV) | | Resposta média * | | |
|--------|-----------|---|---|-----------|------|---------|------|------------|-------|---------------------|---------------------|-------------------------|
| | 1 | 2 | 3 | Bruta | | Líquida | | | | Bruta | Líquida | FWHM |
| 1 | - | - | - | 7212 | 7200 | 5561 | 5602 | 0,668 | 0,654 | 7206 ± 17 | 5582 ± 57 | 0,661 ± 0,019 |
| 2 | + | - | - | 7122 | 7146 | 5868 | 5825 | 0,559 | 0,587 | 7134 ± 33 | 5847 ± 60 | 0,573 ± 0,039 |
| 3 | - | + | - | 7358 | 7344 | 5733 | 5708 | 0,643 | 0,616 | 7351 ± 19 | 5721 ± 35 | 0,630 ± 0,037 |
| 4 | + | + | - | 7196 | 7221 | 5991 | 6008 | 0,593 | 0,645 | 7209 ± 35 | 6000 ± 24 | 0,619 ± 0,072 |
| 5 | - | - | + | 7229 | 7268 | 5747 | 5725 | 0,562 | 0,586 | 7249 ± 54 | 5736 ± 30 | 0,574 ± 0,033 |
| 6 | + | - | + | 7567 | 7595 | 6383 | 6416 | 0,679 | 0,700 | 7581 ± 39 | 6400 ± 46 | 0,690 ± 0,029 |
| 7 | - | + | + | 7671 | 7740 | 6192 | 6164 | 0,626 | 0,599 | 7706 ± 96 | 6178 ± 39 | 0,613 ± 0,037 |
| 8 | + | + | + | 7486 | 7461 | 6419 | 6424 | 0,712 | 0,704 | 7474 ± 35 | 6422 ± 7 | 0,708 ± 0,011 |

* Nível de confiança: 95 %.

A partir da matriz de planejamento pode-se formar a tabela dos coeficientes de contraste. Esta tabela é formada pelos efeitos principais de cada parâmetro mais as interações entre eles. Dependendo do número de parâmetros, podem existir efeitos de interações de 1ª, 2ª, ..., kª ordem. Nesta tabela, o efeito principal de cada parâmetro é obtido pela repetição dos sinais da coluna do parâmetro em questão. Além dos efeitos principais, também existem os efeitos de interação entre os parâmetros, os quais são determinados multiplicando-se os sinais

das colunas dos parâmetros envolvidos para obter a coluna correspondendo à interação entre eles (BARROS NETO et al., 2001).

A Tabela 9 apresenta a tabela de coeficientes de contraste para a resposta do detector de CdTe, com 3 parâmetros. Transformando esta tabela numa matriz X para os contrastes com elementos +1 e -1 e matriz Y para a resposta, e realizando o produto $X'Y$, onde X' é a matriz transposta de X , é possível calcular os efeitos de cada contraste. Os efeitos são classificados segundo a ordem de interação, sendo chamados de efeito principal o efeito de cada parâmetro (1, 2, 3), de efeito secundário todos os efeitos obtidos da interação dos parâmetros dois a dois (12, 13, 23) e de efeito terciário os efeitos obtidos da interação dos parâmetros três a três (123).

Tabela 9 – Matriz de contrastes para a resposta do detector de CdTe.

| Contrastes | | | | | | | Resposta média | | |
|------------|---|---|----|----|----|-----|----------------|---------|-------|
| 1 | 2 | 3 | 12 | 13 | 23 | 123 | Bruta | Líquida | FWHM |
| - | - | - | + | + | + | - | 7206 | 5582 | 0,661 |
| + | - | - | - | - | + | + | 7134 | 5847 | 0,573 |
| - | + | - | - | + | - | + | 7351 | 5721 | 0,630 |
| + | + | - | + | - | - | - | 7209 | 6000 | 0,619 |
| - | - | + | + | - | - | + | 7249 | 5736 | 0,574 |
| + | - | + | - | + | - | - | 7581 | 6400 | 0,690 |
| - | + | + | - | - | + | - | 7706 | 6178 | 0,613 |
| + | + | + | + | + | + | + | 7474 | 6422 | 0,708 |

O cálculo dos efeitos, primários, secundários e terciário, que cada parâmetro proporciona na área bruta e líquida, juntamente com os efeitos causados na resolução do detector foram calculados como mostra a Tabela 10. Os valores dos efeitos, positivos ou negativos, significam um aumento ou um decréscimo na resposta do detector, respectivamente, em relação à variação dos parâmetros considerados.

Tabela 10 – Efeitos primários, secundários e terciário dos parâmetros envolvidos na aquisição dos espectros com o detector de CdTe (em contagens).

| Contrastes | Efeitos | | |
|------------|--------------|----------------|----------------|
| | Área Bruta * | Área Líquida * | FWHM (keV) * |
| 1 | -29 ± 24 | 363 ± 20 | 0,028 ± 0,019 |
| 2 | 142 ± 24 | 189 ± 20 | 0,018 ± 0,019 |
| 3 | 277 ± 24 | 397 ± 20 | 0,026 ± 0,019 |
| 12 | -159 ± 24 | -102 ± 20 | 0,014 ± 0,019 |
| 13 | 79 ± 24 | 91 ± 20 | 0,077 ± 0,019 |
| 23 | 33 ± 24 | 43 ± 20 | 0,011 ± 0,019 |
| 123 | -124 ± 24 | -109 ± 20 | -0,025 ± 0,019 |

* Nível de confiança: 95 %.

Para analisar se os efeitos são significativos ou não, usou-se gráficos normais baseados na noção de probabilidade cumulativa. Um gráfico de probabilidade cumulativa numa distribuição normal é uma curva monotonicamente crescente, em forma de S, que vai de 0 a 1.

Essa curva pode ser transformada numa reta por meio de uma modificação na escala do eixo das ordenadas através de uma expansão em torno do ponto representando 50 % de probabilidade acumulada. Supondo que nenhum dos efeitos dos contrastes exista de fato, ou seja, que o verdadeiro valor de cada um seja zero, espera-se que o gráfico dos efeitos ajuste-se bem a uma reta com média zero na escala de probabilidade normal. Se essa expectativa não for confirmada, isto significa que aqueles efeitos realmente são significativos, e tanto mais significativos quanto mais afastados estiverem da região central (zero), seja para a direita, seja para a esquerda.

Para traçar o gráfico normal dos valores dos contrastes, o primeiro passo é colocar os valores dos contrastes em ordem crescente. Assim, o primeiro elemento será o menor de todos e o último será o maior. Cada um desses elementos deve representar uma porção equivalente à área total da distribuição de probabilidade cumulativa. Calculando o ponto central

de cada região de probabilidade cumulativa dos valores dos contrastes, pode-se determinar através de tabelas existentes a que valor na distribuição normal padronizada (Z) corresponde esse ponto central (BARROS NETO et al., 2001).

As Tabelas 11, 12 e 13 apresentam os efeitos obtidos para a área bruta, líquida e FWHM, respectivamente, do fotopico de 32 keV dos raios X do ^{137}Cs , utilizando o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa.

Tabela 11 – Correspondência entre os efeitos calculados para a área bruta do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa.

| Contraste | Efeito (contagens) | Região de probabilidade cumulativa (%) | Ponto central | Valor de Z |
|-----------|--------------------|--|---------------|------------|
| 12 | -159 | 0 – 14,3 | 7,14 | -1,465 |
| 123 | -124 | 14,3 – 28,6 | 21,43 | -0,792 |
| 1 | -29 | 28,6 – 42,9 | 35,71 | -0,366 |
| 23 | 33 | 42,9 – 57,2 | 50,00 | 0,000 |
| 13 | 79 | 57,2 – 71,5 | 64,28 | 0,366 |
| 2 | 142 | 71,5 – 85,8 | 78,57 | 0,792 |
| 3 | 277 | 85,8 – 100 | 92,85 | 1,465 |

Tabela 12 – Correspondência entre os efeitos calculados para a área líquida do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa.

| Contraste | Efeito (contagens) | Região de probabilidade cumulativa (%) | Ponto central | Valor de Z |
|-----------|--------------------|--|---------------|------------|
| 12 | -109 | 0 – 14,3 | 7,14 | -1,465 |
| 123 | -102 | 14,3 – 28,6 | 21,43 | -0,792 |
| 23 | 43 | 28,6 – 42,9 | 35,71 | -0,366 |
| 13 | 91 | 42,9 – 57,2 | 50,00 | 0,000 |
| 2 | 189 | 57,2 – 71,5 | 64,28 | 0,366 |
| 1 | 363 | 71,5 – 85,8 | 78,57 | 0,792 |
| 3 | 397 | 85,8 – 100 | 92,85 | 1,465 |

Tabela 13 – Correspondência entre os efeitos calculados para o FWHM do fotopico de 32 keV com o detector de CdTe e os valores de probabilidade cumulativa.

| Contraste | Efeito (keV) | Região de probabilidade cumulativa (%) | Ponto central | Valor de Z |
|-----------|--------------|--|---------------|------------|
| 123 | -0,025 | 0 – 14,3 | 7,14 | -1,465 |
| 23 | 0,011 | 14,3 – 28,6 | 21,43 | -0,792 |
| 12 | 0,014 | 28,6 – 42,9 | 35,71 | -0,366 |
| 2 | 0,018 | 42,9 – 57,2 | 50,00 | 0,000 |
| 3 | 0,026 | 57,2 – 71,5 | 64,28 | 0,366 |
| 1 | 0,028 | 71,5 – 85,8 | 78,57 | 0,792 |
| 13 | 0,077 | 85,8 – 100 | 92,85 | 1,465 |

Com os dados das tabelas, pode-se montar o gráfico normal dos efeitos, com a abscissa correspondendo aos valores dos efeitos e a ordenada correspondendo aos valores de Z. A Figura 41 apresenta o gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área bruta do fotopico de 32 keV do ^{137}Cs . Pode-se observar que o efeito do parâmetro temperatura do cristal (3) é o mais significativo, tendo o valor do seu efeito aproximadamente duas vezes maior que o efeito RTD (2) e os efeitos secundários (12) e terciário (123).

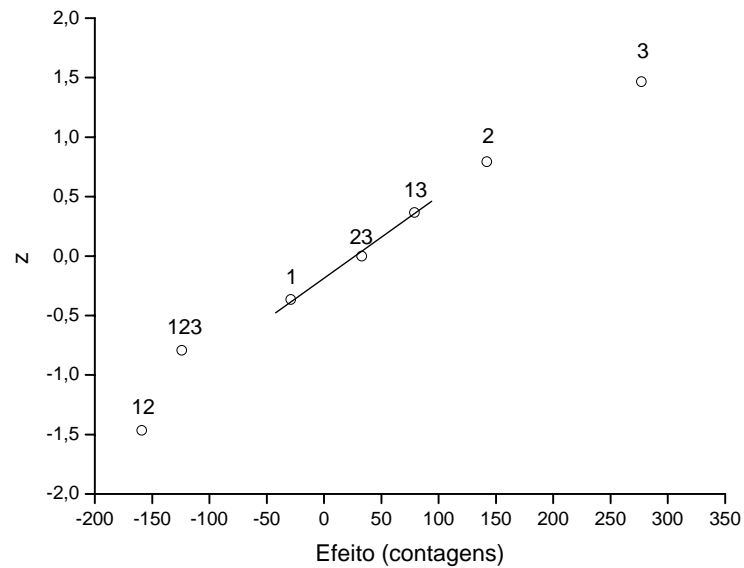


Figura 41 – Gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área bruta do fotopico de ^{137}Cs .

A Figura 42 apresenta o gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área líquida do fotopico de 32 keV do ^{137}Cs . Para a área líquida podemos observar que o efeito do parâmetro temperatura do cristal (3) é mais uma vez significativo, seguido do shaping time (1), tendo seus valores dos seus efeitos aproximadamente duas vezes maior que os efeitos do RTD (2) que também pode ser considerado significativo.

A Figura 43 apresenta o gráfico da distribuição normal dos efeitos para o FWHM do fotopico de 32 keV do ^{137}Cs . Para o FWHM podemos observar que os efeitos mais significativos são efeitos de segunda e terceira ordem. Sendo o efeito de segunda ordem aproximadamente três vezes maior que os efeitos de terceira ordem (123). Porém, devido aos desvios apresentados na Tabela 10, apenas o efeito de interação 13 pode ser considerado significativo, aumentando o valor de FWHM, conseqüentemente uma piora na resolução do detector.

