

Metrologia das razões isotópicas no Urânio e Plutônio por espectrometria de fótons

Ronaldo Lins da Silva,^{*} Julio José da Silva Estrada,^{**} José Ubiratan Delgado,^{***} Roberto Poledna,^{****} Maria C. M. de Almeida^{*****}

Resumo

A espectrometria gama de alta resolução é uma técnica analítica muito valiosa para a determinação precisa de energias e probabilidades de emissão gama de materiais nucleares. A exata determinação das razões isotópicas desses materiais, como urânio e plutônio, é de grande importância para a física nuclear e para a indústria nuclear. A contabilidade de inventário de produção e movimentação desses materiais pode ser feita por intermédio desta razão, garantindo práticas seguras e controle dos materiais. Estas práticas são conhecidas como salvaguardas, que permitem demonstrar conformidade com regras internacionais. A utilização de um detector de Ge, com um divisor de tensão adicional e fontes de radiação certificadas, associados a procedimentos laboratoriais, permitiu obter medições de energias e probabilidades de emissões do ^{238}U , ^{233}U , ^{235}U e ^{239}Pu com grande exatidão na região espectral abaixo dos 300 keV, onde estes isótopos têm raios de emissão muito próximas. O confronto dos resultados obtidos neste trabalho, energia e probabilidade de emissão gama, com aqueles disponibilizados na literatura indica que a metodologia aplicada é apropriada para fornecer resultados consistentes, confiáveis e com incertezas reduzidas, constituindo-se numa ferramenta poderosa para a aplicação pretendida.

Palavras-chave

Espectrometria gama, razão isotópica, urânio, plutônio.

Introdução

A determinação da razão isotópica de elementos radioativos tem uma grande aplicação em diversos segmentos da ciência. A determinação da razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$, na vinicultura, serve para

quantificar a adição do açúcar ou do álcool de cana-de-açúcar no vinho. Esta mesma razão é utilizada na nutrição para estudo de metabolismo de aves e animais de pequenos portes. Na agricultura, a medida das razões entre os isótopos ^{14}N e ^{15}N , que são estáveis, e o radioisótopo ^{13}N é

^{*} Engenheiro (UGF), Mestre em Engenharia Nuclear (IME).

^{**} Físico (UERJ), Mestre em Física Nuclear (CBPF), Doutor em Biofísica (UFRJ/NYU), Professor do IME.

^{***} Engenheiro (UFPE), Mestre em Ciências e Tecnologia Nuclear (UFPE), Doutor em Engenharia Nuclear (COPPE/UFRJ), Pesquisador do IRD/CNEN.

^{****} Engenheiro (UFPR), Pesquisador do IRD/CNEN.

^{*****} Química Industrial (FRNL), Mestre em Físico-Química (UFRJ) e Doutora em Química (IME), Pesquisadora do IRD/CNEN.

empregada em pesquisas das transformações do nitrogênio nos agroecossistemas. Para a determinação destas razões, a principal técnica de análise é a espectrometria de massas (MS), embora a que utiliza emissão (EMS), a de ionização de elétrons (EI-MS) e a de indução por plasma (ICPMS) sejam atualmente, também, empregadas.

Por outro lado, na área nuclear as razões isotópicas dos elementos têm grande importância, abrangendo desde a pesquisa básica de física até a contabilidade do inventário de fontes de radiação para controle de materiais físséis com vista aos requisitos de salvaguarda internacional. Estas razões têm sido obtidas por diferentes ensaios experimentais que podem envolver espectrometria alfa, calorimetria, fontes de nêutrons, entre outros. Entretanto, nos últimos anos, algumas técnicas de espectrometria gama têm sido desenvolvidas com grande sucesso para aplicações em ecologia, indústria nuclear, metrologia, medicina nuclear etc.

