



MCT - Ministério da Ciência e Tecnologia

INSTITUTO TECNOLÓGICO E NUCLEAR

Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear

Relatório DPRSN-A, nº 17

**Análise por Espectrometria Alfa de
Radionuclídeos das Famílias do Urânio e do
Tório a Níveis Ambientais**

Fernando P. Carvalho e João M. Oliveira

Comunicação apresentada no XVII Encontro Nacional de Química: Química das Interfaces

Lisboa 1-3 Março 2000
Livro de Resumos, pag. 80

2002

Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear

Director: Fernando Piedade Carvalho
Endereço: Estrada Nacional 10, 2686-953 Sacavém, Portugal
Telefone: +351 - 21 994.60.00
Fax: +351 - 21 994.19.95
e-mail: Dprsn@itn.pt
Pág. web: <http://www.itn.pt>

Ficha Técnica

Título	Análise por Espectrometria Alfa de Radionuclidos das Famílias do Urânio e do Tório a Níveis Ambientais
Autoria	Fernando P. Carvalho e João M. Oliveira
Edição	Instituto Tecnológico e Nuclear Dep. Protecção Radiológica e Segurança Nuclear
Tiragem	50 exemplares
ISBN	
Depósito Legal	
Data da Edição	2002
Responsável pela edição	M ^a Luísa Pedro

ANÁLISE POR ESPECTROMETRIA ALFA DE RADIONUCLIDOS DAS FAMÍLIAS DO URÂNIO E DO TÓRIO A NÍVEIS AMBIENTAIS

Fernando P. Carvalho e João M. Oliveira

Instituto Tecnológico e Nuclear

Departamento de Protecção Radiológica e Segurança Nuclear

E.N.10, P-2686-953 Sacavém

Resumo

A determinação dos radionuclidos emissores alfa requer a sua extracção da matriz da amostra, separação elementar e preparação de uma fonte, sem espessura, por electrodeposição dos radionuclidos num disco inox. Este tipo de fonte permite a análise por espectrometria das partículas alfa emitidas pelos radioisótopos e a sua quantificação rigorosa. A análise isotópica do Urânio e do Tório tem aplicações na geoquímica das rochas eruptivas e sedimentares. A determinação das actividades dos emissores alfa naturais e artificiais em águas e alimentos é, também, essencial no controlo da qualidade do ambiente e em protecção radiológica.

1. INTRODUÇÃO

Um grande número de elementos das séries naturais do Urânio, Tório e Actínio desintegram-se por emissão de partículas alfa (Figura 1). A desintegração nuclear alfa é muito raramente acompanhada de emissão de partículas beta ou fotões gama, o que permitiria a detecção destes radionuclidos com muita comodidade. Sendo a concentração em termos de massa frequentemente muito baixa, a análise isotópica e a quantificação destes radionuclidos fica ao alcance de pouquíssimas técnicas analíticas, ou seja,

resumem-se essencialmente à espectrometria alfa e à espectrometria de massa. Esta última, em certas amostras ambientais, está, por seu turno, limitada a alguns isótopos.

A espectrometria alfa dos radionuclidos das séries naturais, e também de vários transuranianos aos quais é aplicável, envolve a extração dos radioelementos da matriz da amostra, a separação e purificação destes radioelementos, seguida da preparação de fontes alfa, da medida destas fontes com detectores de silício (Si) de barreira de superfície, e da análise dos espectrogramas.

A análise radioquímica e por espectrometria alfa de radionuclidos emissores alfa das séries naturais e de transuranianos tem sido desenvolvida no DPRSN desde o início da década de 80.

2. EXTRACÇÃO E SEPARAÇÃO RADIOQUÍMICA

A análise de emissores alfa em amostras ambientais requer a sua extração da matriz e, se necessário, a concentração da amostra por forma a obter fontes com actividades mais elevadas e, portanto, mais facilmente mensuráveis.

No início do processo de análise radioquímica adicionam-se à amostra os traçadores isotópicos necessários, isto é, actividades bem conhecidas de isótopos, geralmente artificiais, dos radioelementos a determinar (ex.: ^{232}U , ^{229}Th , ^{224}Ra , ^{209}Po , ^{242}Pu , etc.). Estes isótopos, após prolongada diluição isotópica, servirão de traçadores internos e permitirão no final determinar o rendimento químico da análise.