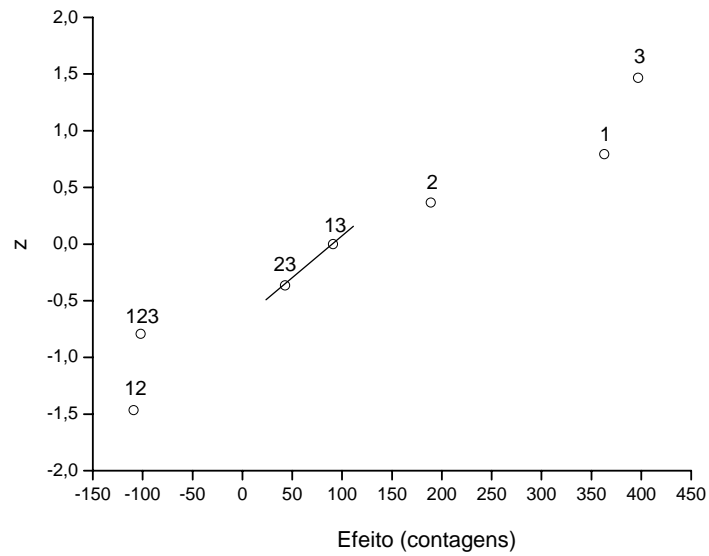


Figura 42 – Gráfico da distribuição normal dos efeitos para a área líquida do fotopico de ^{137}Cs .

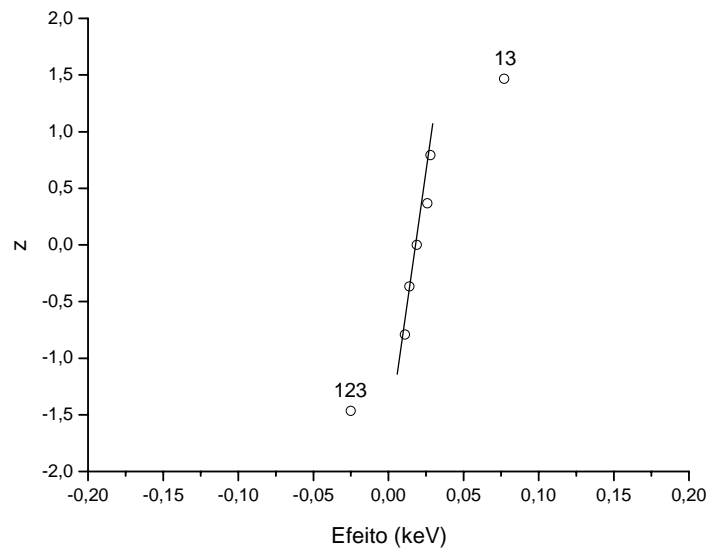


Figura 43 – Gráfico da distribuição normal dos efeitos para o FWHM do fotopico de ^{137}Cs .

As Figuras 44, 45 e 46 nos ajudam a visualizar todos os resultados das medidas, com 95 % de confiança. Na Figura 44 podemos observar que para um aumento na área bruta do fotopico, o detector de CdTe deve estar a uma temperatura de $-22\text{ }^{\circ}\text{C}$, Shaping time de $1,5\text{ }\mu\text{s}$ e RTD com valor 10.

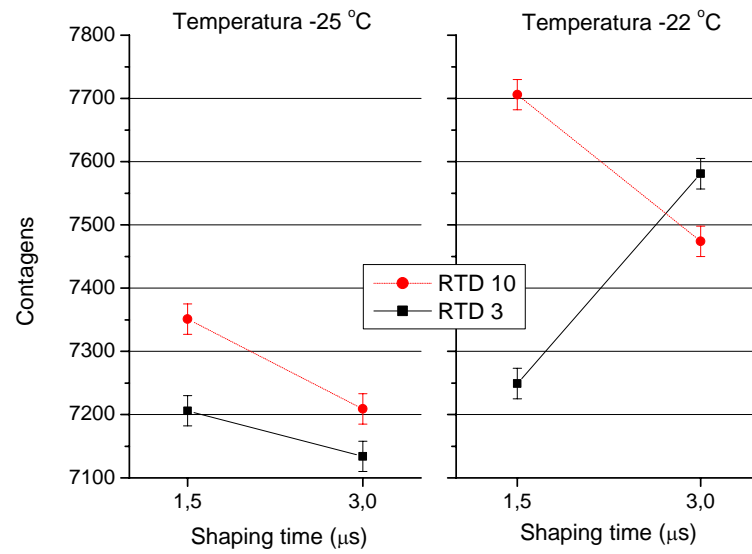


Figura 44 – Variação da área bruta do fotopico com os níveis dos três fatores.

Na Figura 45 podemos observar que para um aumento na área líquida do fotopico, o detector de CdTe também deve estar a uma temperatura de -22 °C e Shaping time de $3\text{ }\mu\text{s}$, já para o valor de RTD, ambos os níveis apresentaram os mesmos valores, com 95 % de confiança.

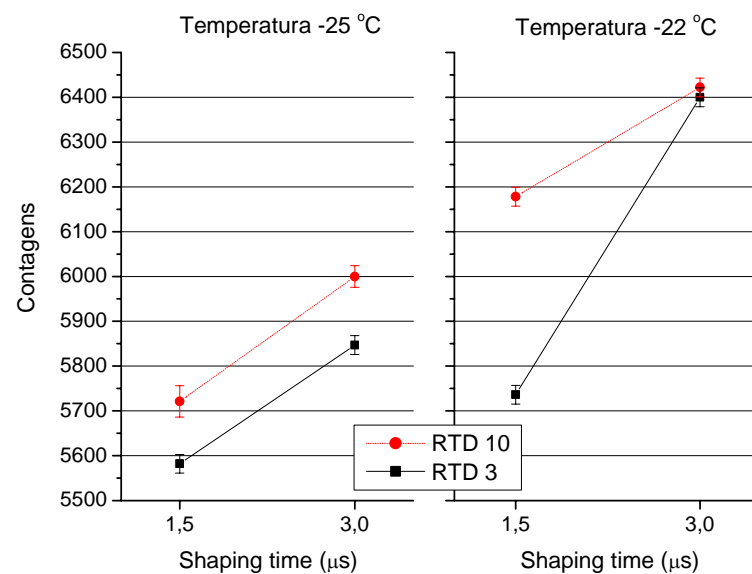


Figura 45 - Variação da área líquida do fotopico com os níveis dos três fatores.

Na Figura 46 podemos observar que para uma melhora no valor da resolução em energia (FWHM), ou seja, uma diminuição no seu valor, o detector de CdTe pode ser operado em ambos os níveis de temperatura, porém para a temperatura de $-25\text{ }^{\circ}\text{C}$ o shaping time deve ser de $3\text{ }\mu\text{s}$ e para a temperatura de $-22\text{ }^{\circ}\text{C}$ deve ser de $1,5\text{ }\mu\text{s}$, e para ambos os níveis de temperatura o RTD deve ser 3.

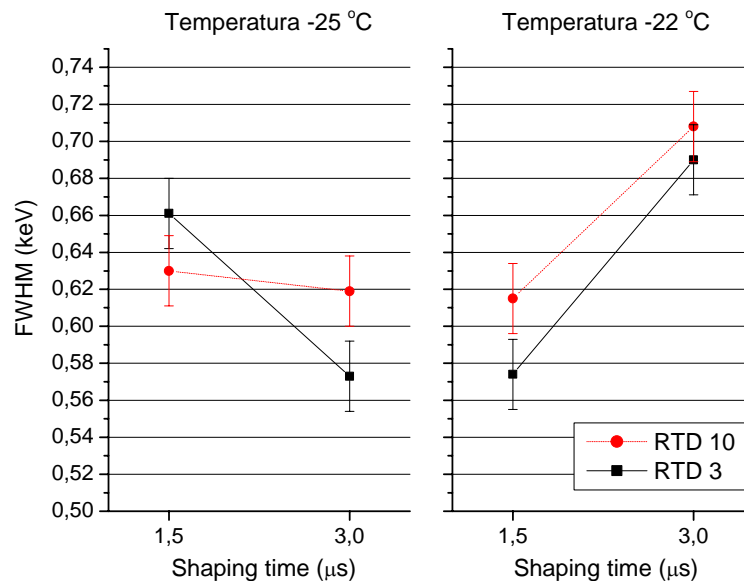


Figura 46 - Variação do valor de FWHM do fotopico com os níveis dos três fatores.

Com base nestes resultados, os valores utilizados no detector de CdTe para a realização das medidas no decorrer do trabalho foram, temperatura $-22\text{ }^{\circ}\text{C}$, Shaping time $3\text{ }\mu\text{s}$ e RTD 3. Apesar do gráfico da Figura 44 mostrar que o melhor shaping time para aumentar o valor da área bruta seria $1,5\text{ }\mu\text{s}$ e RTD 10, a Figura 45 mostra que o melhor shaping time para aumentar a área líquida, que é o que mais interessa na realidade, é de $3\text{ }\mu\text{s}$.

5.1.2 Espectros de Energia

O presente trabalho analisou a aplicabilidade do detector de CdTe em situações de campo, onde o principal objetivo foi verificar as possibilidades que o detector poderia fornecer na aquisição de dados referentes aos radionuclídeos ^{137}Cs e ^7Be .

Para que as medidas oferecessem um bom resultado, no qual pudéssemos identificar os radionuclídeos encontrados no espectro devido a sua linha de energia, foram realizadas medidas com fontes padrão de ^{152}Eu , ^{241}Am e ^{137}Cs para que fosse realizada a calibração em energia do detector de CdTe. A Figura 47 apresenta o gráfico da calibração em energia para o detector de CdTe com o ganho 01, onde as fontes de ^{152}Eu , e ^{137}Cs foram colocadas a uma distância de 1 m do detector. A Figura 48 apresenta o gráfico da calibração em energia para o detector de CdTe com o ganho 14, onde as fontes de ^{241}Am e ^{137}Cs foram colocadas a 4,15 cm do detector.

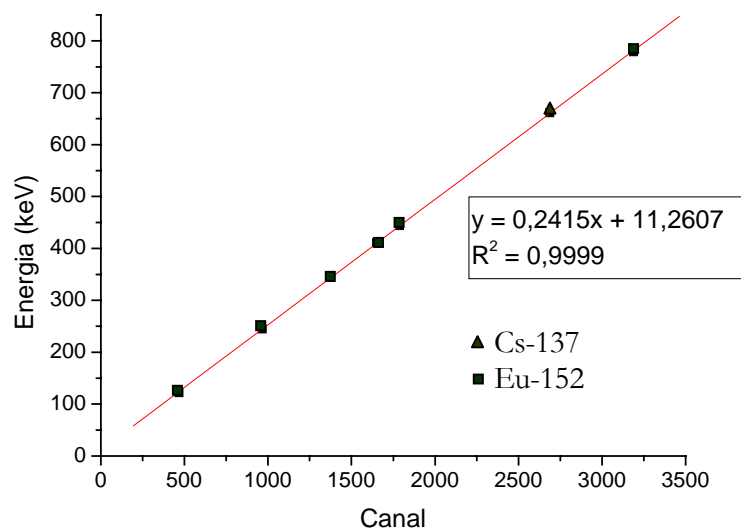


Figura 47 – Gráfico da calibração em energia do detector de CdTe para o ganho 01 com as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs .

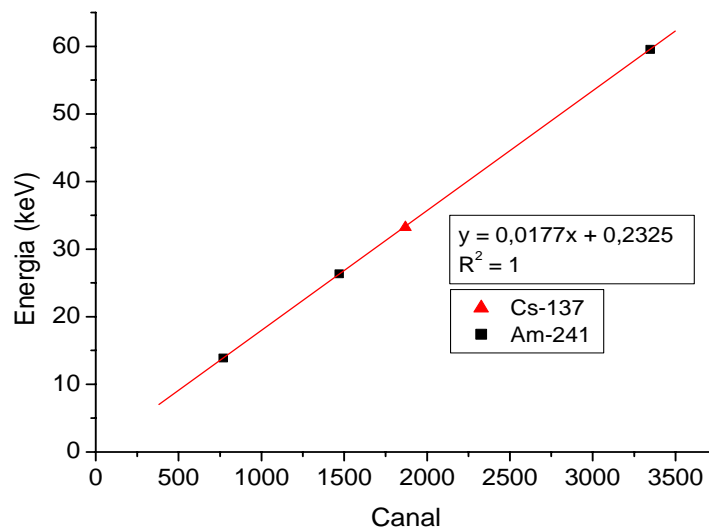


Figura 48 – Gráfico da calibração em energia do detector de CdTe para o ganho 14 com as fontes de ^{241}Am e ^{137}Cs .

Pode-se perceber claramente que o detector de CdTe apresenta uma excelente linearidade no que diz respeito ao seu espectro de calibração em energia, de fato isto foi observado em todos os espectros obtidos com o detector, apresentando uma ótima identificação das linhas de energia.

A Figura 49a apresenta o espectro da fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs juntas, usado na calibração do detector de CdTe, com atividade de 577,1 kBq e 505,1 kBq, respectivamente, a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas. No detalhe da Figura 49b, pode-se observar a região de 1500 a 3500 canais ampliado.

A Figura 50a apresenta o espectro das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs juntas, com atividade de 577,1 kBq e 505,1 kBq, respectivamente, a uma distância de 1 m do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas. Na Figura 50b pode ser observada a região de 2000 a 3500 canais ampliada, destacando o pico do ^{137}Cs .

