

BR8919460

ISSN 0101-3084

CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

DETERMINAÇÃO DE MASSAS DE U-233 E Pu-239 PELA
TÉCNICA DA ESPECTROMETRIA GAMA

Marco Antonio Proença Vieira de Moraes e Reynaldo Pugliesi

IPEN - PUB - 206

PUBLICAÇÃO IPEN 206

SETEMBRO/1988

SÃO PAULO

**DETERMINAÇÃO DE MASSAS DE U-233 E Pu-239 PELA
TÉCNICA DA ESPECTROMETRIA GAMA**

Marco Antonio Proença Vieira de Moraes e Reynaldo Pugliesi

DEPARTAMENTO DE FÍSICA E QUÍMICA NUCLEARES

**CNEN/SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SÃO PAULO - BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

INIS Categories and Descriptors

B11.10

GAMMA SPECTROSCOPY
PLUTONIUM 239
URANIUM 233

IPEN · Doc · 3074

Publicação aprovada pela CNEN em 22/09/86.

Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são de responsabilidade do(s) autor(es).

DETERMINAÇÃO DE MASSAS DE U-233 E Pu-239
PELA TÉCNICA DA ESPECTROMETRIA GAMA

Marco Antonio Proença Vieira de Moraes e Reynaldo Pugliesi

RESUMO

A técnica da espectrometria gama foi empregada para a de terminação de massas de amostras de urânio-233 e de plutônio-239, cedidas pela AERE-HARWELL.

O detector utilizado foi um semiconductor do tipo germânio intrínscio e a curva de eficiência total do sistema de contagem foi obtida no intervalo de energia de 13 keV à 135 keV.

Os valores calculados para as massas foram comparados com os obtidos pela técnica de gravimetria.

MASSES DETERMINATION OF U-233 AND Pu-239 BY
GAMMA SPECTROMETRY TECHNIQUE

ABSTRACT

The gamma spectrometry technique has been used for masses determinations of uranium-233 and plutonium-239, granted by AERE-HARWELL.

A high purity Ge semiconductor detector was used and the total efficiency curve was obtained for the counting system in the energy range 13 keV to 135 keV.

The calculated values for the masses were compared with that obtained by means of gravimetry technique.

INTRODUÇÃO

Os núcleos dos elementos U-233 e Pu-239 decaem por emissão alfa-gama⁽⁶⁾. A técnica da espectrometria gama não é comumente empregada para a determinação de massas desses elementos, pois necessita da utilização de um detetor gama de alta resolução em energia e que possua uma fina janela absorvedora

de radiação, uma vez que seus espectros de decaimento apresentam as maiores intensidades na região de baixa energia (dezenas de keV), além de contaminações de isótopos e núcleos filhos, cujas energias de decaimento tem valores muito próximos às do núcleo pai (2,4,11).

O objetivo do presente trabalho foi o de determinar as massas (ordem de miligramas) desses elementos por essa técnica, devido a disponibilidade de um detector de alta resolução em energia do tipo germânio intrínscico com janela de berílio. Os ramos gama adequados para a realização das medidas foram de 13 keV, 16 keV, 19 keV e 97,1 keV para o U-233 e 38,8 keV, 51,6 keV e 98,4 keV para o Pu-239. Devido a não disponibilidade de padrões radioativos destas espécies foi necessária a determinação da curva de eficiência total de detecção em função da energia da radiação para o sistema de contagem no intervalo de energia de 13 keV à 135 keV.

ARRANJO EXPERIMENTAL

O arranjo experimental esquematizado na Figura 1 é composto basicamente por um detector semicondutor do tipo germânio intrínscico de alta resolução em energia (~ 2 keV FWHM) com janela de berílio de espessura 0,127 mm⁽⁷⁾ enquanto que o sistema eletrônico de análise de pulsos por um pré-amplificador (do próprio detector), um amplificador e um analisador multicanal com uma impressora associada. O detector é alimentado por uma tensão negativa de 1100 volts.

(fig.1)

Os modelos desses equipamentos são: - detector modelo GLP-06165/05 ORTEC; - fonte de alta tensão modelo 459 ORTEC;

- amplificador modelo 490-B ORTEC; - analisador multicanal modelo 6240 B ORTEC e impressora modelo decwriter II Digital.

O detector é blindado contra a radiação de fundo, por paredes de chumbo de 10 centímetros de espessura que o envolvem completamente enquanto que o porta-amostra, confeccionado em lucite e fixado na base do detector, permite que a fonte se afasta até uma distância de 30 centímetros do mesmo.