A extracção e concentração de emissores alfa em amostras de água faz-se, normalmente, recorrendo à co-precipitação com hidróxido de Fe, Al ou Mn. A concentração dos radionuclidos em amostras biológicas faz-se, frequentemente, através da redução a cinzas, após adição dos traçadores ao material fresco. Seguidamente, as cinzas são dissolvidas com ácidos e, a partir da solução, procede-se à co-precipitação dos radioelementos com os hidróxidos de metais. A extracção dos radionuclidos de amostras de solos faz-se por dissolução total da amostra, recorrendo ao ácido fluorídrico, ou por repetidas extracções a quente com ácido nítrico concentrado.

Com qualquer dos tipos de amostra obtém-se um extracto que contém os radioelementos, incluindo os traçadores isotópicos adicionados no início da análise, e

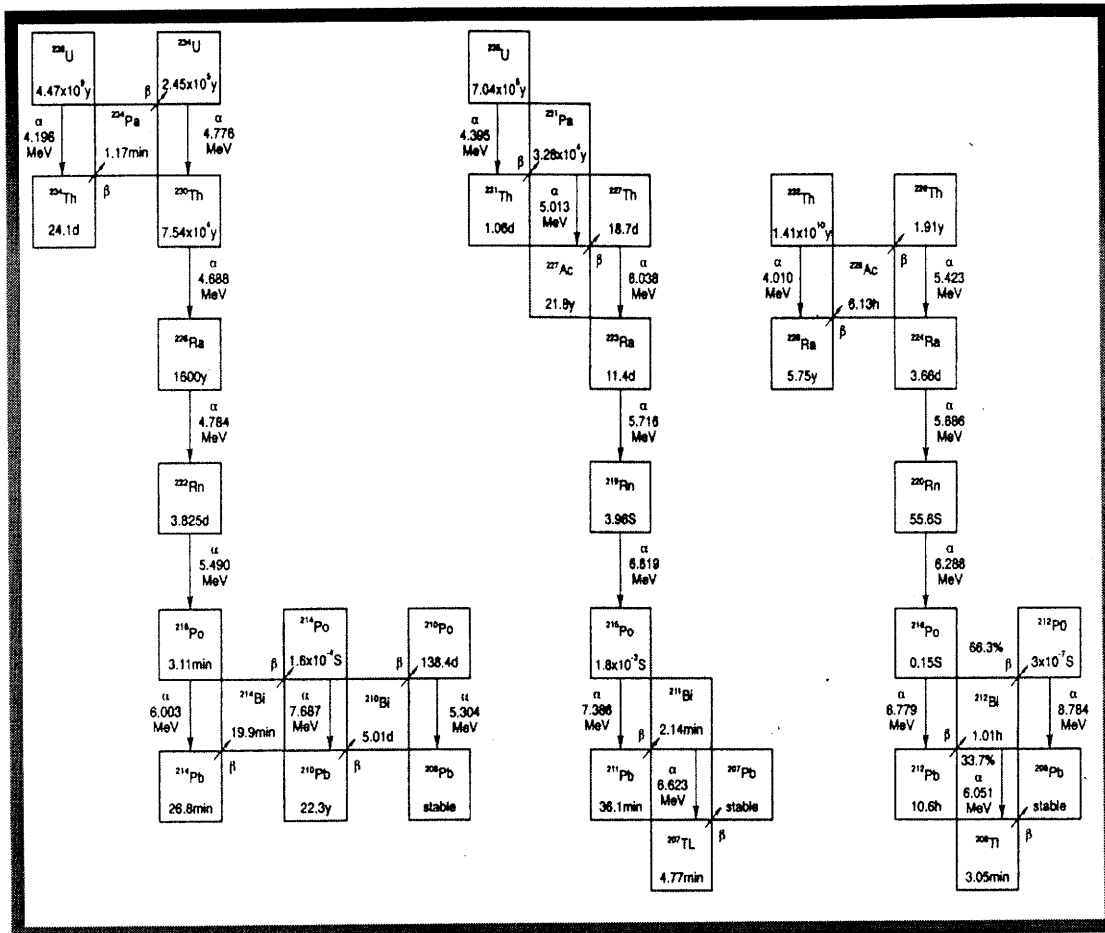


Figura 1. Séries radioativas naturais do Urânio (^{238}U), do Actínio (^{235}U) e do Tório (^{232}Th).