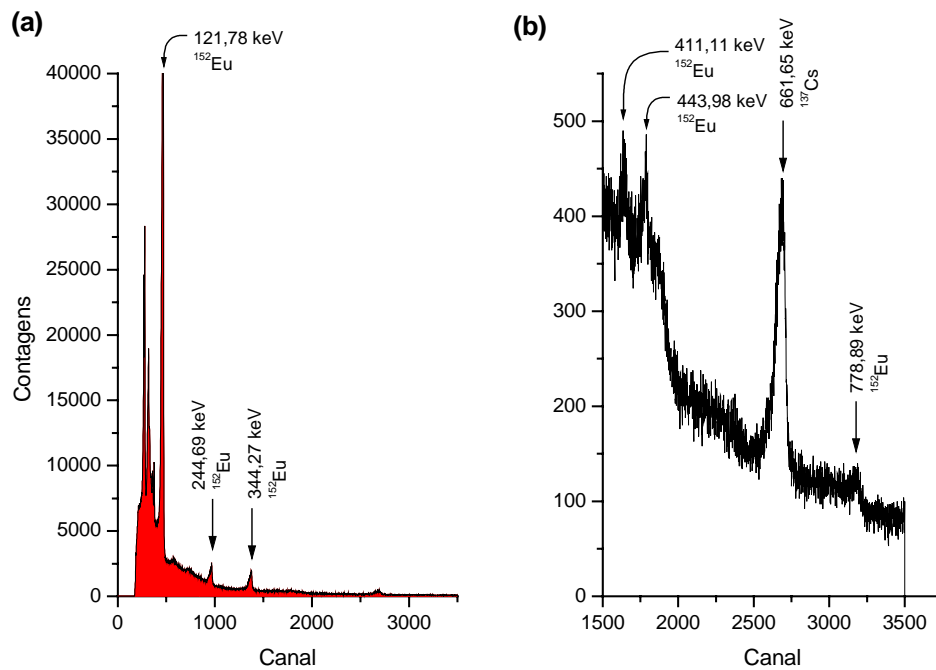


Figura 49 – (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas; (b) região de 1500 a 3500 canais do espectro ampliado.

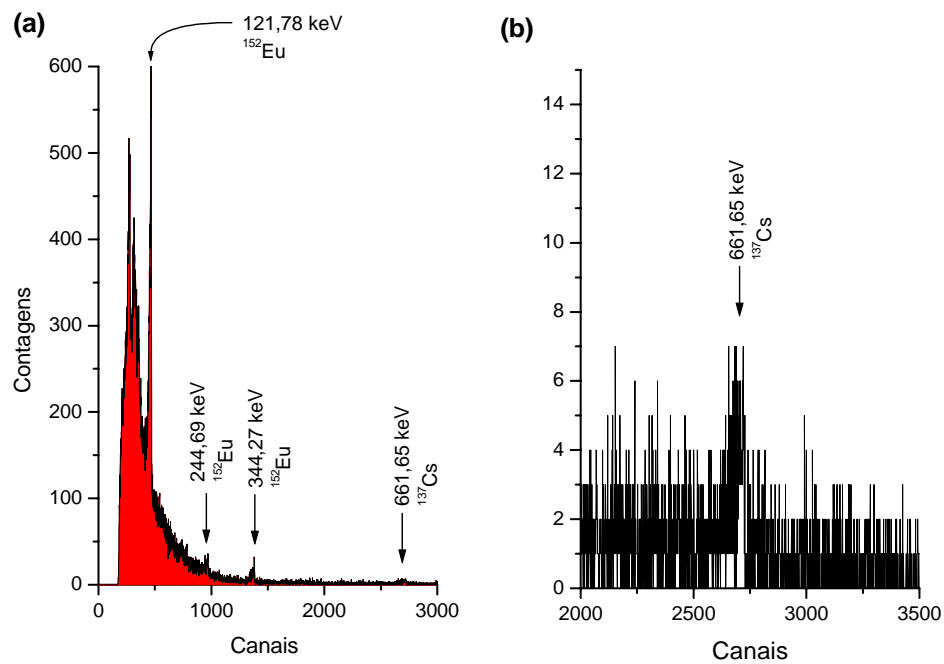


Figura 50 – (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 1 m do detector, com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas; (b) região de 2000 a 3500 canais do espectro ampliado.

A Figura 51 apresenta o espectro da fonte de ^{241}Am usado na calibração do detector de CdTe, com atividade de 348,1 kBq, a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 25 minutos.

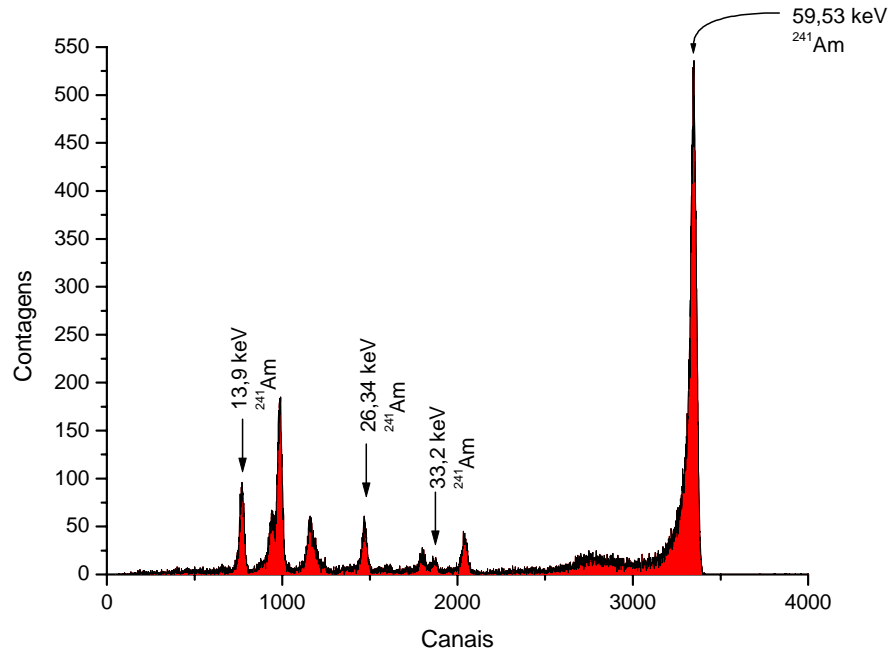


Figura 51 – Espectro da fonte de ^{241}Am a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 25 minutos.

A Figura 52 apresenta o espectro da fonte de ^{137}Cs , com atividade de 505,1 kBq, a uma distância de 4,15 cm do detector com o ganho 14. Podemos observar os picos de 32 keV e 36,4 keV dos raios X do ^{137}Cs . Este espectro mostra claramente que a resolução em energia do detector de CdTe para o pico de 32 keV é de aproximadamente 2 %, conseguindo resolver os dois picos com muita clareza.

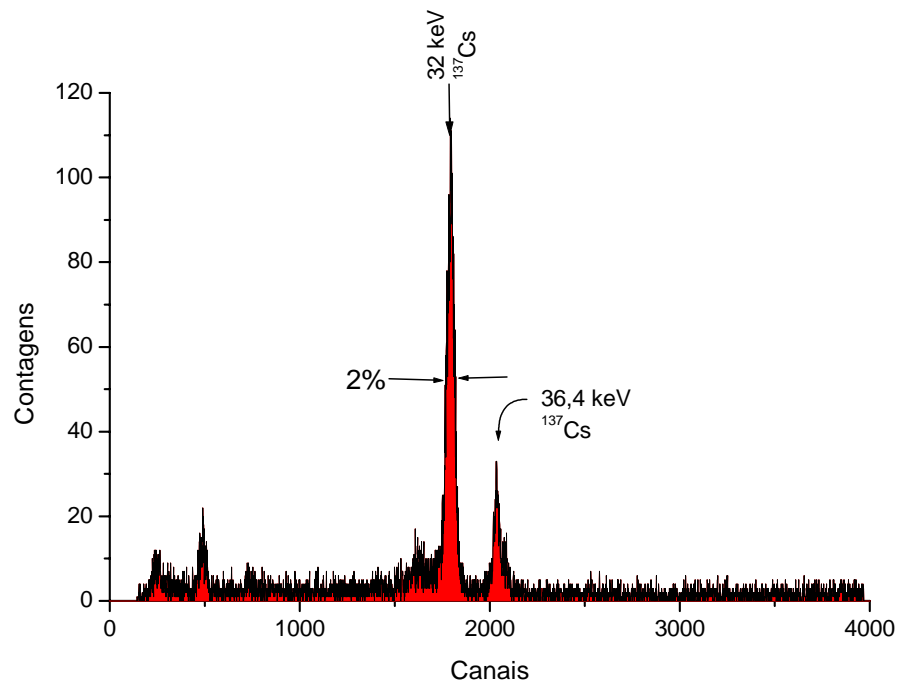


Figura 52 – Espectro da fonte de ^{137}Cs a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 15 minutos.

A Figura 53 apresenta o espectro da amostra de solo F0, com atividade de 2,7 $\text{kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$, a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias).

A Figura 54 apresenta o espectro da amostra de solo F10, com atividade de 0,166 $\text{kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$, a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 216 horas (9 dias). Pode-se perceber claramente que o detector de CdTe não é capaz de apresentar um espectro de qualidade para a amostra de solo F10, não sendo possível identificar o pico de ^{137}Cs no espectro. Na Figura 55 pode-se observar o espectro de fundo da sala de preparo de amostras do Laboratório de Física Nuclear Aplicada da Universidade Estadual de Londrina, obtido com o detector de CdTe e ganho 14, o tempo de medida foi de 72,5 horas (~ 3 dias).

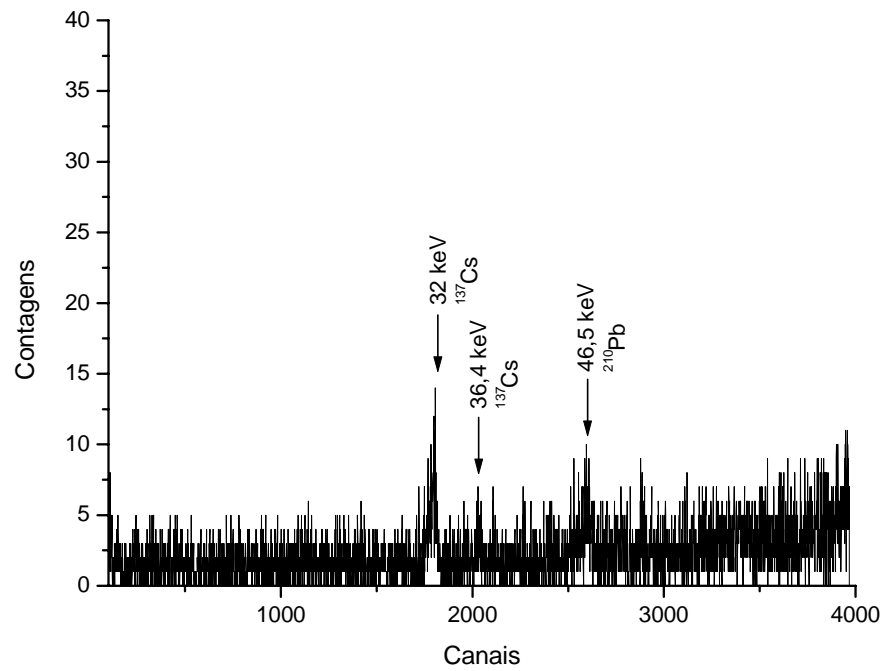


Figura 53 – Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias).

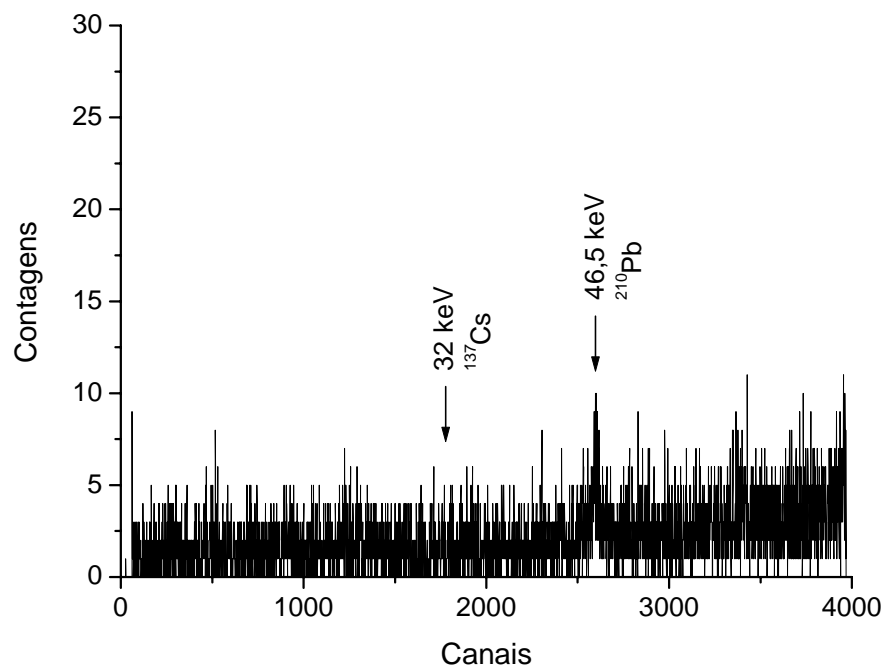


Figura 54 – Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 4,15 cm do detector, com o ganho 14 e tempo de medida de 216 horas (9 dias).