OBTENÇÃO E ANÁLISE DOS DADOS

As amostras padrões utilizadas na obtenção da curva de eficiência foram: Am-241, Co-57, Ba-133, Cd-109, Cs-137 e Eu-152 e as amostras estudadas foram quatro de U-233 e três de Pu-239. Suas características relevantes à este trabalho estão mostradas na Tabela 1.

A distância fonte-detector foi determinada e fixada em 15 centímetros levando-se em conta a baixa atividade radioativa de alguns dos padrões. Nessas condições a variação na eficiência geométrica de detecção entre os padrões, que são fontes puntiformes, e as amostras que possuem raio igual a 2 centímetros, é pequena, sendo aproximadamente 1%. O intervalo de tempo de contagem para os padrões variou entre 400 e 60.000 segundos enquanto que para as amostras variou entre 4000 e 40.000 segundos.

As contagens líquidas registradas, correspondentes à cada ramo gama de desintegração de cada radionuclídeo foram determinadas considerando-se a área total de seus picos de contagens por canal nos quais esse pico esteja definido, subtraindo dessa, a área de um trapézio, que corresponde às contribui

ções devidas à radiação de fundo e ao espalhamento Compton no mesmo intervalo de canais.

O valor da eficiência total de detecção (eficiência intrínseca X eficiência geométrica) em função da energia de cada ramo gama das amostras padrão, foi calculado por meio da expressão 1, e seu erro, pela aplicação da teoria de propagação a esta expressão:

$$E_f = \frac{A}{A_0 \times I_\gamma \times C} \quad (1)$$

sendo:

A = área líquida do pico de contagem/ tempo

A₀ = atividade da amostra padrão na data de contagem

I_γ = intensidade gama absoluta

C = fator de correção

O fator de correção C leva em conta a atenuação da intensidade da radiação devido à auto-absorção, absorção no ar e na janela de berílio do detector. Este fator varia em função da energia⁽¹²⁾ e introduziu correções de 0,5% à 15% no cálculo das eficiências.

Aos pontos experimentais, de eficiência em função da energia, foi ajustado, pelo método dos mínimos quadrados⁽³⁾, um polinômio do terceiro grau, do qual se obteve a seguinte expressão:

$$E_f = 4,7602 \times 10^{-5} \times (E)^0 + 1,3636 \times 10^{-6} (E)^1 - 2,0367 \times 10^{-8} (E)^2 + 6,6980 \times 10^{-11} \times (E)^3$$

A Figura 2 mostra os pontos experimentais e a curva ajustada, segundo este polinômio.

Os valores das massas das amostras de U-233 e de Pu-239 foram calculados por meio da expressão 2, e estão apresentados na Tabela 2:

$$M \text{ (mg)} = \frac{\text{mol} \times A \times 10^{-3}}{N_o \times \lambda \times I_\gamma \times E_f \times K} \quad (2)$$

sendo:

- mol = massa molecular do U-233 ou do Pu-239
- N_o = número de Avogrado (6.023×10^{23} átomos/mol)
- λ = constante de desintegração do U-233 ou do Pu-239
- I_γ = intensidade gama absoluta
- E_f = eficiência obtida do ajuste polinomial
- K = correção para auto-absorção e fator geométrico relativo à não puntiformidade das amostras e variou entre 1,5% e 6,5%

Os erros nos valores das massas tem como principal componente o erro no parâmetro I_γ (ver Tabela 1), e foram calculados aplicando a teoria de propagação à expressão 2.

Os erros nos parâmetros E_f e A são devidos ao ajuste polinomial e à estatística da contagem, respectivamente.