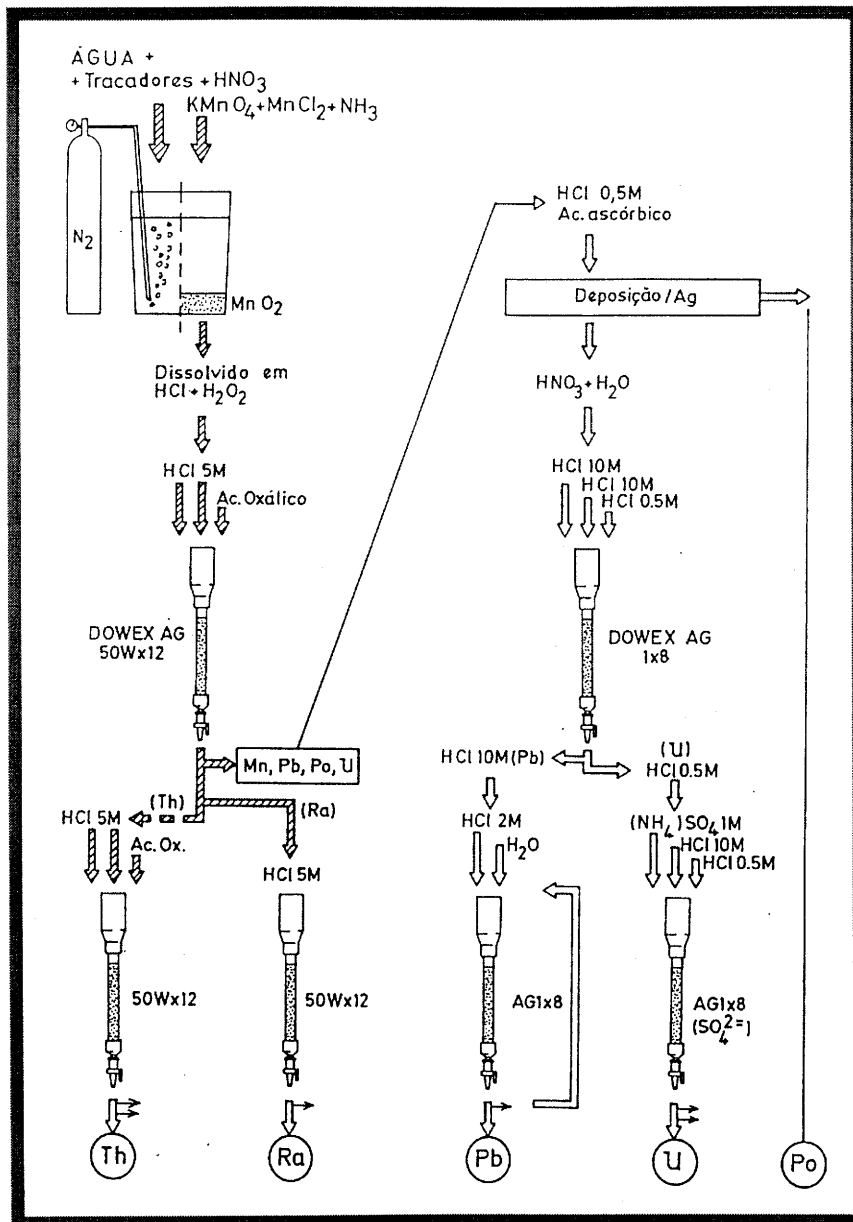


Figura 2. Esquema analítico de extracção e separação sequencial de Th, Ra, Pb, U e Po de uma amostra de água

também um grande número de metais e metaloides (Fe, Ni, Cd, Mn, Pb, etc.). Um depósito ou resíduo seco deste extracto teria uma massa demasiada elevada e não permitiria a realização de espectrometria alfa devido a auto-absorção da energia das partículas no material do depósito.

É, pois, necessário proceder à separação dos radionuclídeos dos elementos interferentes co-extraídos, e apurar a purificação dos radionuclídeos. A Figura 2 exemplifica o esquema analítico utilizado para a análise de radionuclídeos numa amostra de água. A separação e purificação dos radionuclídeos é efectuada por meio de resinas de troca iónica (cromatografia em coluna), obtendo-se fracções muito puras de vários radionuclídeos.