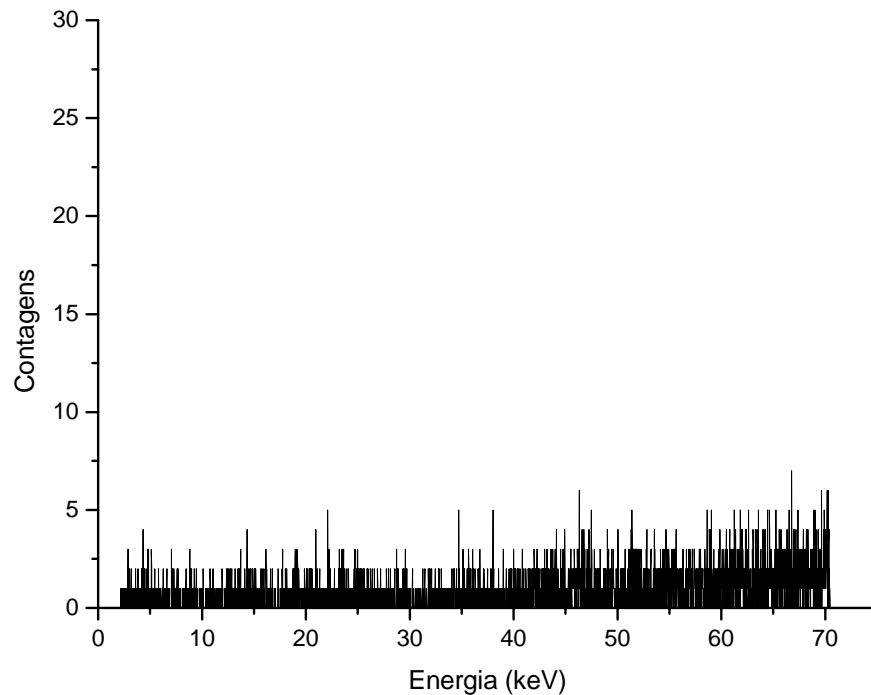


Figura 55 – Espectro de fundo com o detector de CdTe com o ganho 14 e tempo de medida de 72,5 horas (~ 3 dias).

5.1.3 Curva de Eficiência

A curva de eficiência do detector de CdTe foi obtida através das equações descritas no item 4.3.3, com fontes padrão tipo pastilha de ^{241}Am com atividade de 348,1 kBq, ^{133}Ba com atividade de 347,7 kBq, ^{137}Cs com atividade de 505,1 kBq, ^{152}Eu com atividade de 577,1 kBq e amostras de solo F0 e F10, ambas contaminadas com ^{137}Cs com atividade de 2,7 kBq.kg⁻¹ e 0,166 kBq.kg⁻¹, respectivamente. A Figura 56 apresenta a curva de eficiência para o detector de CdTe a uma distância de 1 metro das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs , com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas. Na Tabela 14 pode-se observar mais claramente os valores da eficiência para as energias selecionadas no espectro.

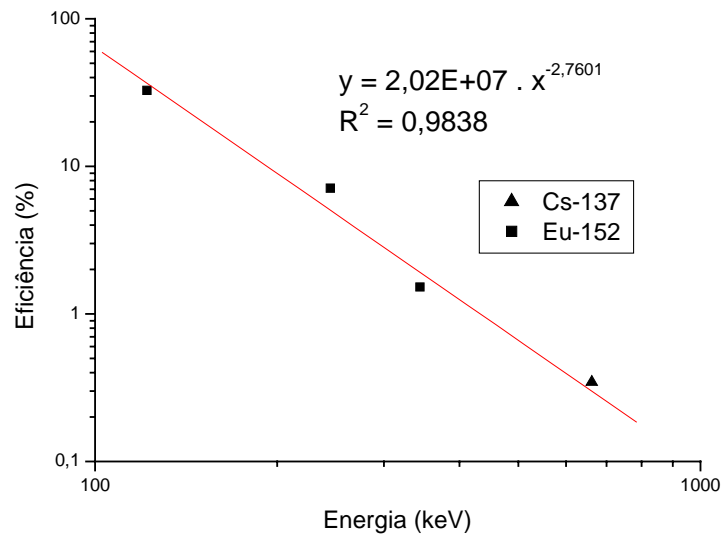


Figura 56 – Curva da Eficiência do detector de CdTe 1 metro da fonte com o ganho 01 e tempo de medida de 76 horas.

Tabela 14 – Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 1 m do detector.

| Fonte | Energia (keV) | ϵ (E) % |
|--------------|----------------------|------------------------------------|
| Eu-152 | 121,78 | 32,708 |
| Eu-152 | 244,69 | 7,096 |
| Eu-152 | 344,27 | 1,522 |
| Cs-137 | 661,65 | 0,345 |

A Figura 57 apresenta a curva de eficiência para o detector de CdTe a uma distância de 4,15 cm das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs , com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas. Na Tabela 15 são apresentados os valores da eficiência para as linhas de energia selecionadas no espectro.

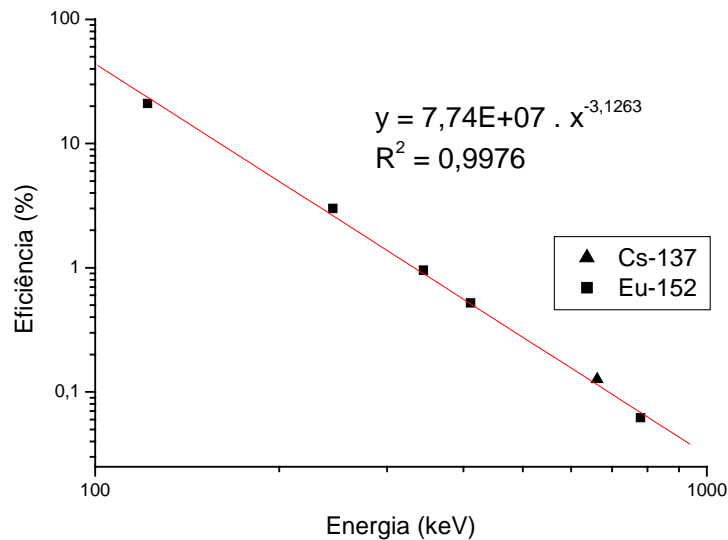


Figura 57 - Curva da Eficiência do detector de CdTe 4,15 cm da fonte com o ganho 01 e tempo de medida de 24 horas.

Tabela 15 – Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 4,15 cm do detector.

| Fonte | Energia (keV) | ϵ (E) % |
|--------------|----------------------|------------------------------------|
| Eu-152 | 121,78 | 20,997 |
| Eu-152 | 244,69 | 3,000 |
| Eu-152 | 344,27 | 0,954 |
| Eu-152 | 411,11 | 0,521 |
| Cs-137 | 661,65 | 0,126 |
| Eu-152 | 778,89 | 0,062 |

A Figura 58 apresenta a curva de eficiência para o detector de CdTe a uma distância de 4,15 cm das fontes de ^{241}Am , ^{152}Eu e ^{137}Cs , com o ganho 14 e tempo de medida de 15 minutos. Na Tabela 16 são apresentados os valores da eficiência para as linhas de energia selecionadas no espectro.

Como pôde ser observado na Figura 33, a eficiência do detector de CdTe para a faixa de energia de 10 a 50 keV, segundo a Amptek, é de 100 %, ou seja, não varia. Em nossas medidas também pode-se constatar que nesta faixa de energia a eficiência variou muito pouco, obtendo uma média de aproximadamente 40 %, como pode ser observado na Figura 58 e na Tabela 16.

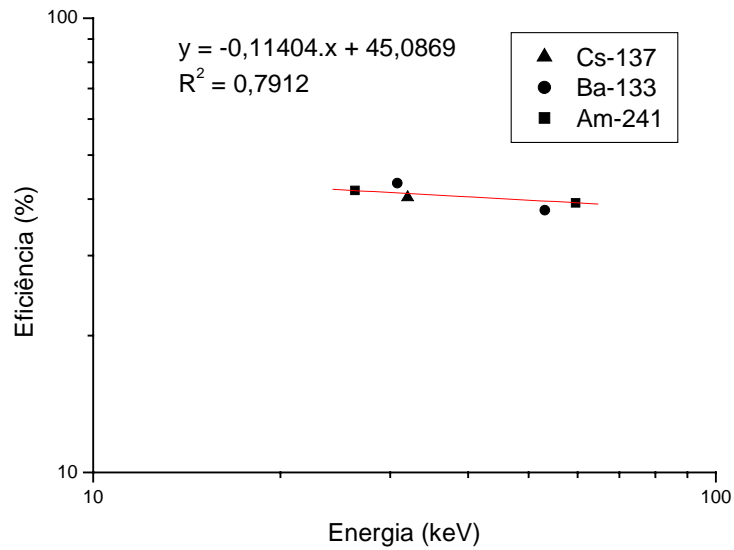


Figura 58 - Curva da Eficiência do detector de CdTe 4,15 cm da fonte com o ganho 14 e tempo de medida de 15 minutos.

Tabela 16 - Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{241}Am , ^{133}Ba e ^{137}Cs a 4,15 cm do detector.

| Fonte | Energia (keV) | ϵ (E) % |
|--------|---------------|------------------|
| Am-241 | 26,34 | 41,742 |
| Ba-133 | 30,8 | 43,336 |
| Cs-137 | 32 | 40,293 |
| Ba-133 | 53,15 | 37,807 |
| Am-241 | 59,53 | 39,241 |

A Figura 59 apresenta o espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 4,15 cm do detector de CdTe com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias), o qual foi usado para o cálculo da eficiência do detector. Para esta geometria, a eficiência encontrada foi de 7,86 % para a linha de 32 keV dos raios X do ^{137}Cs .

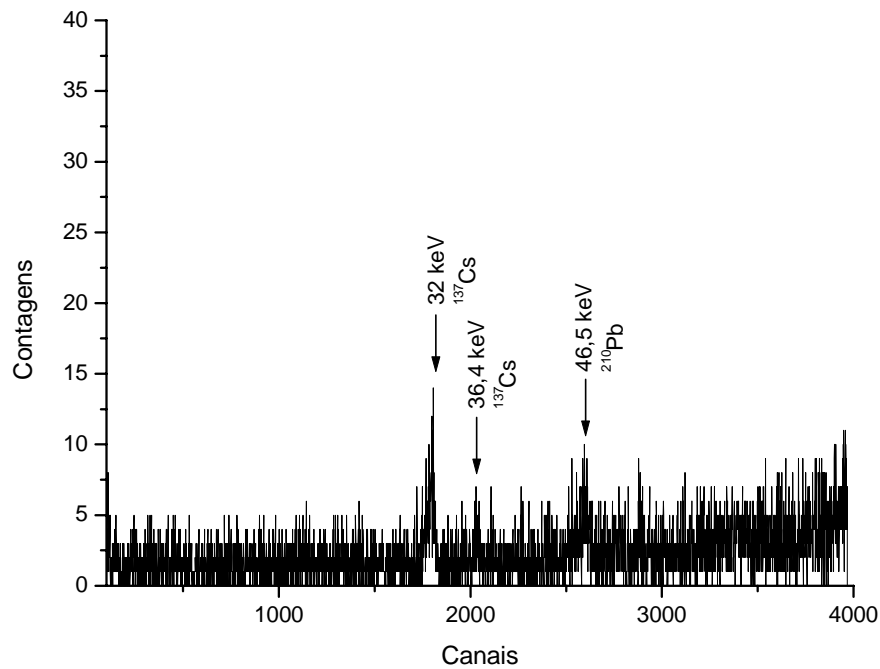


Figura 59 – Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 4,15 cm do detector de CdTe com o ganho 14 e tempo de medida de 168 horas (7 dias).

Já para as medidas de ^7Be , o detector não se mostrou capaz de detectar o radionuclídeo no solo, devido ao seu baixo nível de atividade, aproximadamente 30 Bq.kg^{-1} (BLAKE et al., 1999), entretanto, calculamos a eficiência para a linha de energia de 477,61 keV, através de uma interpolação com a equação do gráfico das Figuras 56 e 57, obtendo uma eficiência de 0,814 % e 0,326 %, respectivamente para distâncias de 1 m e 4,15 cm. A Figura 60 apresenta o espectro da amostra de solo contendo ^7Be , retirado das imediações do departamento de física da Universidade Estadual de Londrina, após um período de 3 dias de chuva.