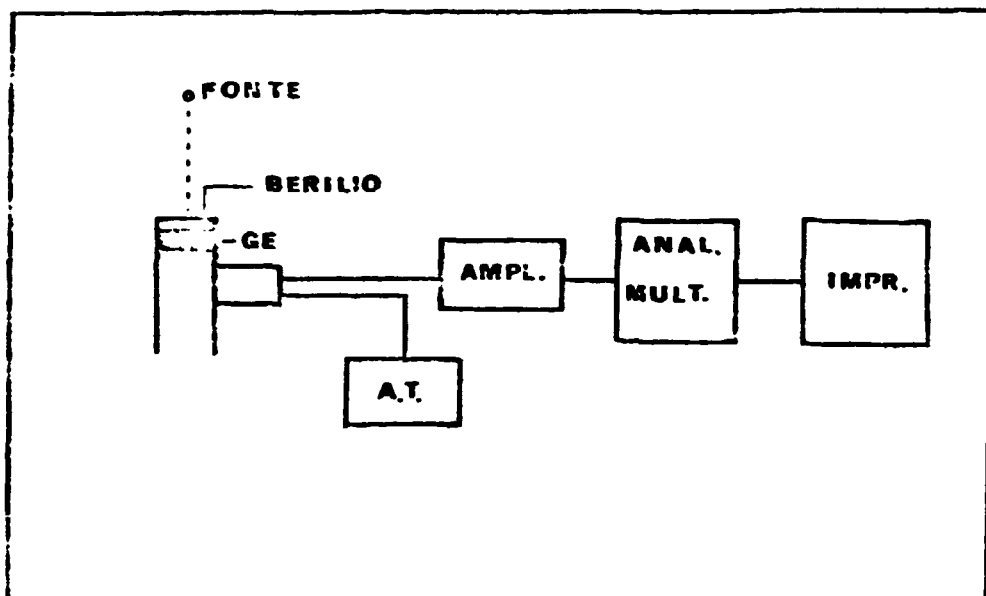
Os valores das massas calculadas neste trabalho, foram comparados com aqueles determinados por gravimetria pela AERE-HARWELL, CHEMISTRY DEPARTMENT⁽¹⁾ e concordaram dentro do erro das medidas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. WHITTAKER, B. AERE, Chemistry Division, Harwell, Oxforshire. Personal communication.
2. BINGHAN, C.D. & MCGONNAGLE, W.J. A critical comparison of mass and gamma ray spectrometric measurements of plutonium isotopic reference materials. Nucl. Mater. Manage, 14(3):320-4, 1985.
3. BORATO, F. Basic para engenheiros e cientistas. São Paulo, Livros Técnicos e Científicos, 1984.
4. HELMER, R.G. & REICH, C.W. International program to improve decay data for transactinium nuclides. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A, 242:475-9, 1986.
5. KOSKINAS, M. IPEN-CNEN/SP, Laboratório de Metrologia Nuclear. Comunicação Pessoal.
6. LORENZ, A. Nuclear decay data radionuclides used as calibration standards. Vienna, International Nuclear Data Committee, 1983. (INDC (NDS) - 145/GEI).
7. LOW energy photon spectrometer, detector series GPL, HPG e (Highpurity Germanium). Oak Ridge, Tn., s.d. (Manual de Equipamento).
8. NEW England Nuclear calibration certificate. May, 1982. (NES-1305).
9. REUS, V. & WESTMEIER, W. Catalog of gamma rays from radioactive decay. At. Data Nucl. Data Tables, 29(2): 193-406, 1983.
10. SET of 8 calibrated gamma-emitting sources (EMS-A2). Vienna, IAEA, Jan. 1982.

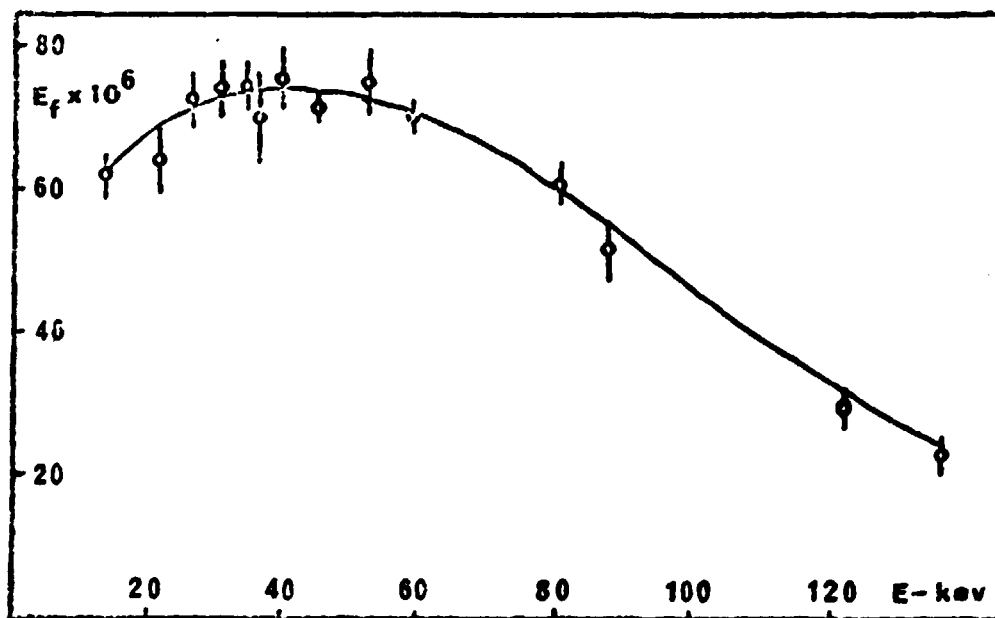
11. STEPANOV, A.V.; FRIDKIN, A.M.; BERDIKOV, V.V. Estimating plutonium content and isotope composition for spent VVER Reactor fuel by alpha and gamma spectrometry and from isotope correlations. Sov. Radiochem., 27(5):643-8, 1985.
==
12. STORM, E. & ISRAEL, H.I. Photon cross sections, from 1 keV to 100 MeV for elements 1 through 100. Nucl.Data Tables, A7(6):565, 1970.
==