3. A PREPARAÇÃO DE FONTES PARA ESPECTROMETRIA ALFA

Cada uma das fracções obtidas é tratada separadamente, evaporada e o resíduo retomado com uma solução adequada à electrodeposição (sulfato de amónio ou outra). Esta solução é transferida para uma célula de electrodeposição em Teflon, sendo o cátodo um disco de inox com a superfície polida, e o ânodo um fio de platina. O potencial eléctrico aplicado aos eléctrodos é controlado por uma fonte de alimentação de corrente contínua (Figura 3). As condições óptimas de electrodeposição catódica variam de elemento para elemento, mas o U, Th, Ra, etc., são electrodepositados em cerca de 1 hora com correntes de 0.01V a 40V e 0.01A a 1A.

Se a purificação foi eficaz, as fontes preparadas desta forma têm menos de 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ e permitem a realização de espectrometria com elevada resolução da energia das partículas alfa. Por outro lado, se a purificação cromatográfica para eliminação de interferentes não foi bem conduzida, obter-se-á um depósito espesso depositado na superfície do disco inox e o espectro terá uma resolução muito pobre.

4. ESPECTROMETRIA ALFA

A espectrometria alfa é normalmente realizada com detectores de Si. Dois tipos de detectores são correntes: de barreira de superfície e de iões implantados com junção do

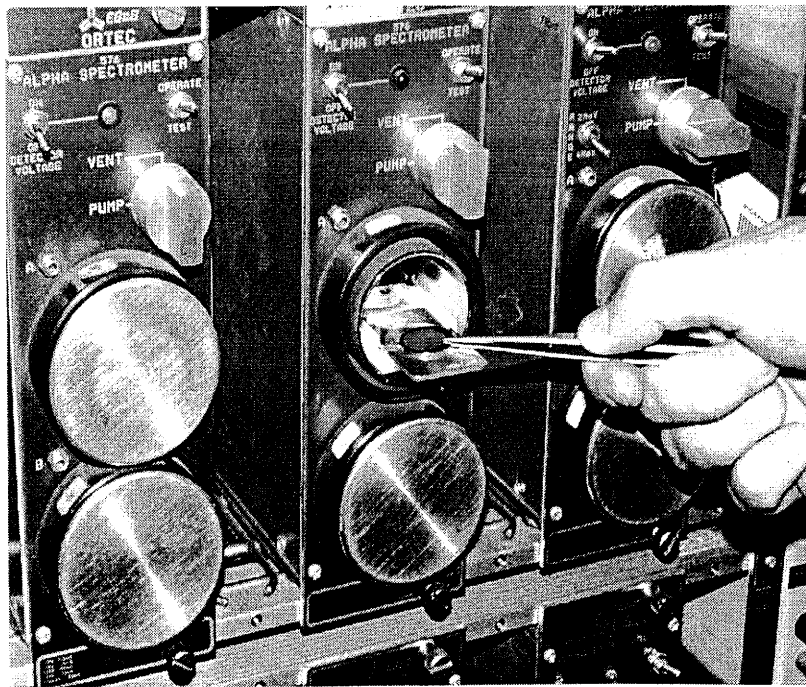
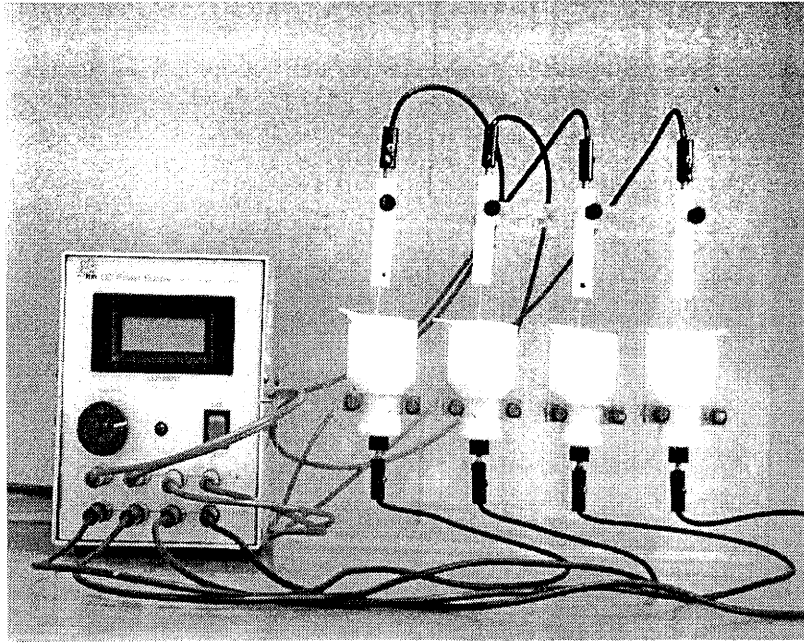