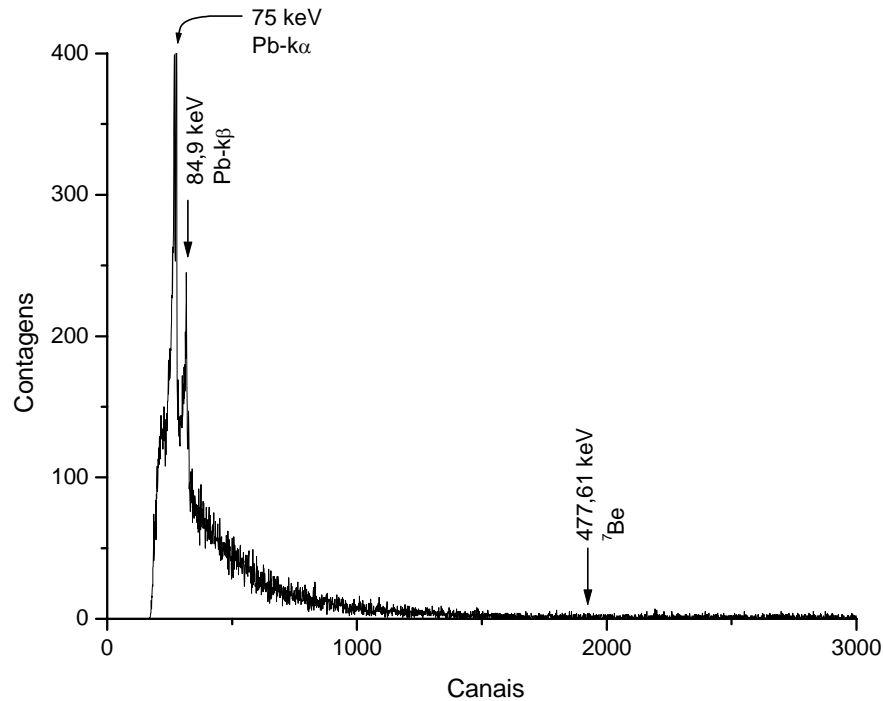


Figura 60 – Espectro da amostra de solo contendo ${}^7\text{Be}$ a uma distância de 4,15 cm do detector de CdTe com o ganho 01 e tempo de medida de 431 horas (18 dias).

5.1.4 Limite Mínimo de Detecção

Para determinar o limite mínimo de detecção e conseqüentemente a atividade mínima detectável, foram realizadas medidas com as três fontes padrão de ${}^{137}\text{Cs}$ e amostras de solo contaminadas com ${}^{137}\text{Cs}$ descritas na Tabela 6.

A Tabela 17 apresenta os valores da atividade mínima detectável (AMD) para fontes padrão e amostras de solo, localizadas a 4,15 cm e 1 m de distância do detector, bem como, atividade, tempo de medida e energia analisada para cada medida.

Tabela 17 – Atividade mínima detectável para o detector de CdTe com diferentes configurações de fontes e geometrias.

| Fonte/Amostra | Atividade * | Geometria | Tempo de medida | Energia (keV) | AMD |
|------------------|--------------------------|-----------|-----------------|---------------|--------------------------|
| Cs-137/pastilha | 171,3 kBq | 4,15 cm | 900 s | 32 | 6737 Bq |
| Cs-137/pastilha | 223,3 kBq | 4,15 cm | 900 s | 32 | 7413 Bq |
| Cs-137/pastilha | 505,1 kBq | 4,15 cm | 900 s | 32 | 15088 Bq |
| Cs-137/pastilha | 505,1 kBq | 4,15 cm | 22 h | 661,65 | 5884 Bq |
| Cs-137/pastilha | 505,1 kBq | 1 m | 76 h (~ 3,1 d) | 661,65 | 67708 Bq |
| Cs-137/F0 - solo | 2,7 kBq.kg ⁻¹ | 4,15 cm | 72 h (3 d) | 32 | 693 Bq.kg ⁻¹ |
| Be-7/solo ** | -- | 4,15 cm | 431 h (18 d) | 477,61 | 2867 Bq.kg ⁻¹ |

* Atividade corrigida para 06/12/2004.

** A Atividade Mínima Detectada (AMD) para o solo contendo ⁷Be foi obtida com o uso da eficiência interpolada para este radionuclídeo através da Figura 57 do item 5.1.3.

5.2 PROBE *IN SITU* DE NAI (TL)

O detector de NaI (Tl) é mais conhecido entre os pesquisadores da área de espectrometria de raios gama, conseqüentemente iremos analisá-lo quanto ao seu funcionamento no sistema Rover de espectrometria *in situ*.

5.2.1 Espectros de Energia

Para que as medidas oferecessem um bom resultado, no qual pudéssemos identificar os radionuclídeos encontrados no espectro devido a sua linha de energia, foram realizadas medidas com fontes padrão de ¹⁵²Eu e ¹³⁷Cs para que fosse feito a calibração em energia do detector de NaI (Tl). A Figura 61 apresenta o gráfico da calibração em energia para o detector de NaI (Tl), onde as fontes de ¹⁵²Eu, e ¹³⁷Cs foram colocadas a uma distância de 2,8 cm do detector e um tempo de medida de 1 hora.

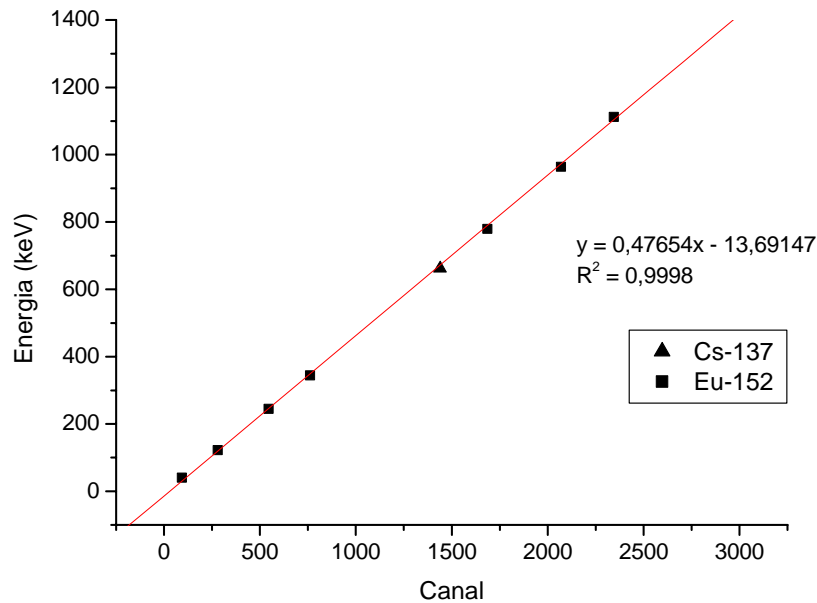


Figura 61 – Gráfico da calibração em energia do detector de NaI (TI) com as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs .

Também podemos perceber claramente que o detector de NaI (TI) apresenta uma excelente linearidade no que diz respeito ao seu espectro de calibração em energia, de fato isto também foi observado em todos os espectros obtidos com o detector, apresentando uma precisa identificação das linhas de energia.

A Figura 62a apresenta o espectro das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs juntas, usado na calibração do detector de NaI (TI), com atividade de 577,1 kBq e 505,1 kBq, respectivamente, a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 1 hora. No detalhe, a Figura 62b apresenta a região de 1700 a 3000 canais ampliada.

A Figura 63 apresenta o espectro da fonte de ^{137}Cs , com atividade de 505,1 kBq, a uma distância de 1 m do detector. Podemos observar que a resolução em energia (FWHM) para a linha de energia de 661,65 keV do ^{137}Cs é de aproximadamente 6 %, cerca de seis vezes maior que o FWHM do detector de CdTe.

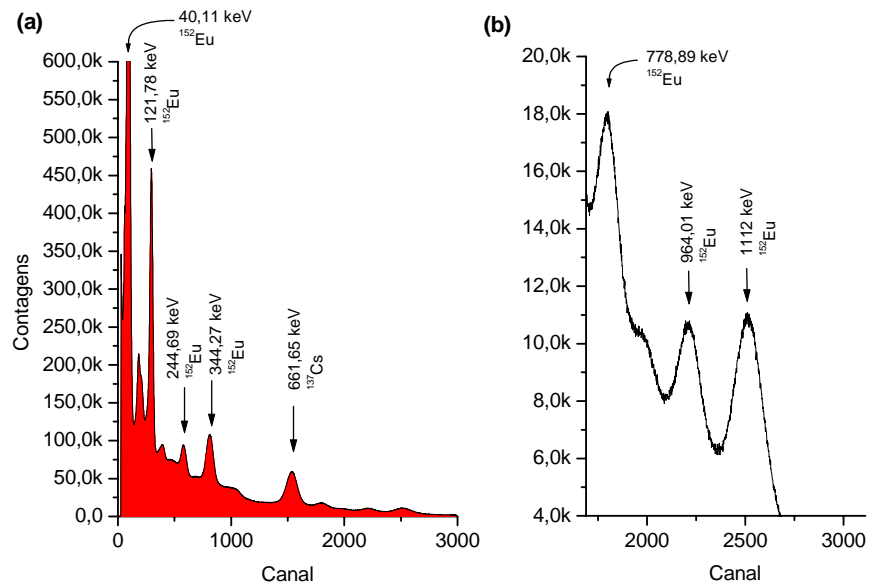


Figura 62 – (a) Espectro das fonte de ^{152}Eu e ^{137}Cs a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 1 hora; (b) região de 1700 a 3000 canais do espectro ampliado.

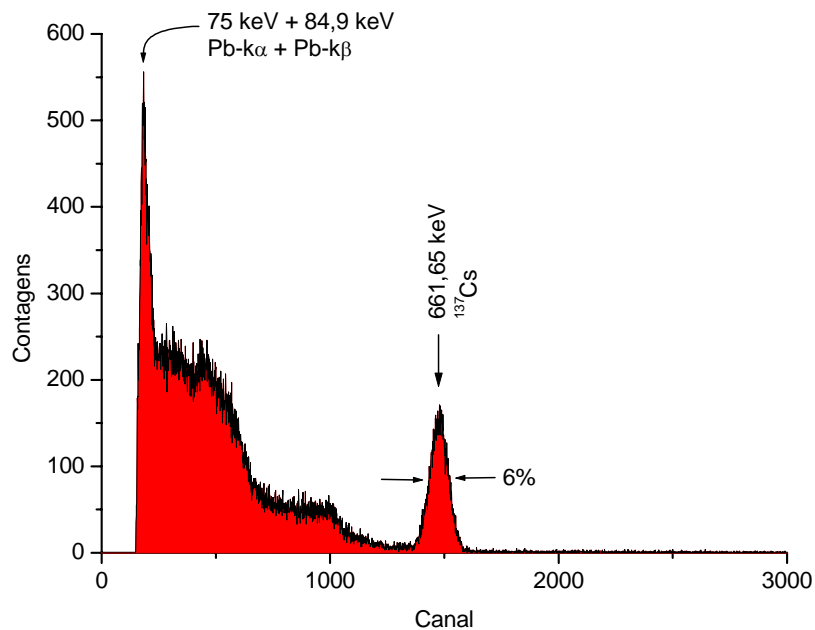


Figura 63 – Espectro da fonte de ^{137}Cs a uma distância de 1m do detector e tempo de medida de 1 hora.

A Figura 64 apresenta o espectro da amostra de solo F0, com atividade de 2,7 kBq.kg⁻¹, a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 46 horas.

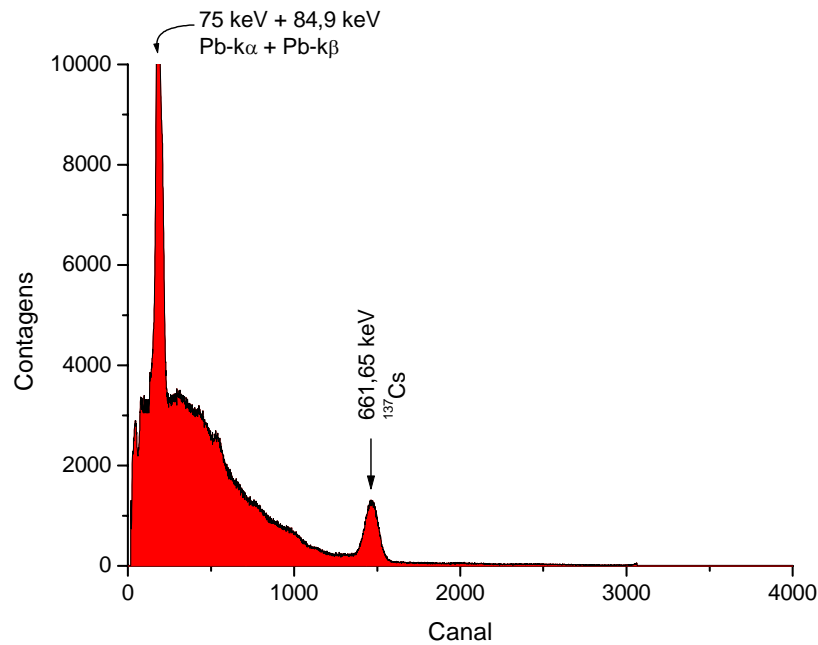


Figura 64 – Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 46 horas.

A Figura 65a apresenta o espectro da amostra de solo F10, com atividade de $0,166 \text{ kBq.kg}^{-1}$, a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 17,5 horas. Na Figura 65b podemos observar a região de 1000 a 2000 canais do espectro ampliado.