As técnicas com espectrometria gama se caracterizam pela versatilidade, rapidez e baixo custo e vêm substituindo as mais tradicionais técnicas de análise. Além desses atributos, deve ser enfatizado que estas técnicas são classificadas como ensaios não destrutivos (END), o que amplia o campo de aplicação, pois se encontram aptas para realizar medições *in situ*, isto é, não necessitando que as amostras sejam, previamente, processadas em laboratório, como é o caso dos materiais físséis, uma vez que requisitos de segurança de trabalhadores ou do meio ambiente tornam obrigatório o confinamento deste material. ^[1]

Metodologia

O sistema espectrométrico utilizado é composto de um detector de Ge-HP tipo planar da

Canberra, modelo GX 2020 com eletrônica modular, necessária para a conformação de pulso, montada em um NIM. O armazenamento e tratamento de dados foram feitos por um computador tipo PC e pelo *software* Maestro versão 5.3 de fabricação da Ortec. Para a calibração do sistema foram utilizadas as fontes líquidas certificadas de ¹⁵²Eu, ^{166m}Ho, ¹³⁹Ce, ⁵⁷Co, ¹²⁵Sb e ¹⁰⁹Cd, cujos volumes de 5ml foram encapsulados em ampolas de vidro atividades listadas na tabela 1. Como amostras foram usadas as fontes ²³⁸U (natural), ²³³U e ²³⁹Pu.

Tabela 1 – Atividades e incertezas dos padrões utilizados (k = 1)

Nuclídeo	Atividade (kBq/g)	Incerteza (%)	Data referência
¹⁵² Eu	12,161	0,69	15/04/1997
^{166m} Ho	47,286	0,14	21/06/2000
¹³⁹ Ce	81,474	0,54	05/05/2004
⁵⁷ Co	142,102	0,83	05/05/2004
¹²⁵ Sb	16,600	0,90	14/05/2002
¹⁰⁹ Cd	92,663	1,40	05/05/2004

Este tipo de detector foi projetado para ter sua resolução e eficiência otimizadas para pulsos de baixa energia, na faixa de 3 keV a 300 keV, mas algumas das fontes de radiação utilizadas emitem radiações acima desta faixa. Para que estas energias fossem detectadas, foi projetado e utilizado um dispositivo divisor de tensão, apresentado em detalhe em outro trabalho. ^[2]

O sistema espectrométrico foi calibrado utilizando as fontes certificadas anteriormente citadas de ⁵⁷Co, ¹⁵²Eu e ^{166m}Ho. A relação canal *versus* energia é um parâmetro essencial em espectrometria por ser este um método relativo. A curva obtida foi ajustada por intermédio do programa Lab Fit, ^[3] conforme discutido em trabalho anterior. ^[2]

Como as fontes certificadas e as amostras a serem analisadas tinham atividades baixas, foi preciso estabelecer valores para dois importantes parâmetros: o limite de detecção (L_D) e a atividade mínima detectável (AMD), dissertados em um trabalho anterior.^[2]

Resultados e discussão

Cálculo de energias

As energias das radiações emitidas pelas amostras de ^{238}U , ^{233}U e ^{239}Pu foram obtidas pelo processo de interpolação dos resultados por meio de um programa de ajuste de dados.^[3] Como as medições eram realizadas usando tempos longos de contagens, gerava-se um efeito denominado de “deriva”. Este fenômeno provoca um ligeiro deslocamento no espectro, ocasionando uma diferença

nos ajustes de energia. A “deriva” foi corrigida por intermédio do programa de ajuste de dados, citado anteriormente. Posteriormente, para melhorar a precisão no ajuste de dados, o intervalo de energia dos 34 fotópicos, gerados pelas fontes de referência, foi dividido em segmentos de energias. A tabela 2 mostra os quatro intervalos de energias utilizados, bem como as equações de ajuste. A tabela 3 mostra os resultados obtidos por intermédio de um ajuste único para a faixa de energia de 15 keV até 1200 keV e aqueles obtidos pela divisão em intervalo de energias. Pode-se observar que o ajuste obtido pelo método da interpolação de segmentos é mais preciso. A validação do método foi realizada utilizando as equações usadas no método e as energias de referência. A tabela 4 mostra o resultado para uma faixa de energia, indicando que o ajuste não causa distorção nos valores.