Figura 3. Sistema de electrodeposição de radionuclidos (em cima) e colocação de uma fonte electrodepositada no interior de uma câmara alfa com detector de silício(em baixo).

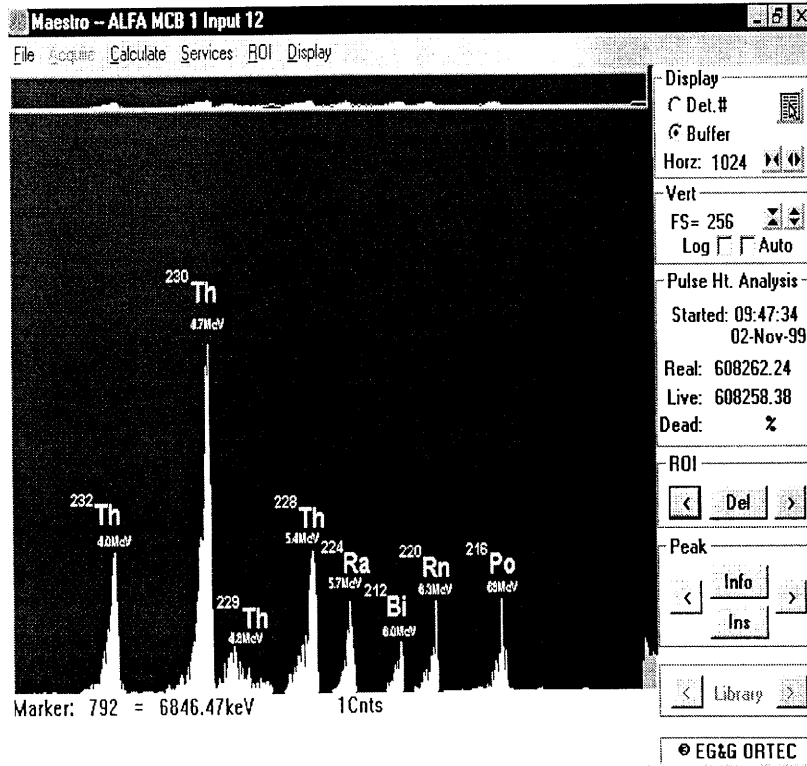
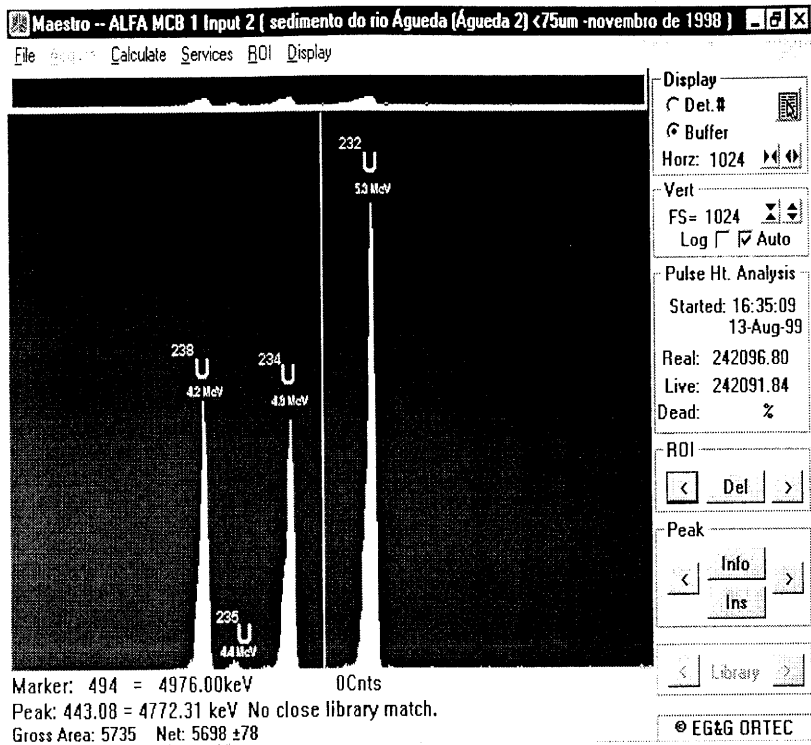


