



22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

MÉTODO DE PREPARO DE FONTES DE ^{233}U PELA TÉCNICA DE EVAPORAÇÃO
COM TETRAETILENOGLICOL PARA ESPECTROMETRIA ALFA

JORGE EDUARDO DE SOUZA SARKIS
MAURÍCIO HIROMITU KAKAZU
MARILENE MORELLI SERNA LEAL

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES - SP
DEPARTAMENTO DE PROCESSOS ESPECIAIS
CAIXA POSTAL 11.049 - PINHEIROS - 05499 - SÃO PAULO

SUMÁRIO

Apresenta-se um método de preparação de fontes de ^{233}U para espectrometria alfa pela técnica de evaporação direta, usando o agente orgânico tetraetilenoglicol (TEG).

Foram estudadas as condições experimentais ótimas para a obtenção destes filmes, tais como: quantidade de ^{233}U depositado, o material de suporte, tempo de evaporação e a relação TEG/amostra.

As fontes alfa obtidas apresentaram filmes homogêneos e com boa aderência no material do suporte. Os espectros alfa obtidos definiram uma resolução de 20 KeV (FWHM), com precisão de cerca de 10%.

ABSTRACT

A method is presented for the preparation of ^{233}U sources for alpha spectrometry by direct evaporation technique using tetraetilenoglicol (TEG) as a spreading agent.

The optimum experimental conditions such as: quantity of ^{233}U , supporting materials, evaporation time and ratio of TEG/sample, to obtain this film have been studied.

The alpha sources obtained were well homogeneous and with good adherence on to the discs. The spectrum shows resolution of 20 KeV (FWHM) with a precision of about 10%.

1. INTRODUÇÃO

No ciclo do combustível nuclear a determinação quantitativa de elementos radioativos é de grande importância quer sob aspectos de controle de processos, quer sob aspectos de monitoração ambiental.

Entre as técnicas mais utilizadas nos laboratórios analíticos, a técnica de espectrometria alfa tem encontrado grande aplicação, tanto na determinação qualitativa e quantitativa de isótopos de elementos actinídeos (1,2,3,4,5), como no estudo de parâmetros nucleares tais como determinação de meia vida de radionuclídeos alfa emissores, determinação de seções de choque etc...

Basicamente, a técnica consiste na interação entre a partícula alfa e um detetor gerando desta maneira um impulso elétrico, que através de equipamentos eletrônicos associados ao detetor é classificado em função de sua energia.

Uma das maiores dificuldades no seu emprego reside nos procedimentos de preparo de amostras de modo a obter-se filmes finos e uniformes evitando-se com isto problemas de auto absorção. Uma das técnicas mais utilizadas para o preparo de amostras para espectrometria alfa é a técnica de evaporação.

A técnica de evaporação é relativamente simples e extremamente útil em análises de rotina e controle de processos devido a rapidez com que as amostras são analisadas e a possibilidade de seu preparo de forma quantitativa.

Basicamente a técnica consiste da evaporação direta da solução contendo os radionuclídeos emissores alfa sobre um suporte, utilizando-se geralmente de uma lâmpada de raios infravermelhos como fonte de calor.

A qualidade das fontes obtidas por esta técnica depende do volume de solução evaporada, da concentração do elemento na solução, do tempo de evaporação e das características do substrato utilizado como suporte nos quais as amostras são preparadas. Depósitos não uniformes, devido ao acúmulo de amostra em regiões específicas do suporte, pontos de aglomeração de partículas sólidas, devido a imperfeições na superfície do suporte, formação de filmes de grande espessura, devido a elevada concentração do nuclí-

deo de interesse na solução de análise, acentuam os problemas de auto absorção comprometendo a qualidade dos ensaios.

O objetivo deste trabalho consiste em descrever uma metodologia de preparo de amostras para espectrometria alfa por meio da técnica de evaporação, utilizando-se do reagente orgânico tetraetilenoglicol (TEG) como agente de dispersão da parte sólida no filme formado.

2. PARTE EXPERIMENTAL

O procedimento experimental adotado consistiu nas seguintes etapas:

- preparo de um suporte com superfície lisa homogênea com diâmetro de cerca de 2,5cm;
- limpeza e desengorduramento do suporte com álcool etílico;
- definição de uma área de deposição de cerca de 1,0cm de diâmetro por meio de um agente delimitante;
- deposição de solução amostra contendo 96% em ^{233}U , e solução de tetraetilenoglicol, na área definida, por meio de micropipeta. Tomando-se um volume de solução, variável de 10 a 50 microlitros;
- aquecimento das amostras por meio de lâmpada de raios infravermelhos imprimindo ao conjunto um movimento rotativo suave de cerca de 10 rotações por minuto;
- calcinação da amostra a 700°C em um calcinador;
- análise dos espectros alfa em um espectrômetro alfa ORTEC modelo 576, com detetores barreira de superfície tipo silício, com área de contagem efetiva de 450mm^2 , acoplado a uma analisador multicanal ORTEC modelo 6240 e um registrador gráfico XY HP.