A Figura 66a apresenta o espectro da amostra de solo F0, a uma distância de 1 metro do detector, e tempo de medida de 191 horas (~ 8 dias). Na Figura 66b podemos observar a região de 1000 a 2100 canais do espectro ampliado. Provavelmente o detector de NaI (Tl), não foi capaz de identificar o pico de 661,65 keV do ^{137}Cs , pelo fato de que a massa da amostra F0 era de apenas 114,8 gramas.

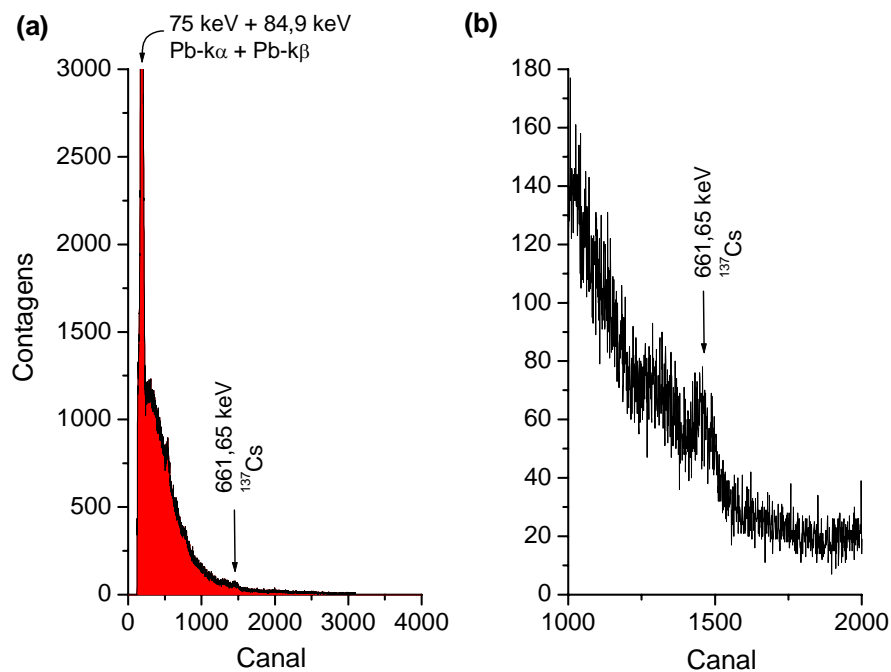


Figura 65 – (a) Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 17,5 horas; (b) região de 1000 a 2000 canais do espectro ampliado.

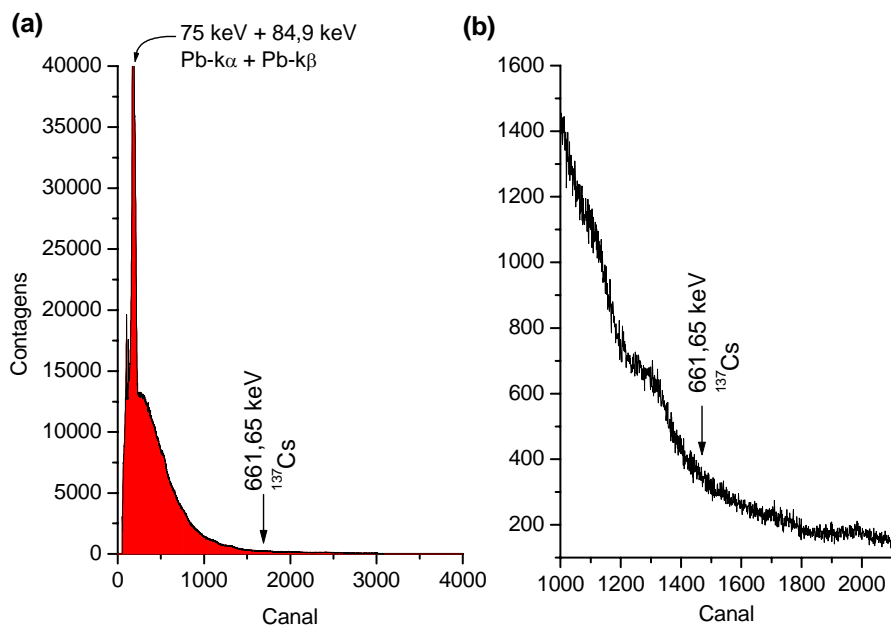


Figura 66 – (a) Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 1m do detector e tempo de medida de 8 dias; (b) região de 1000 a 2100 canais do espectro ampliado.

A Figura 67a apresenta o espectro de fundo da sala de preparo de amostras do Laboratório de Física Nuclear Aplicada da Universidade Estadual de Londrina, com um tempo de medida de 114 horas (~ 4,5 dias). Na Figura 67b podemos observar a região de 1000 a 3000 canais do espectro ampliado. Nota-se que o único pico proeminente, sobre o contínuo dos fótons secundários da radiação cósmica, são as linhas k_{α} e k_{β} do Pb, provenientes da blindagem de Pb do sistema.

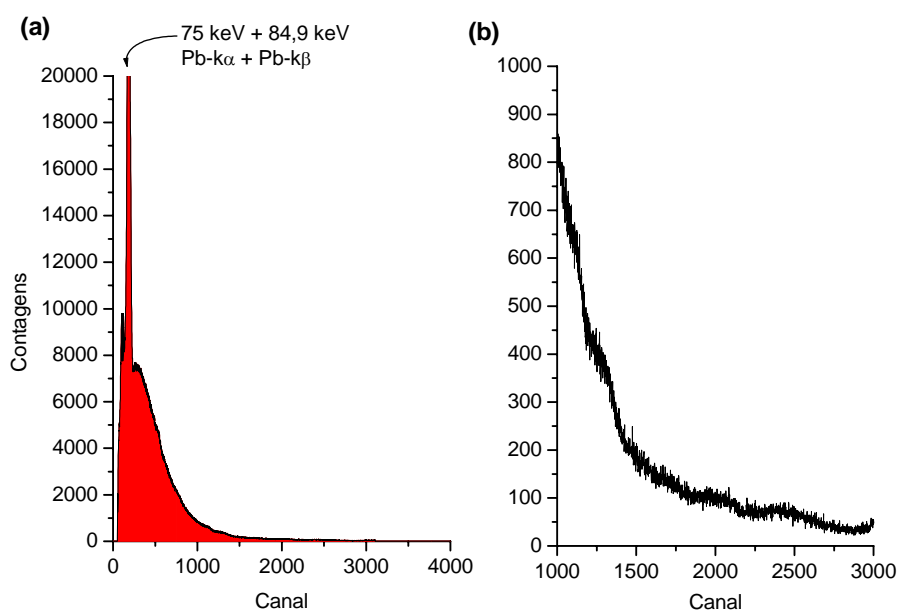


Figura 67 – (a) Espectro de fundo com o detector de NaI (Tl) com um tempo de medida de aproximadamente 4,5 dias; (b) região de 1000 a 3000 canais do espectro ampliado.

5.2.2 Curva de Eficiência

A curva de eficiência do detector de NaI (Tl) foi obtida através das equações descritas no item 4.3.3, com fontes padrão tipo pastilha de ^{137}Cs com atividade de 505,1 kBq, ^{152}Eu com atividade de 577,1 kBq e amostras de solo F0 e F10, ambas contaminadas com ^{137}Cs com atividade de 2,7 kBq.kg $^{-1}$ e 0,166 kBq.kg $^{-1}$, respectivamente. A Figura 68 apresenta a curva de eficiência para o detector de NaI (Tl) a uma distância de 1 metro das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs e tempo de medida de 66 horas. Na Tabela 18 pode-se observar mais claramente os valores da eficiência para as energias selecionadas no espectro.

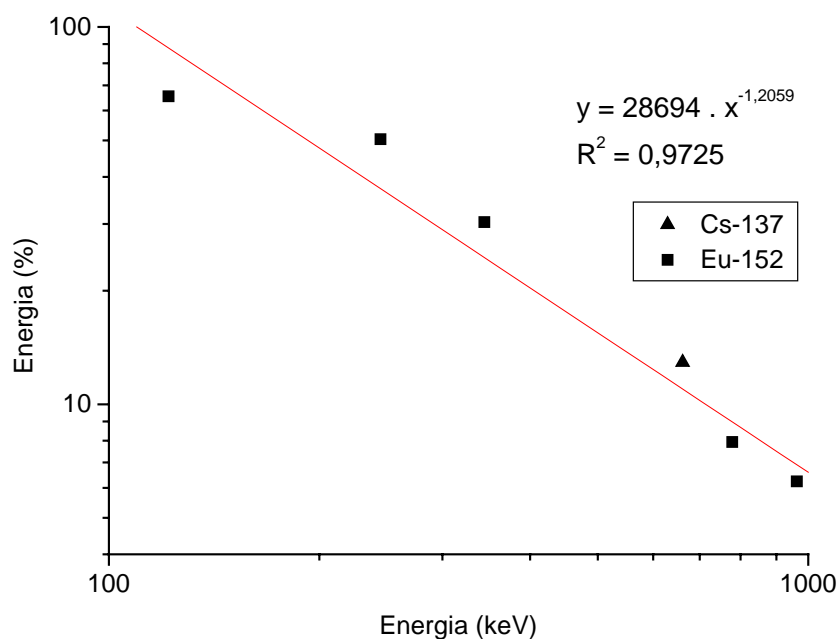


Figura 68 - Curva da Eficiência do detector de NaI 1 m da fonte e tempo de medida de 66 horas.

Tabela 18 – Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 1 m do detector.

| Fonte | Energia (keV) | ϵ (E) % |
|--------------|----------------------|------------------------------------|
| Eu-152 | 121,78 | 65,454 |
| Eu-152 | 244,69 | 50,337 |
| Eu-152 | 344,27 | 30,365 |
| Cs-137 | 661,65 | 12,900 |
| Eu-152 | 778,89 | 7,941 |
| Eu-152 | 963,38 | 6,234 |

A Figura 69 apresenta a curva de eficiência para o detector de NaI (Tl) a uma distância de 2,8 cm das fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs e tempo de medida de 1 hora. Na Tabela 19 são apresentados os valores da eficiência para as linhas de energia selecionadas no espectro.

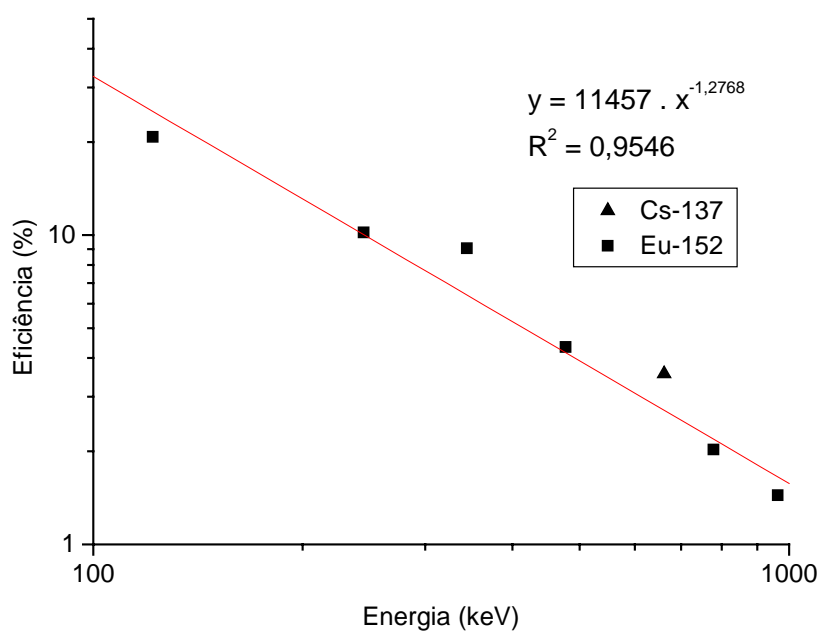


Figura 69 - Curva da Eficiência do detector de NaI 2,8 cm da fonte e tempo de medida de 1 hora.

Tabela 19 – Valores da eficiência em função da energia para as fontes de ^{152}Eu e ^{137}Cs a 2,8 cm do detector.

| Fonte | Energia (keV) | ϵ (E) % |
|--------------|----------------------|------------------------------------|
| Eu-152 | 121,78 | 20,770 |
| Eu-152 | 244,69 | 10,202 |
| Eu-152 | 344,27 | 9,067 |
| Cs-137 | 661,65 | 3,561 |
| Eu-152 | 778,89 | 2,024 |
| Eu-152 | 963,38 | 1,440 |

A eficiência para a linha de energia de 661,65 keV do ^{137}Cs , das amostras de solo F0 e F10, foram calculadas a partir dos espectros apresentados nas Figuras 70 e 71. As amostras estavam a uma distância de 2,8 cm do detector, com tempo de medida de 8 horas e 16 horas, respectivamente. O resultado da eficiência para ambas as amostras é apresentado na Tabela 20.