Tabela 2 – Intervalos de energia, respectivas equações e parâmetros

Faixa de energia (keV)	Equação utilizada	Parâmetro A	Parâmetro B	Parâmetro C
1 a 122	$Y = A \cdot \text{EXP}(B \cdot X + C \cdot X^{**}0.5)$	2,472	-0,0054	0,304
122 a 244	$Y = (A+X)/(B+C \cdot X)$	3,361	3,222	-0,000008
184 a 280	$Y = A+B \cdot X+C/X^{**}2$	1,854	0,310	-174885,03
300 a 411	$Y = A \cdot X^{**}B$	0,318	0,997	-

Tabela 3 – Comparação dos valores obtidos utilizando uma única equação e equações por intervalo

Canal	Energia Referência (keV) [5]	EQ. Única 15 a 1250 (keV)	Diferença %	EQ. Por Intervalo (keV)	Diferença %	Intervalo (keV)
43,02	14,413	14,2703	0,98952	14,413	0	15 a 122
255,94	80,580	80,5126	0,08362	80,580	0	15 a 122
388,51	121,782	121,757	0,02041	121,780	0,002	15 a 122
389,51	122,061	122,068	-0,00595	122,061	0	15 a 122
435,85	136,474	136,485	-0,00829	136,474	0	122 a 244
783,47	244,698	244,634	0,02585	244,698	0	122 a 244
831,84	259,736	259,683	0,02044	259,740	-0,002	180 a 280
898,50	280,463	280,4217	0,01472	280,463	0	180 a 280
963,74	300,742	300,7188	0,00772	300,740	0,0007	300 a 411
1103,65	344,279	344,2467	0,00936	344,279	0	300 a 411
1172,77	365,768	365,7508	0,00469	365,783	-0,004	300 a 411
1318,52	411,117	411,0956	0,00522	411,116	0,0002	300 a 411

Tabela 4 – Validação no intervalo de 122 a 244 keV

Valores dos padrões [6]		Valores interpolados	
Energia (keV)	Incertezas (abs)	Energia (keV)	Incertezas (abs)
122,061	0,0001	122,065	0,0003
136,474	0,0002	136,474	0,0003
184,411	0,0011	184,411	0,0007
244,698	0,0008	244,698	0,0008

Para proceder à comparação com outros trabalhos encontrados na literatura, adotou-se o mesmo procedimento de estimativa de incerteza para cada energia determinada. Dessa forma, a incerteza total é expressa pela soma quadrática entre a estimativa de incerteza por causa do cálculo da abscissa representada pelo canal (tipo A) de cada energia e a incerteza em virtude das energias padrões (tipo B). As energias encontradas na amostra de ²³⁸U serão apresentadas na tabela 5 e comparadas com os valores disponíveis na literatura.^[6,7]

Os valores obtidos neste trabalho, nas diferentes faixas de energia, estão em completa

concordância com os disponibilizados recentemente na literatura,^[6,7] embora para algumas energias as probabilidades de emissão fossem bastante baixas. As incertezas nos resultados foram melhoradas, sendo que alguns valores foram reduzidos significativamente. Os valores abaixo de 60 keV sofrem bastante interferência, assim para a obtenção de melhores valores deveria ser aplicada a técnica de deconvolução de picos, o que não era o objetivo deste trabalho.

A mesma metodologia foi usada para a amostra de ²³⁹Pu. Os valores obtidos neste estudo foram comparados com os apresentados na literatura,^[6,7] conforme mostra a tabela 6. As energias obtidas, também, estão em concordância com os valores da literatura,^[6,7] porém muito mais precisos, como pode ser comprovado pelas incertezas obtidas.

As energias obtidas para amostra de ²³³U também estão compatíveis com aquelas recentemente publicadas,^[6,7] e as outras amostras apresentaram valores de incertezas bem menores do que as publicadas, conforme pode ser visto na tabela 7.

Tabela 5 – Comparação dos valores de energia para a amostra de ²³⁸U obtidos neste trabalho com os da literatura, em faixas de energia

Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV)Este trab.	Incerteza K = 1	Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV)Este trab.	Incerteza K = 1
Intervalo de 15 keV a 122 keV							
25,64	0,02	25,7193	0,0006	31,60	0,05	31,8058	0,0006
49,55	0,06	49,5184	0,0005	53,20	0,02	53,3275	0,0005
63,29	0,02	63,3319	0,0004	72,70	0,20	72,8080	0,0003
113,50	0,10	113,0087	0,0003	120,35	0,05	120,5616	0,0003
Intervalo de 122 keV a 200 keV							
131,30	0,01	131,3039	0,0003	140,76	0,04	140,7389	0,0003
143,76	0,02	143,7201	0,0004	152,71	0,02	152,7124	0,0004
163,33	0,02	163,3077	0,0006	182,61	0,05	182,6308	0,0008
185,72	0,05	185,7092	0,0009				
Intervalo de 200 keV a 1200 keV							
202,31	0,02	202,3178	0,0004	205,31	0,01	205,3054	0,0004
241,20	0,30	241,9535	0,0005	258,26	0,05	258,2702	0,0006
742,81	0,03	742,8519	0,0021	766,40	0,2	766,1966	0,0024
786,27	0,03	786,2140	0,0028	1001,03	0,03	1001,059	0,0029