FIGURA - 1



ARRANJO EXPERIMENTAL

FIGURA 2 - EFICIENCIA TOTAL X ENERGIA GAMA



EFICIÊNCIA TOTAL DE DETECÇÃO X ENERGIA GAMA

TABELA 1 - Características das Amostras Radioativas Utilizadas

Amostra	Procedência	Característica	Energia Gama (keV)	Gama (6,9)	Intensidade Absoluta I _γ	Absoluta (6,9)	Meia Vida (6,9)	Erro de atividade (10,5)
Co-57	L.M.N. IPEN-CNEN/SP	A	14,4		0,0954 ± 0,0048		271,73 ± 0,14 dias	5,0
			122,1 ± 2%		0,356 ± 0,0428			
			136,5 ± 2%		0,106 ± 0,0053			
Cd-109	New England Nuclear	B	22,1		0,842 ± 0,042		463,1 ± 0,8 dias	4,5
			88,0 ± 2%		0,0361 ± 0,0024			
Cs-137	New England Nuclear	B	36,5 ^a ± 2%		0,0136 ± 0,0007		30,18 ± 0,05 anos	3,5
Eu-152	I.A.E.A.	C	39,9 ^a		0,591 ± 0,0296		13,33 ± 0,04 anos	2,0
			45,7 ^a ± 2%		0,149 ± 0,0075			
			121,8		0,284 ± 0,014			
Am-241	L.M.N. IPEN-CNEN/SP	A	13,9		0,132 ± 0,0066		432,2 ± 0,5 anos	2,0
			26,3 ± 2%		0,0240 ± 0,0012			
			59,5		0,359 ± 0,018			
Ba-133	New England Nuclear	B	30,9 ^a		0,979 ± 0,049		10,6 ± 0,2 anos	3,4
			35,2 ^a ± 2%		0,2304 ± 0,012			
	I.A.E.A.	C	53,2		0,022 ± 0,004			1,5
U-233	AERE - HARWELL	D	13,0		0,024 ± 0,004		(1,592 ± 0,002) 10 ⁵ anos	2,0
			16,0		0,033 ± 0,005			
			19,0 ± 2%		0,009 ± 0,0001			
			97,1		0,00022 ± 0,00002			
Pu-239	AERE - HARWELL	D	38,7		0,000101 ± 0,00001		(2,411 ± 0,009) 10 ⁴ anos	2,0
			51,6 ± 2%		0,000271 ± 0,00002			
			98,4		0,000064 ± 0,00005			

a média ponderada de dois ou mais ramos gama não resolvidos

- A - Amostra radioativa depositada em Vyns - (acetato de polivinila) (5)
 B - Amostra radioativa encapsulada em plástico de espessura 3,2 mm (8)
 C - Amostra radioativa encapsulada em alumínio de espessura 0,52 mm (10)
 D - Amostra radioativa eletrodepositada em lamina de Titânio (1)

Principais Características das Amostras Radioativas Utilizadas Neste Trabalho

TABELA 2 - Comparação dos Valores das Massas de U-233 e Pu-239

MASSAS (mg) DE U-233

AMOSTRA	01	02	03	04
ENERGIA (keV)				
13,0	13,9 \pm 2,0	13,2 \pm 2,0	13,6 \pm 2,0	13,4 \pm 2,0
16,0	14,2 \pm 2,2	13,5 \pm 2,0	13,1 \pm 2,0	13,9 \pm 2,1
19,0	12,4 \pm 1,8	12,3 \pm 1,8	11,5 \pm 1,7	12,0 \pm 1,8
97,1	*	*	*	11,8 \pm 2,0
Massa AERE (mg)	13,9 \pm 0,3	13,0 \pm 0,3	12,8 \pm 0,3	12,7 \pm 0,3

MASSAS (mg) DE Pu-239

AMOSTRA	01	02	03
ENERGIA (keV)			
38,7	11,4 \pm 1,0	12,4 \pm 1,0	*
51,6	*	11,7 \pm 1,0	11,6 \pm 1,0
98,4	12,9 \pm 1,5	13,2 \pm 1,5	*
Massa AERE (mg)	12,8 \pm 0,3	13,2 \pm 0,3	12,8 \pm 0,3

* Não calculada devido à não definição satisfatória dos picos de contagem.

Massas das Amostras de U-233 e de Pu-239 Obtidas pela Espectrometria Gama e pelo Método Gravimétrico.