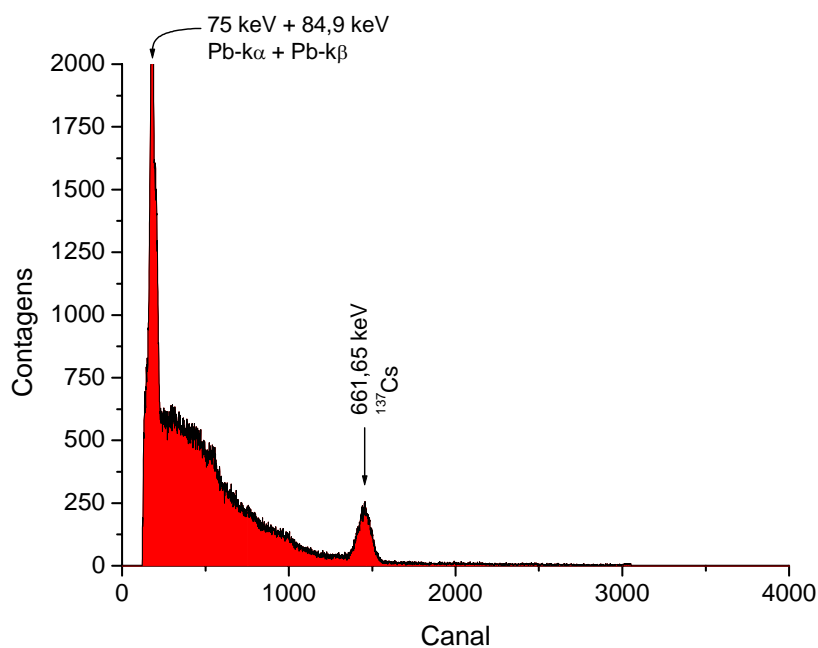


Figura 70 – Espectro da amostra de solo F0 a uma distância de 2,8 cm do detector de NaI (TI) com um tempo de medida de 8 horas.

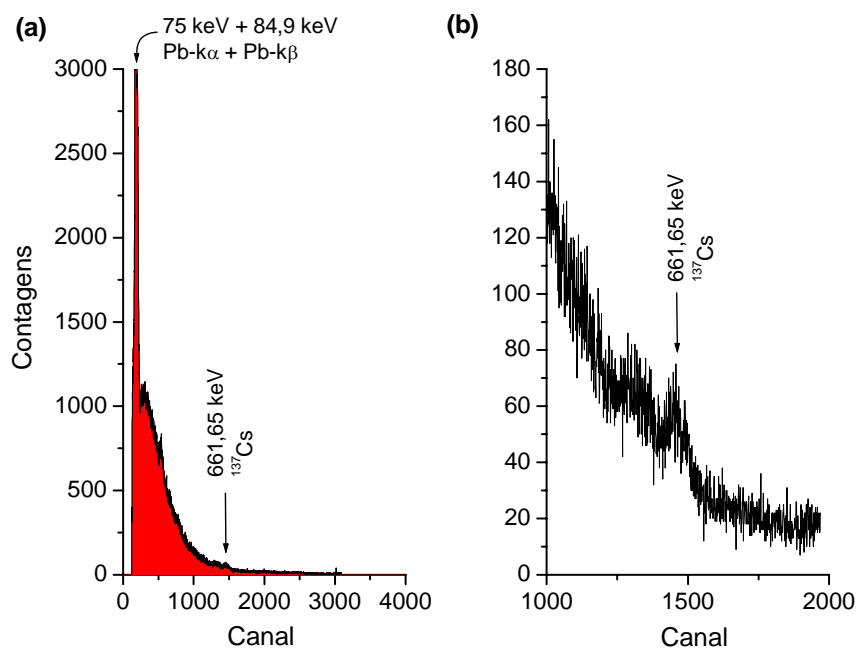


Figura 71 – (a) Espectro da amostra de solo F10 a uma distância de 2,8 cm do detector e tempo de medida de 16 horas; (b) região de 1000 a 2000 canais do espectro ampliado.

Tabela 20 – Valores da eficiência em função da energia para as amostras de solo F0 e F10 contaminadas com ^{137}Cs a 2,8 cm do detector de NaI (TI).

| Fonte/Amostra | Atividade (kBq.kg ⁻¹) | Geometria (cm) | Tempo de medida (h) | Energia (keV) | Eficiência (%) |
|-------------------|-----------------------------------|----------------|---------------------|---------------|----------------|
| Cs-137/F0 - solo | 2,7 | 2,8 | 8 | 661,65 | 2,61 |
| Cs-137/F10 - solo | 0,166 | 2,8 | 16 | 661,65 | 0,79 |

Para a medida de ^7Be , o detector não se mostrou capaz de detectar o radionuclídeo no solo, mais uma vez devido ao seu baixo nível de atividade, entretanto, calculamos a eficiência para a linha de energia de 477,61 keV, através de uma interpolação com a equação do gráfico das Figuras 68 e 69, obtendo uma eficiência de 16,86 % e 4,35 %, respectivamente para distâncias de 1 m e 2,8 cm. A Figura 60 apresenta o espectro da amostra de solo contendo ^7Be , retirado das imediações do departamento de física da Universidade Estadual de Londrina, após um período de 3 dias de chuva.

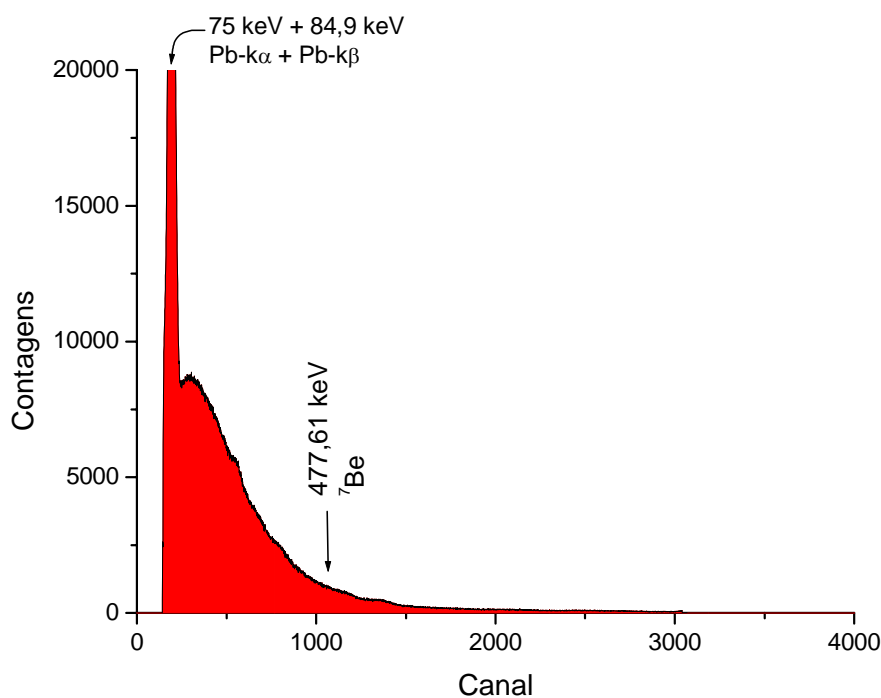


Figura 72 – Espectro da amostra de solo contendo ^7Be a uma distância de 2,8 cm do detector de NaI (TI) com o tempo de medida de 138 horas (~ 5,5 dias).

5.2.3 Limite Mínimo de Detecção

Para determinar o limite mínimo de detecção e conseqüentemente a atividade mínima detectável, foram realizadas medidas com as três fontes padrão de ^{137}Cs e amostras de solo contaminadas com ^{137}Cs descritas na Tabela 6.

A Tabela 21 apresenta os valores da atividade mínima detectável (AMD) para as fontes padrão e amostras de solo, localizadas a 2,8 cm e 1 m de distância do detector, bem como, atividade, tempo de medida e energia analisada para cada medida. Como a atividade das pastilhas é diferente, pode ser observado na tabela que a AMD é diretamente proporcional a atividade da amostra, sendo que, quanto maior for a atividade, maior será o fundo Compton, e, sendo o fundo do espectro usado no cálculo do limite mínimo de detecção, conseqüentemente aumentará a AMD.

Tabela 21 – Atividade mínima detectável para o detector de NaI (TI) com diferentes configurações de fontes e geometrias.

| Fonte/Amostra | Atividade * | Geometria | Tempo de medida | Energia (keV) | AMD |
|-------------------|----------------------------|-----------|-----------------|---------------|------------------------|
| Cs-137/pastilha | 171,3 kBq | 1 m | 900 s | 661,65 | 7809 Bq |
| Cs-137/pastilha | 223,3 kBq | 1 m | 900 s | 661,65 | 10150 Bq |
| Cs-137/pastilha | 505,1 kBq | 1 m | 900 s | 661,65 | 17563 Bq |
| Cs-137/F0 - solo | 2,7 kBq.kg ⁻¹ | 2,8 cm | 8 h | 661,65 | 63 Bq.kg ⁻¹ |
| Cs-137/F10 - solo | 0,166 kBq.kg ⁻¹ | 2,8 cm | 16 h | 661,65 | 78 Bq.kg ⁻¹ |
| Be-7/solo ** | -- | 2,8 cm | 138 h (~6 d) | 477,61 | 91 Bq.kg ⁻¹ |

* Atividade corrigida para 06/12/2004.

** A Atividade Mínima Detectada (AMD) para o solo contendo ^7Be foi obtida com o uso da eficiência interpolada para este radionuclídeo através da Figura 69 do item 5.2.2 .

6 CONCLUSÕES

Foi possível constatar durante o trabalho, que para as medidas com o detector de NaI (Tl), o uso da blindagem de chumbo se faz necessária devido a uma diminuição do número de contagens de fundo na região do pico analisado, conseqüentemente, um aumento de aproximadamente 59 % na área líquida do pico de 661,65 keV do ^{137}Cs . Já para o detector de CdTe, o aumento na área líquida do pico de 32 keV foi bem mais acentuado, cerca de aproximadamente 96 %. Com estes dados, podemos concluir que o uso da blindagem de chumbo é de grande importância para se obter uma maior certeza nas medidas realizadas.

A realização do planejamento fatorial 2^3 foi de grande importância para uma melhora significativa em nossos resultados, com ele foi possível observar que a melhor temperatura para o cristal poder trabalhar, oferecendo o melhor rendimento, é de $-22\text{ }^\circ\text{C}$ (251 K), Shaping Time de 3 μs e Rise Time Discrimination (RTD) com valor 3. Com estes valores podemos otimizar o sistema, melhorando a área bruta, o FWHM e principalmente a área líquida do pico que estava sendo analisado.

Para a medida da eficiência dos detectores de CdTe e NaI (Tl), observamos que o detector de NaI (Tl) possui uma eficiência média em torno de 4 vezes melhor que o detector de CdTe, sendo em alguns casos, como na linha de 661,65 keV do ^{137}Cs a 1 metro do detector, cerca de 37 vezes melhor que o CdTe. Esta grande diferença é devido principalmente as dimensões dos cristais, sendo para o NaI (Tl) 30mm x 30mm, já para o CdTe 3mm x 3mm x 1mm. Quanto maior a energia do feixe, menor será a eficiência para o detector de CdTe. Pode-se observar, porém, que para a energia de 121,78 keV do ^{152}Eu a 1 metro do detector, a eficiência do detector de NaI é apenas duas vezes melhor que a eficiência do CdTe.

A baixa eficiência do detector de CdTe é compensada pela sua excelente resolução em energia, sendo para a linha de 661,65 keV do ^{137}Cs , aproximadamente 6 vezes melhor que o detector de NaI.

Para as amostras de solo F0 e F10, não foi possível fazer uma comparação com a eficiência de cada detector, devido ao fato de que as geometrias e linhas de energias estudadas eram diferentes. A Tabela 22 apresenta a eficiência encontrada para cada amostra e respectivas geometrias.

Tabela 22 – Eficiência dos detectores de CdTe e NaI (Tl) para as amostras de solo F0 e F10 para as energias de 32 e 661,65 keV.

| Detector | Fonte/Amostra | Atividade (kBq.kg ⁻¹) | Geometria (cm) | Tempo de medida | Energia (keV) | Eficiência (%) |
|----------|-------------------|-----------------------------------|----------------|-----------------|---------------|----------------|
| CdTe | Cs-137/F0 - solo | 2,7 | 4,15 | 168 h (7 d) | 32 | 7,86 |
| CdTe | Cs-137/F10 - solo | 0,166 | 4,15 | 216 h (9 d) | 32 | -- |
| NaI (Tl) | Cs-137/F0 - solo | 2,7 | 2,8 | 8 h | 661,65 | 2,61 |
| NaI (Tl) | Cs-137/F10 - solo | 0,166 | 2,8 | 16 h | 661,65 | 0,79 |

Depois de encontrar a atividade mínima detectável (AMD) dos detectores, podemos concluir que o detector de CdTe utilizado neste trabalho não é adequado para detectar fontes radioativas com baixa atividade, como foi o caso da amostra de solo F10 (116 Bq.kg⁻¹). Desta forma, este detector de CdTe não é indicado para análise de amostras de solo ambientais, sendo portanto inviável o seu uso na determinação da erosão e/ou deposição do solo, através da análise de ¹³⁷Cs e ⁷Be no solo, devido à sua baixa concentração. Caso fiquem disponíveis detectores de CdTe com cristais de maior volume, então esta conclusão pode ser revista.