Tabela 6 – Comparação dos valores de energia para a amostra de ²³⁹Pu obtidos neste trabalho com os da literatura

Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV) Este trab.	Incerteza K = 1	Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV) Este trab.	Incerteza K = 1
38,661	0,002	38,7098	0,0008	51,624	0,001	51,6335	0,0008
94,666	–	94,7599	0,0006	103,060	0,0300	102,9601	0,0005
129,296	0,003	129,3011	0,0003	161,450	0,0150	161,3861	0,0010
203,55	0,015	203,6012	0,0006	332,845	0,0050	332,8331	0,0007
375,054	0,003	375,1619	0,0003	380,191	0,0060	380,2405	0,0003
413,713	0,005	413,7503	0,0003				

Tabela 7 – Comparação dos valores de energia para a amostra de ²³⁸U obtidos neste trabalho com os da literatura

Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV) Este trab.	Incerteza K = 1	Energia (keV)[6,7]	Incerteza K = 1	Energia (keV) Este trab.	Incerteza K = 1
25,318	0,004	25,3183	0,0002	29,192	0,001	29,2260	0,0002
42,440	0,200	42,4581	0,0003	66,122	0,005	66,1503	0,0002
71,819	0,002	71,8438	0,0001	74,570	0,050	74,8151	0,0001
97,134	0,001	97,1258	0,0001	135,36	0,030	135,3661	0,0001
148,156	0,008	148,1471	0,0001	154,77	0,120	154,3510	0,0001
156,140	0,16	156,4915	0,0001	164,522	0,002	164,5714	0,0001
187,969	0,002	188,0271	0,0001	208,171	0,002	208,1942	0,0003
245,345	0,002	245,3642	0,0003	248,726	0,006	248,743	0,0003
261,920	0,05	261,9565	0,0003	268,660	0,030	268,6675	0,0003
274,728	0,010	274,7126	0,0003	278,111	0,008	277,8207	0,0003
288,033	0,005	288,0474	0,0003	291,354	0,004	291,3578	0,0003
317,160	0,010	317,1438	0,0003	320,541	0,005	320,5910	0,0003
323,420	0,050	323,4036	0,0003	336,61	0,020	336,6264	0,0003

Assim, pode-se observar que os resultados atestam a qualidade das medições obtidas por meio da metodologia utilizada neste trabalho.

Para calcular as probabilidades de emissão de radiação gama pelas amostras, foi necessário utilizar uma equação que considera a razão isotópica do urânio natural, como mostra a equação 1. Esta técnica tem aceitação internacional e vem sendo empregada em muitos laboratórios, com sua eficácia comprovada por intermédio de inúmeras intercomparações.^[8]

$$P_{\gamma(8)} = \left(\frac{C_{(8)}}{C_{(5)}} \right) * \left(\frac{T_{1/2(8)}}{T_{1/2(5)}} \right) * \left(\frac{n_{(5)}}{n_{(8)}} \right) * \left(\frac{\varepsilon_{\gamma(5)}}{\varepsilon_{\gamma(8)}} \right) * P_{\gamma(5)}$$

onde:

Subscrito (5) expressa os parâmetros relacionados ao ²³⁵U;

Subscrito (8) expressa os parâmetros relacionados ao ²³⁸U;

n(t) número de átomos do nuclídeo analisado contido na amostra;

c é o número de contagens do fotópico analisado;

T_{1/2} é a meia-vida do nuclídeo;

ε é a eficiência relativa para a energia do fotópico;

P_γ é a probabilidade de emissão da energia analisada.

Os valores de c_5 e c_8 são extraídos dos espectros e os valores de eficiências $e_{g(5)}$ e $e_{g(8)}$ são retirados da curva de calibração para a mesma geometria.

P_γ do ^{235}U

A determinação das atividades do ^{235}U e ^{238}U por espectrometria gama é complexa porque o ^{238}U em seu decaimento emite somente duas energias gama, 49,55 keV e 113,5 keV, e as mesmas apresentam probabilidades baixas de emissão com bastante interferência. Dessa forma, a obtenção de uma área bem definida para o fotópico de interesse se tornaria impossível sem a ajuda de um programa de deconvolução, o qual não foi utilizado neste trabalho, assim foi preciso utilizar outro procedimento.