As soluções amostra foram preparadas a partir de uma solução de urânio enriquecida em 96% no seu isótopo ^{233}U de concentração no intervalo de $0,005\text{mg } ^{233}\text{U/g}$ de solução a $0,4\text{mg } ^{233}\text{U/g}$ de solução, previamente calibradas por meio da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa.

Foram estudados os seguintes parâmetros:

- suportes: aço inoxidável, cerâmico e vidro
- agentes delimitantes: tinta esmalte e tinta verniz
- quantidade de urânio na amostra: 0,1 microgramo a
8 microgramos de ^{233}U
- concentração do tetraetilenoglicol
- relação fase orgânica/fase aquosa
- tempo de evaporação.

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na tabela 1 são apresentados os resultados finais obtidos para as condições experimentais estudadas.

Tabela 1. Parâmetros finais para preparo de amostras

Suporte	Pastilha cerâmica
Agente delimitante	Tinta esmalte de unhas
Proporção TEG: amostra	1:2
Ordem de colocação	Amostra, pré secagem, TEG
Distância da lâmpada	5 centímetros
Calcinação	700°C

A utilização de discos cerâmicos mostrou-se adequada não somente devido ao seu baixo custo, facilidade de manipulação e a não necessidade de qualquer tratamento prévio como também por permitir a obtenção de filmes homogêneos bem aderentes e de forma reprodutiva.

O tempo de evaporação foi controlado pela distância entre o disco e a lâmpada de raios infravermelhos de modo a permitir a formação do filme de forma rápida e reprodutiva. Estas condições foram obtidas a 5cm de distância com a qual a fase líquida demora cerca de 20 minutos até a evaporação total. Em seguida, o disco foi calcinado a 700°C, visando eliminação da fase orgânica.

A função do agente delimitante consiste na definição da área de deposição garantindo reprodutibilidade na geometria do filme formado. Dos agentes delimitantes utilizados a tinta es-

malte foi o que apresentou melhores resultados podendo ser facilmente eliminada junto com o TEG durante a calcinação do disco.

Procurou-se determinar o efeito da concentração do TEG no tempo de secagem das amostras. Com este fim realizaram-se ensaios com soluções em diferentes concentrações de TEG e diferentes proporções entre a fase aquosa/fase orgânica. As melhores condições foram encontradas com uma solução a 10% de TEG depositado no disco numa proporção de 1:2 em relação a amostra.

Na Figura 1 é apresentado um espectro alfa para uma amostra típica preparada segundo o método proposto.

A resolução obtida para o espectro alfa foi cerca de 20 KeV (FWHM). Este resultado demonstra a qualidade da metodologia proposta. Resoluções normalmente obtidas pela aplicação de igual técnica, porém utilizando suporte de aço inoxidável polido mostram valores entre 18 a 20 KeV (FWHM) (5).

Fixando-se os parâmetros acima, foram preparadas sete amostras para determinação de ^{233}U , com base em peso, no intervalo de 1 a 8 microgramas. A partir destes resultados construiu-se a reta de calibração (figura 2), relacionando-se as contagens (cps) da área integrada sob o pico de 4,82 MeV do ^{233}U em função da massa de ^{233}U depositada. A eq. representativa é dada abaixo:

$$\text{massa} = 0,00299 \times \text{contagens} \quad (1)$$

A equação acima apresentou um coeficiente de correlação linear de 0,9959.

Na tabela 2 são apresentados os dados experimentais e aqueles estimados pela equação 1.

Observa-se que os desvios percentuais relativos aos dados estimados são de no máximo 9%, que é um valor aceito dentro das limitações da técnica, uma vez que o rendimento de deposição é menor que 100% e variável (5).

De modo a verificar a reprodutibilidade do método foram preparadas amostras em triplicata, com base no volume de solução de urânio, utilizando-se para isso uma micropipeta de 20 microlitros calibrada.

Na tabela 3, são apresentados os resultados obtidos indi-

vidualmente para cada amostra. A precisão obtida no valor do número de contagens para um intervalo de massa de ^{233}U depositada de 0,1 a 8 microgramos, é de até 9%. Pela interpolação dos valores médios de contagens na reta, obtem-se os valores de massa estimados os quais apresenta um desvio relativo de 6 a 10% em relação aos valores esperados, calculados a partir de dados do volume e concentração da solução de urânio utilizados.

4. CONCLUSÃO

A partir dos resultados acima apresentados, concluiu-se que a técnica de evaporação com o agente orgânico TEG produz filmes de urânio de excelente qualidade, de forma rápida, eficiente e de baixo custo, podendo por estas características ser utilizada rotineiramente em análises de ^{233}U a nível de traços em soluções de processo.

5. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AGGARWL, S.K.; DUGGAL, R.K.; JAIN, H.C. - Alpha spectrum evaluation method for the simultaneous determination of plutonium, americium and curium. In: J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, 107(5):263-277, Nov. 1986.
2. PARUS, J.; RAAB, W. - Analysis of uranium and plutonium materials by radiometric methods. In: Appl. Radiat. Isot. 39(4):315-322, Sep. 1987.
3. SILL, C.W. - Determination of thorium and uranium isotopes in ores and mill tailings by alpha spectrometry. In: Anal. Chem. 49(4):618-621, Apr. 1977.
4. VECERNIK, J.; SUS, F.; KRTIL, J.; LENGYEL, J.; KNOBLOCH, V. - Determination of the americium and curium content in irradiated fuel. In: Radiochem. Radioanal. Letters 47(5):275-285, Mar. 1981.
5. GLOVER, K.M. - Alpha particle spectrometry and its applications. In: J. Appl. Radiat. Isot. 35(4):239-250, 1984.

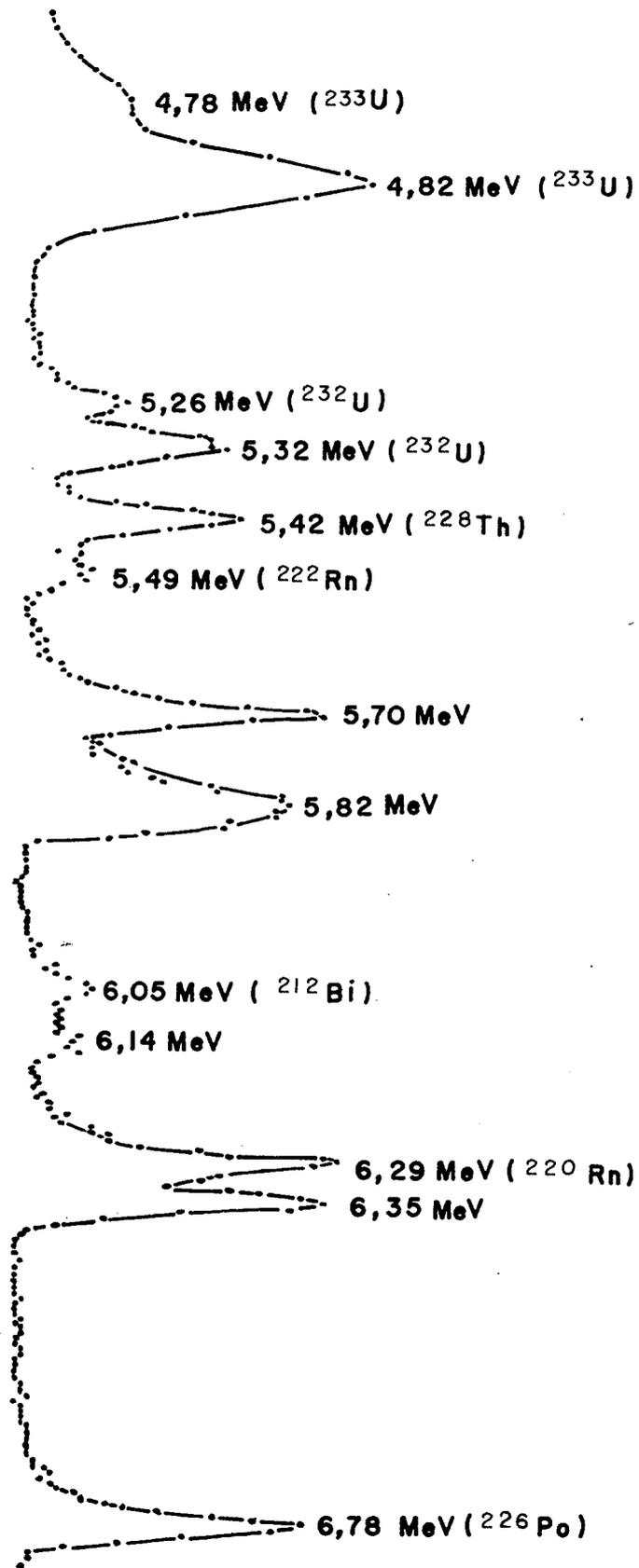
Tabela 2. Contagens alfa correspondentes as massas U calculadas, massas de ^{233}U estimadas e o desvio relativo % a massa estimada.