Figura 4. Espectrogramas alfa de Urânio e Tório analisados em amostras ambientais.

tipo P-N. Em alternativa pode usar-se uma câmara de grelha de Frish, baseada na ionização de um fluxo gasoso pelas partículas alfa, mas estas câmaras não estão hoje disponíveis no mercado.

Os detectores de silício têm resoluções elevadas, de cerca de 20 KeV, eficiências muito razoáveis, de 20 a 35% dependendo do diâmetro do detector, e ruído de fundo muito baixo, normalmente inferior a 3 ou 4 contagens por 24 h. Estes detectores permitem atingir limites de detecção de 10 μBq para tempos de contagem de 24 horas.

Dada a energia bem característica das partículas alfa, a identificação dos radioisótopos bem como a sua quantificação é efectuada com grande rigor (Figura 4). Em amostras ambientais comuns, é possível, por exemplo, a quantificação de 1 pg de ^{234}U e de 20 ng de ^{238}U . Note-se que a abundância média destes isótopos na crosta terrestre é $4 \times 10^{-4} \mu\text{g g}^{-1}$ e $3 \mu\text{g g}^{-1}$, respectivamente.

A análise de materiais de referência e a participação periódica em exercícios internacionais de intercomparação analítica, organizados pela Agência Internacional de Energia Atómica (AIEA), têm permitido controlar e assegurar a exactidão e precisão destas técnicas analíticas (Tabela 1).

5. APLICAÇÕES

No domínio da geoquímica, a análise isotópica do Urânio e do Tório em rochas e sedimentos permite, verificadas certas condições, a datação à escala dos tempos geológicos, i. e., 10^4 - 10^6 anos. A análise do desequilíbrio radioactivo do ^{226}Ra e do ^{210}Pb , este último frequentemente medido através do seu descendente ^{210}Po , permite o estabelecimento de uma geocronologia para os últimos 100 anos, aplicável, por exemplo, ao estudo de depósitos sedimentares em lagos e mares costeiros.

No domínio da protecção radiológica a espectrometria alfa é utilizada no controle das águas minerais e das águas de beber em geral, bem como no estudo da contaminação radioactiva do ambiente e da dieta humana. O controlo dos isótopos da série do Urânio é de especial importância nas regiões mineiras de Urânio, enquanto que o controlo de emissores alfa artificiais, como o Plutónio e o Amerício, é efectuado no Atlântico Nordeste para controlar o impacto dos resíduos radioactivos imersos no oceano.

Tabela 1. Resultados das análises de materiais de referência da AIEA. (a) Resultados da nossa determinação, (b) Valor de referência indicado pela AIEA.

Materiais de Referência	^{238}U	^{234}U	^{232}Th	^{230}Th	^{228}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po
a) AIEA-SDN 1/2	28.0 ± 1.0	27.5 ± 2.5	34 ± 4	59 ± 6	32 ± 4	110 ± 10	112 ± 10	112 ± 10
b)	29.5 ± 1.2	29.2 ± 2.8	29 ± 1	51 ± 4	-----	109 ± 8	138 ± 27	138 ± 27
a)						58 ± 12	71 ± 6	71 ± 6
b) AIEA-SD -A-1						75 ± 15	70 ± 15	72 ± 2.5

6. BIBLIOGRAFIA

Carvalho, F.P. Contribution à l' étude du cycle du Polonium-210 et du Plomb-210 dans l' environnement. Thèse de Doctorat. Université de Nice-Sophia Antipolis, France, 1990.

Choppin, G., Liljenzin, J.O., Rydberg, J. Radiochemistry and Nuclear Chemistry. 2nd Edition. Butterworth – Heinemann Publ., 1995.

Ivanovich, M., Harmon, R.S. Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental Problems. Clarendon Press, Oxford, 2nd Edition, 1992.