A amostra de ^{238}U natural está em equilíbrio radioativo secular, pois a sua meia-vida é longa quando comparada com aquelas de seus produtos de decaimento. O mesmo pode ser dito para a amostra de ^{235}U . Considerando que na confecção da amostra não houve fracionamento químico entre o ^{238}U e ^{234}U , e por causa da meia-vida curta do ^{234}Th e ^{234}Pa , pode-se considerar a formação de um único par pai-filho (^{238}U - ^{234}U). O mesmo não se pode afirmar com relação ao ^{234}U e ^{226}Ra . Diante desse fato usou-se o decaimento do ^{234}Pa para calcular indiretamente a atividade do ^{238}U . No decaimento do ^{234}Pa , existem três energias com probabilidades acentuadas, que são: 258,19 keV; 766,27 keV e 1001,03 keV, sendo o fotópico de energia de 1001,03 keV a mais representativa, obtendo-se para a atividade o valor de $32,83 \text{ Bq} \pm 1,7\%$. Para achar o valor da atividade do ^{235}U , usou-se a energia de 185,72 keV e o valor encontrado foi $1,5 \text{ Bq} \pm 1,5\%$. Esses valores permitiram determinar a relação de atividade de $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ como igual a 0,046, valor idêntico ao obtido para razão isotópica do urânio natural.

Para determinar as probabilidades de emissão gama, usou-se a média ponderada dos valores obtidos correspondentes às energias 163,33 keV, 185,72 keV, 202,11 keV e 205,31 keV, que são os mais expressivos do decaimento do ^{235}U , e, pela equação 1, foi possível encontrar valores de P_γ . Esses valores são comparados, na tabela 8, com os valores publicados.^[7] Algumas energias foram omitidas da tabela por serem provenientes do produto entre ^{235}U e ^{238}U e, em virtude das interferências, não foi possível estimar os seus P_γ . As energias de 25,64 keV, 72,75 keV e 84,21 keV, pertencentes ao ^{231}Th . Essas energias sofrem interferências do ^{231}Pa e dos raios X característicos do chumbo. A energia proveniente do ^{235}U de 109,16 keV sofre inúmeras interferências de raios X e raios gama, dificultando a obtenção de uma boa área para cálculo, por isso não consta nesta tabela. O fotópico de 140,76 keV apresenta baixa probabilidade e tem a interferência do ^{234}Pa nas energias de 140,15 keV e 140,91 keV. As energias 182,61 keV, 194,94 keV, 202,11 keV e 221,38 keV apresentam baixas probabilidades de emissão, assim precisam de um número alto de contagens para a obtenção de um bom fotópico; desta maneira, seria necessário utilizar uma amostra com maior atividade.

Tabela 8 – Valores de P_γ do ^{235}U comparadas com os da literatura

Origem	Energia (keV)	P_γ [7]	Inc %	P_γ Este trab.	Inc. %
^{235}U	140,7389	0,0022	9,091	0,0023	3,221
	143,7201	0,1096	0,730	0,1057	0,674
	163,3077	0,0508	0,787	0,0513	0,713
	182,6308	0,0030	5,882	0,0037	2,279
	185,7092	0,5720	0,874	0,5726	0,676
	194,9273	0,0063	1,587	0,0060	1,518
	202,3178	0,0108	1,852	0,0102	1,115
	205,3054	0,0501	0,998	0,0524	0,722