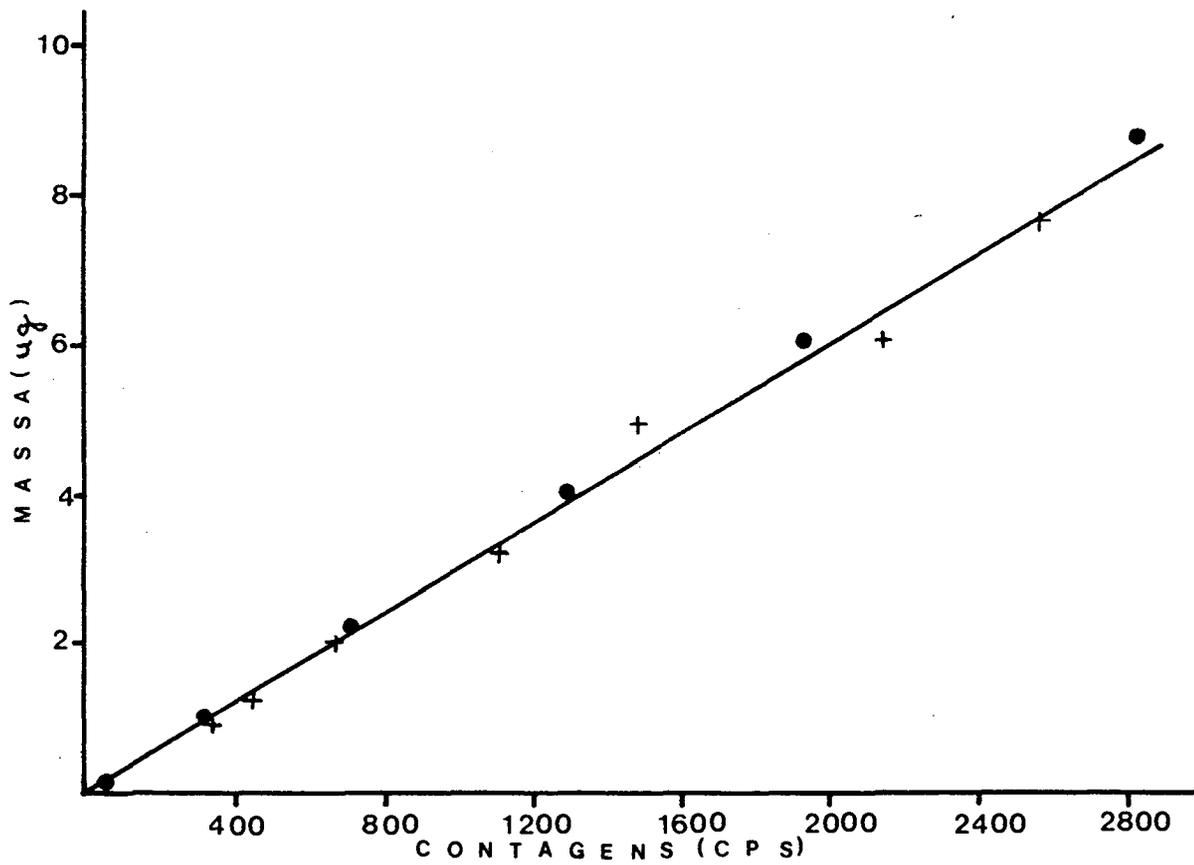
AMOSTRA (num.)	CONTAGENS (cps)	^{233}U (μg)	^{233}U estimada (μg)	DESVIO RELATIVO %
1	335	0,93	1,00	+3,0
2	437	1,24	1,30	+4,8
3	653	2,03	1,95	-4,3
4	1010	3,20	3,02	-6,1
5	1508	4,92	4,50	-9,1
6	2133	6,02	6,37	+5,5
7	2568	7,64	7,67	+0,4

Tabela 3. Reprodutibilidade - Interpolação de valores de contagem (cps) na reta de calibração

AMOSTRA	CONT. (cps)	CONT. MÉDIA (cps)	^{233}U estim. (μg)	^{233}U esperado (μg)	DESVIO RELATIVO % AO ESPERADO
1a	42	43	0,13	0,14	+7,1
1b	46	(6%)			
1c	42				
2a	283	301	0,90	0,98	+8,2
2b	310	(5%)			
2c	311				
3a	764	704	2,10	2,30	+8,7
3b	713	(9%)			
3c	636				
4a	1243	1281	3,83	4,14	+7,5
4b	1351	(5%)			
4c	1250				
5a	1900	1924	5,75	6,06	+5,1
5b	1921	(1%)			
5c	1952				
6a	2894	2797	8,36	8,86	+5,6
6b	2731	(3%)			
6c	2766				

FIG. 1 ESPECTRO ALFA DE UMA FONTE DE ^{235}U PREPARADA PELO MÉTODO DA EVAPORAÇÃO COM T.E.G





+ PONTOS DE CALIBRAÇÃO

● PONTOS ESPERADOS

FIG.2 RETA DE CALIBRAÇÃO PARA FONTES DE ^{233}U
PREPARADAS PELA EVAPORAÇÃO COM TEG