Já para o detector de NaI a AMD para as amostras de solo F0 e F10 estão na ordem de 63 e 78 Bq.kg⁻¹, respectivamente. No entanto para amostras de solo ambientais, o detector de NaI (Tl), também não se mostrou capaz de identificar adequadamente os radionuclídeos ¹³⁷Cs e ⁷Be. Sendo também inviável o seu uso na determinação da erosão e/ou deposição de solo, através da análise de ¹³⁷Cs e ⁷Be no solo.

Porém, para medidas *in situ* de contaminação ambiental por material radioativo, com atividades cerca de uma ou mais ordens de grandeza maior que as naturais, o sistema é plenamente utilizável, tanto com o detector de CdTe como com o de NaI.

REFERÊNCIAS

AMPTTEK. The ROVER. **User's Manual: Portable X-Ray and Gamma Ray Spectroscopy System**. Revision 2.2, 2001.

ANDRELLO, A. C. **Aplicabilidade do ^{137}Cs para Medir Erosão do Solo: Modelos Teóricos e Empíricos**. Tese (Doutorado em Física Nuclear Aplicada) - Universidade Estadual de Londrina, Londrina. 174p., 2004.

BARROS NETO, B.; SCARMÍNIO, I. S.; BRUNS, R. E. **Como Fazer Experimentos: Pesquisa e Desenvolvimento na Ciência e na indústria**. Editora Unicamp. Campinas, SP. 401p., 2001.

BECK, H. L.; DECAMPO, J.; GOGOLAK, C. **In Situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-Ray Spectrometry**. USAEC Report HASL-258 Health and Safety Laboratory, US Atomic Energy Commission, New York, 1972.

BLAGOEVA, R.; ZIKOSKY, L. **Geographic and Vertical Distribution of Cs-137 in Soils in Canada**. J. Environ. Radioactivity. v. 27, p. 269-274, 1995.

BLAKE, W. H.; WALLING, D. E.; HE, Q. **Fallout Beryllium-7 as a Tracer in Soil Erosion Investigations**. Applied Radiation and Isotopes. v. 51, p. 599-605, 1999.

BLAKE, W. H.; WALLING, D. E.; HE, Q. **Using cosmogenic Beryllium-7 as a tracer in sediment budget investigations**. Geografiska Annaler. 84 A (2), p. 89-102, 2002.

BROUWER, S., THIRTY, Y., MYTTERRAERE, C. **Availability and Fixation of Radiocaesium in a Forest Brown Acid Soil**. The Science of the Total Environment. v. 143, p. 183-191, 1994.

BROWN, R. B.; CUTSHALL, N. H.; KLING, G. F. **Agricultural Erosion Indicated by ^{137}Cs Redistribution: I. Levels and Distribution of ^{137}Cs Activity in Soil**. Soil Sci. Soc. Am. Journal. v. 45, p. 1184-1190, 1981.

BROWNE, E.; DAIKIRI, J. M.; DUEBLER, R. E. **Tables of Isotopes**, Edited by M. Lederer, V. S. Shirley., John Wiley & Sons Inc., New York, 7^a ed, 1978.

BURCHAM, E. M. **Física Nuclear**, Editorial Reverté, S.A., 1974.

CHAPPBELL, A. **The limitations of using ^{137}Cs for estimating soil redistribution in semi-arid environments.** *Geomorphology*. v. 29, p. 135–152, 1999.

CHOPPIN, G., RYDBERG, J., LILJENZIN, J. O. **Radiochemistry and nuclear chemistry.** 2nd. Oxford: Butterworth–Heinemann Ltd. p. 254, 1995.

DEVELL, L. **Nuclide composition of Chernobyl hot particles. In Hot Particles from the Chernobyl Fallout.** Band 16, schriftenreihe des Bergbau – und Industrie–museums, Ostbayern Theuern. p. 23 – 24, 1988.

DOS SANTOS, E. A. **Estudo de Equações de Calibração para Metodologia do ^{137}Cs de determinação da Erosão de Solos.** Dissertação (Mestrado em Física Nuclear Aplicada) - Universidade Estadual de Londrina, Londrina. 151p., 2001.

DU, M.; YANG, H.; CHANG, Q.; MINANI, K.; HATA, T. **Caesium–137 fallout depth distribution in different soil profiles and significance for estimating soil erosion rate.** *Sciences of Soil*, [Publicação on line].
<http://link.springer.de/link/service/journals/10112/tocs/t8003001.htm>, 1998.

DUSI, W.; AURICCHIO, N.; BRIGLIADORI, L.; DONATI, A.; LANDINI, G.; MENGONI, D.; PERILLO, E.; VENTURA, G. **A study of the spectroscopic response of planar CdTe detectors when irradiated at various angles of incidence.** *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. v. 506, p. 119 – 124, 2003.

EJENISMAN, R.; PASCHOLATI, P.R. **Gamma–ray background survey.** *Revista de Física Aplicada e Instrumentação*. v. 9, p. 139–148, 1994.

FERMI; AMALDI; D’AGOSTINO; RASETTI; SEGRÉ. **Artificial Radioactivity Produced by Neutron Bombardment.** *Proc. Roy. Soc. v. A 146*, p. 483, 1934.

FLANAGAN, D.C.; NEARING, M.A. **USDA–Water Erosion Prediction Project (WEPP): Hillslope Profile and Watershed Model Documentation.** West Lafayette: NSERL report n.10, 1995.

GLASSTONG, S. **The Effects of Nuclear Weapons.** Oak Ridge. USAEC, 1964.

GUIMARÃES, M. F. **^{137}Cs da Precipitação Radioativa (“fallout”) no Estudo da Erosão e Sedimentação de Solo.** Tese (Doutorado em Agronomia) - Universidade de São Paulo. 136p., 1988.

HIRD, A B.; RIMMER, D. L.; LIVENS, F. R. **Factors Affecting the Sorption and Fixation of Caesium in Acid Organic Soil.** *European. J. of Soil Science.* v. 47, p. 67–104, 1996.

HIRD, A B.; RIMMER, D. L.; LIVENS, F. R. **Total Caesium Fixing Potentials of Acid Organics Soils.** *J. Environ. Radioact.* v. 26, p. 103–118, 1995.

<http://hydrolab.arsuda.gov>

http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP_WG/Be-7_com.pdf

<http://www.lbl.gov/abc/wallchart>

<http://www.webelements.com/wiki/index.php?page=beryllium>

HUG, C. **Dependence of the Decay Rate of ^7Be on Chemical Forms.** *Earth and Planetary Science Letters*, v. 171, p. 325 – 328, 1999.

IAEA 295 – International Atomic Energy Agency, **Measurements of radionuclides in food and the environment**, Technical Reports Series 295, Vienna, fev., 1989.

IAEA CRP. **Revision: International Atomic Energy Agency 1998-2001.** AQCS Catalogue 2000/2001.

I.E.E.E. **Standard 325.** 1971 (Reaffirmed in 1979).

KAPLAN, I. **Nuclear Physics**, Addison–Wesley Publishing Comp. Inc., 1963.

MACDONALD, J.; GIBSON, C. J.; FISH, P. J.; ASSINDER, D. J. **An Experimental Comparison of *In Situ* Gamma Spectrometric Methods for Quantifying Cs–137 Radioactive Contamination in the Ground.** *IEEE Transactions on Nuclear Science*, v. 46, n° 3, p. 429–432, 1999.

MACDONALD, J.; GIBSON, C. J.; FISH, P. J.; ASSINDER, D. J. **Theoretical Assessment of Collimated Submerged Detector Measurements for Improving the Accuracy of *In Situ* Gamma Spectrometry.** *IEEE Transactions on Nuclear Science*, v. 46, n° 3, p. 424–428, 1999.

MAHAN, B. H. **Química. Um curso universitário.** Editora Edgard Blücher Ltda. p. 440–446, 1970.

MANN, W.B.; AYRES, R.L **Radioactivity and its measurement.**, Pergamon International Library, 1980.

MENZEL, R.G. **Transport of strontium–90 in runoff.** Science., v. 131, p. 499–500, 1960.

MICROCAL SOFTWARE., **Microcal Origin.**, Version 5.0, Inc 1991-1997.

MILAN, C.S.; SWENSON, E.M.; TURNER, R.E.; LEE, J.M. **Assessment of ^{137}Cs method for estimating sediment accumulation rates: Louisiana Salt Marshes,** Journal of Coastal Research. v. 2, p. 296–307, 1995.

MOUCHEL D.; WORDEL R. **Measurement of Low Level Radioactivity un Environmental Samples by Gamma–Ray Spectrometry.** Appl. Radiat. Isto. v. 43, n° 1–2, p. 49–59, 1992.

NIR–EL, Y. **In Situ Hot Spot Measurements with HPGe Detector 0.1m Above Ground.** Health Physics. V. 79, n°. 4, p. 396–401, 2000.

OKUNO, E. **Radiação: efeitos, riscos e benefícios.** Editora Harbra Ltda., 1998.

OSADA, JUN'ICHI. **Evolução das Idéias da Física.** Ed. Edgard Blücher Ltda., 1972.

OWENS, P. N.; WALLING, D. E. **Spatial Variability of Caesium–137 Inventories at Reference Sites: an Example from Two Contrasting Sites in England and Zimbabwe.** Appl. Rad. on Radiation Isotopes. v. 47, p. 699–707, 1996.

PAPASTEFANOU, C. & IOANNIDOU, A. **Aerodynamic Size Association of ^7Be in a Ambient Aerosols.** Journal of Environmental Radioactivity, v. 26, p. 273 – 282, 1995.

PAPASTEFANOU, C. & IOANNIDOU, A. **Beryllium–7 Aerosols in Ambient Arir.** Environment International, v. 22, p.5125 – 5130, 1996.

PEREZ-ANDUJAR, A.; PIBIDA, L. **Performance of CdTe, HPGe and NaI(Tl) detectors for radioactivity measurements.** Applied Radiation and Isotopes, v.60 p. 41-47, 2004.

RITCHIE, J. C.; MCHENRY, J.R. **Application of Radioactive Fallout Cesium-137 for Measuring Soil Erosion and Sediment Accumulation Rates and Patterns.** A Review. *J. Environ. Qual.* v. 19, p. 215–233, 1990.

RITCHIE, J. C.; MCHENRY, J. R. **The distribution of Cs-137 in watersheds in the eastern United States.** *Health Physics Programon Press.* v. 32, p.101–105, 1977.

RITCHIE, J. C.; SPRABERRY, J. A.; MCHENRY, J. R. **Estimating Soil Erosion from the Redistribution of Fallout ¹³⁷Cs.** *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, v. 38, p. 137–139, 1974.

ROGOWSKI, T. A.; TAMURA, T. **Movement of ¹³⁷Cs by Runoff, Erosion and Infiltration on the Alluvial Captina Silt Loam.** *Health Physics.*, v. 11, p. 1333–1340, 1965.

SAKAI, T. **Distribuição do ¹³⁷Cs nos Solos do Estado da Bahia.** Dissertação (Mestrado em Ciências Naturais) - Universidade Federal da Bahia, Salvador. 63p., 1977.

SCHULZ, R. K.; OVERSTREET, R.; BARSHAD, I. **On the Soil Chemistry of Caesium – 137.** *Soil Science*, v. 89, p. 16–27, 1960.

SHEMBER, M. A; ERIKSOON, A. **Exchangeability of Caesium in Various Soils.** *The Science of the Total Environmental.* v. 138, p. 271–279, 1993.

TAUHATA, L.; ALMEIDA, E. S.; **Física Nuclear.** Rio de Janeiro: Guanabara Dois, 413p., 1981.

UNEP (United Nations Environment Programme)., **Radiation: Doses, Effects, Risks.** UNEP, 1991.

VO, D. T.; RUSSO P. A. **Plutonium Isotopes gamma spectrometry with CdTe Detector.** *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* v. 486, Issue 3, p. 813-824, 2002.

WALLING, D.E.; HE, Q. **Models for converting ¹³⁷Cs measurements to estimates of soil redistribution rates on cultivated and uncultivated soils.** A contribution to IAEA., coordinated Research Programmes on Soil Erosion (D1.50.05) and Sedimentation (F3.10.01). University of Exeter, Exeter, UK, p. 29, 1997.

WALLING, D. E., QUINE, T. A. **Calibration of Caesium-137 Measurements to Provide Quantitative Erosion Rate Data Land Degradation.** *Rehabilitation.* v. 2, p. 161–175, 1990.

WISCHEMEYER, W.H.; SMITH, D.D., **Predicting rainfall erosion losses: A guide to conservation planning.**, USDA in (agricultural Handbook, 537), 1978.

ZAPATA, F.; GARCÍA-AGUDO E. **Future Prospects for the ^{137}Cs Technique for Estimating Soil Erosion and Sedimentation Rates.** Acta Geologica Hispanica, v. 35, n° 3-4, p. 197-205, 2000.