No decaimento do ^{235}U , existem quatro energias com probabilidades de emissão elevadas e que não sofrem tantas interferências, as quais podem ser usadas para calcular os P_γ em relação às outras energias do ^{235}U e os P_γ do ^{238}U por meio da equação 1. A energia de 143,76 keV é usada no cálculo da razão isotópica, pois possui boa probabilidade e aparece isolada no espectro. A energia de 163,33 keV, por ser considerada limpa e mesmo tendo uma probabilidade de emissão baixa, pode ser usada para o cálculo dos P_γ do ^{238}U . A energia de 185,72 keV é a mais usada para o cálculo, mesmo sofrendo interferência da linha de 186,21 keV proveniente do ^{226}Ra . Ela apresenta uma probabilidade de emissão alta, sendo usada no cálculo das demais energias. Por meio da subtração da radiação de fundo, é possível neutralizar a interferência proveniente do ^{226}Ra . Uma vez que é difícil medir as energias provenientes do ^{226}Ra , 186 keV, por exemplo, pode-se usar as energias 295,2 keV, 351,9 keV, produtos dos decaimentos do ^{214}Pb , e 609,3 keV, do ^{214}Bi . Isso só foi possível uma vez que se manteve a ampola contendo a amostra fechada por um período maior que 45 dias, garantindo o equilíbrio. Dessa forma, as atividades do ^{214}Pb e ^{214}Bi refletem a atividade do ^{226}Ra .^[9] Para estimar o número de contagens na energia de 186,2 keV do ^{226}Ra , mediu-se as contagens das áreas dos picos referentes às energias de 295,2 keV, 351,9 keV, do ^{214}Pb , e 609,3 keV, do ^{214}Bi , calculando a média ponderada da atividade. O valor encontrado para 186,2 keV é descontado do valor total do duplete, formado junto com o 185,7 do ^{235}U .^[10]

P_γ do $^{234\text{m}}\text{Pa}$

A probabilidade de emissão gama do ^{238}U pode ser calculada utilizando-se a razão isotópica

deste com a do ^{235}U . E como visto no item anterior, existem três energias com possibilidades de uso. Porém, em virtude de problemas de fortes interferências nas linhas de baixa energia (49,55 keV e 113,50 keV), estas linhas não foram determinadas. Porém, visualizando o espectro do ^{238}U , aparecem algumas linhas provenientes do decaimento de seu descendente, o $^{234\text{m}}\text{Pa}$, cujas energias de 766,41 keV e 1001,03 keV não sofrem interferência de outras energias. As probabilidades de emissão deste nuclide foram obtidas utilizando-se a energia de 185,7 keV, e a tabela 9 mostra os resultados obtidos e compara-os com os valores fornecidos na literatura.

Tabela 9 – Comparação dos P_γ do $^{234\text{m}}\text{Pa}$ obtidos e os publicados

Origem	Energia (keV)	P_γ [7]	Inc %	P_γ [6]	Inc %	P_γ Este trab.	Inc. %
^{234}Pa	786,22	0,00210	14,29	0,0033	1,90	0,00331	1,68
	1001,06	0,00590	13,56	0,00839	1,43	0,00844	1,56

P_γ do ^{233}U

Para a determinação das probabilidades de emissão deste nuclide artificial, foi utilizada a mesma metodologia adotada anteriormente. Os valores obtidos para as nove linhas consideradas mostraram uma boa concordância com os valores encontrados na literatura, a exceção de algumas linhas que possuem probabilidades de emissão baixíssimas. As incertezas obtidas, também, apresentam valores consistentes e para algumas linhas até melhores do que os valores compilados por outros autores, conforme pode ser observado na tabela 10.

Tabela 10 – Comparação entre os resultados dos P_{γ} do ^{233}U publicados na literatura e os obtidos neste trabalho

Energia (keV)	P_{γ} [6,7]	Inc %	P_{γ} Este trab.	Inc. %
42,458	0,000862	1,51	0,001062	0,69
97,126	0,000200	15,00	0,000225	0,54
164,571	0,000062	0,80	0,000074	0,79
188,027	0,000019	15,79	0,000023	1,41
208,194	0,000023	1,31	0,000023	1,49
245,364	0,000036	0,83	0,000039	1,20
248,743	0,000014	2,14	0,000016	2,28
317,144	0,000078	0,90	0,000076	0,94
320,591	0,000029	10,34	0,000030	1,55

P_{γ} do ^{239}Pu

Para a determinação das probabilidades, foram utilizados valores relativos considerando a linha de 51,62 keV como sendo a referência, visto que esta foi determinada utilizando a curva de eficiência. Esta linha possui valores publicados, os quais aparecem sem discrepâncias e com incertezas bastante reduzidas. Os valores determinados com as respectivas incertezas, embora consistentes, mostraram-se um pouco mais elevados, em relação aos dados publicados, tabela 11. Todas as intensidades consideradas são muito baixas. Isto pode indicar a necessidade de aumentar o tempo de contagem das amostras ou utilizar uma fonte de maior atividade. Esta última opção é a mais coerente, pois o tempo de duração das contagens para plutônio foi elevado, em torno de três dias.

Conclusão

Esse trabalho foi realizado no sentido de aumentar a precisão dos parâmetros nucleares aplicados aos métodos não-destrutivos de análise

Tabela 11 – Comparação entre os resultados do P_{γ} do ^{239}Pu publicados e deste trabalho

Energia (keV)	P_{γ} [6,7]	Inc %	P_{γ} Este trab.	Inc. %
38,7098	0,0001044	2,01	0,000116	1,91
51,6335	0,0002694	0,97	0,000269	1,77
94,7599	0,0000360	1,11	0,000039	1,96
129,3011	0,0000631	0,63	0,000067	1,81
375,1619	0,0000155	1,35	0,000016	6,34
413,7503	0,0000147	1,43	0,000016	6,56

das razões isotópicas de radionuclídeos de urânio e plutônio. A introdução de um dispositivo divisor de tensão ao sistema espectrométrico e da metodologia aplicada, que incluiu um programa de ajuste de dados não linear, permitiu obter resultados consistentes com os publicados em literatura recente, entretanto com incertezas mais reduzidas.

Os valores de probabilidade de emissão encontrada para isótopos de U e Pu apresentam incertezas reduzidas, à exceção do ^{238}U , em que se faz necessário empregar um programa para deconvolução de picos interferentes na região de baixa energia.

Os resultados para as linhas do ^{234}Pa (produto do ^{238}U) foram coerentes e indicaram uma redução acentuada para a incerteza nas probabilidades de emissão, quando comparados com os valores apresentados em compilações.^[6,7]

A relação de atividade $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ foi determinada como igual a 0,046, valor idêntico ao obtido para razão isotópica do urânio natural.

As linhas estudadas juntamente com a curva de eficiência construída podem ser utilizadas não apenas na melhoria dos sistemas de controle de segurança e salvaguardas em instalações radioativas, como também na determinação da razão isotópica de materiais contendo isótopos de urânio e plutônio.



Referências

- [1] INOVAÇÃO TECNOLÓGICA, 2006. <http://www.inovaçãotecnologica.com.br/alerta.php?msg=2>
- [2] DA SILVA, R.L. et al. Alteração da faixa de detecção e calibração de um sistema de espectrometria gama. *Revista Militar de Ciência e Tecnologia*. 3º Quadrimestre de 2007.
- [3] SILVA, W.P. e SILVA, C.M.D.P.S. 2003-2004. LAB Fit Ajuste de Curvas (Regressão não-Linear e Tratamento de Dados). V 7.2.14c, online, http://www.angelfire.com/rnb/labfit/index_p.htm.
- [4] LAMOISE, H. Ajustement de Relations, Polynomies Appliqués à la spectrométrie g. Rapport de Stage au LMRI, Saclay, France: 1995
- [5] MOREL, J. e ESARDA NDA-WG Members. 2002. Library of Uranium and Plutonium Spectra. Note Technique, DIMRI / LNHB.
- [6] LE LABORATORIE NATIONAL HENRI BECQUEREL. 2006. NUCLEIDE. *Gamma and Alpha Library* [online]. <http://laraweb.free.fr/>
- [7] NATIONAL NUCLEAR DATA CENTER. Decay Radiation Search [online], 2006. http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indx_dec.jsp.
- [8] SAMPSON, T.E. e PARKER, J.E. Applications of Gamma-ray Spectrometry in the Quantitative Non destrructive Assay of Special Nuclear Materials. *Nuclear Instruments and Methods*,. V. 18, p. 177-183. 1990.
- [9] SANTOS, R.N. Implantação da Metodologia de Espectrometria Alfa Para a Determinação de Isótopos de U e Th Em Rochas Ígneas: Aplicação ao Estudo do Desequilíbrio Radioativo na Ilha da Trindade. Tese (Doutorado Departamento de Geofísica) – Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo. 2001.
- [10] DELGADO, J.U.; MOREL, J. e ETCHEVERRY, M. Measurements of Photon Emission Probabilities form the Decay of ²²⁶Ra and Daughters. *Applied Radiation and Isotops*, 56, 137-143. 2002



BIBLIOTECA DO EXÉRCITO EDITORA

Coleção General Benício

Geopolítica e o Futuro do Brasil

Carlos Patricio Freitas Pereira

O ensaio considera a situação da Amazônia e do Pantanal ante a globalização, a necessidade de “integrar, ocupar, explorar e preservar” as regiões.