

**MEDICION DE ENRIQUECIMIENTO POR
ESPECTROMETRIA GAMMA**

Oswaldo A. Cristallini

15 de Setiembre de 1997

El objetivo de este trabajo es introducir a los inspectores involucrados en las Inspecciones de Salvaguardias efectuadas por la ABACC, en el principio de medición de enriquecimiento a espesor infinito y en los parámetros fundamentales que afectan la exactitud de las mediciones, para una mejor interpretación de los resultados obtenidos con el medidor de enriquecimiento.

1. PRINCIPIOS DE MEDICION DE [U-235] POR ESPECTROMETRIA γ

1.1 INTRODUCCION

1.2 ESPECTRO GAMMA DEL URANIO

1.3 TASA DE EMISION DE FOTONES γ DE 186 keV DEL U-235

1.4 ESPESOR QUASI-INFINITO DE UNA MUESTRA

1.5 PARAMETROS CRITICOS DE MEDICION

1.6 MATERIALES DE REFERENCIA (MR)

2. PROPIEDADES DEL MATERIAL DE LA MUESTRA QUE AFECTAN LA EXACTITUD DE LA MEDICIONES

2.1 TAMAÑO DE LA MUESTRA

2.1.1 Espesor quasi-infinito en todas direcciones

2.1.2 Tamaño quasi-infinito para muestras cilíndricas

2.1.3 Masa mínima de muestra

2.1.4 Dimensiones recomendadas del colimador

2.2 HOMOGENEIDAD DE LA MUESTRA

2.2.1 Requerimientos de homogeneidad para medidas de enriquecimiento representativas de toda la muestra.

2.2.2 Inhomogeneidad en forma de una capa superficial de muestra

2.3 COMPOSICION DE LA MATRIZ DE LA MUESTRA

2.3.1 Compuestos de U y estequiometría

2.3.2 Impurezas presentes en la muestra

2.3.3 Contenido de humedad

2.4 INTERFERENCIA DE RADIACION GAMMA

2.4.1 Interferencia por decaimiento del U-238

3. INFLUENCIA DE LA GEOMETRIA DE CONTAJE Y RECIPIENTE DE LA MUESTRA

3.1 GEOMETRIA DETECTOR-COLIMADOR

3.2 ATENUACION DE FOTONES POR LA PARED DEL CONTENEDOR DE LA MUESTRA

3.3 DEFORMACIONES EN LA PARED DEL CONTENEDOR Y POSICIONAMIENTO DE LA MUESTRA

1. PRINCIPIOS DE MEDICION DE [U-235] POR ESPECTROMETRIA γ

1.1 INTRODUCCION

La medición de enriquecimiento en U-235 por espectrometría gamma en materiales que contienen U, es una de las técnicas de análisis no-destructivo más ampliamente utilizada. La medición está basada en la proporcionalidad casi directa entre la intensidad de la radiación gamma de 186 kev del U-235 y su concentración en la muestra.

El requisito esencial de esta técnica es que el detector gamma "vea" a la muestra a través de un colimador elegido de forma tal, que el camino recorrido por el fotón gamma, dentro del volumen de muestra que ve el detector, sea de aproximadamente 6 veces el camino libre medio. El detector no debe ver los bordes del recipiente. Si esto se cumple, entonces la actividad gamma de la muestra es directamente proporcional al enriquecimiento en U-235.

El volumen visible de la muestra, independientemente del enriquecimiento, está determinado por la geometría detector-colimador y por el camino libre medio de la radiación gamma de 186 kev en el material de la muestra.

Si bien esta técnica de medición es menos precisa que la de espectrometría de masa, bajo condiciones muy reproducibles y haciendo las mediciones de la muestra relativas a un patrón de referencia se pueden alcanzar valores muy cercanos a esta última, dependiendo de la estadística de conteo.

1.2 ESPECTRO GAMMA DEL URANIO

El U-235 decae por emisión α a un nivel excitado del Th-231, el cual alcanza el nivel fundamental emitiendo rayos γ de diferente energía (tabla 1.1)

U-235 $\rightarrow$ α $\rightarrow$ Th-231(Nivel excitado) $\rightarrow$ Th-231 (Nivel cero) + γ (E1, E2,)

En la figura 1.1 se muestra el espectro gamma de una muestra de U3O8 enriquecido, tomado con un detector de Ge de alta resolución. El pico gamma más prominente del espectro es el de 185,7 kev correspondiente al U-235, con una probabilidad de emisión (P_{185}) de 0.575 ± 0.009 .

En la figura 1.2 se muestran los espectros gamma de muestras de U de diferentes enriquecimientos, tomados con detector de NaI, sin filtro de Cd. Se puede observar en ellos que la relación entre las intensidades del pico de 186 kev y el pico compuesto de rayos X del Th-234 (62,97+63,35+92,47+92,82 kev), aumenta con el enriquecimiento. En los espectros γ de U de bajo enriquecimiento el componente más intenso lo constituye el pico compuesto de rayos X provenientes del Th-234. Esto sin embargo, solamente se cumple cuando el U está en equilibrio radioactivo, como se puede observar en la figura 1.3 (1) y no se interpone ningún absorbedor entre la muestra y el detector.

Las energías y tasas de emisión de radiación gamma que siguen al decaimiento del U-235 son características de este isótopo y pueden ser usadas en la determinación no destructiva, cuali y cuantitativa de U-235 en materiales que contienen U.

1.3 TASA DE EMISION DE FOTONES γ DE 186 kev DEL U-235.

El número de fotones gamma de 186 kev emitidos por segundo y por gramo de U-235 (N_M) está dado por la siguiente expresión:

$$N_M = N_A \cdot A / M_{235} = (4.60 \pm 0.07) \cdot 10^4 \text{ fotones } 186 \text{ kev/s.g U-235, donde :}$$

$$N_A = P_{185} \cdot \ln 2 / t_{1/2} = (1.8 \pm 0.03) \cdot 10^{17} \text{ fotones } 186 \text{ kev/seg por átomo de U-235}$$

$$t_{1/2} = (2,229 \pm 0.002) \cdot 10^{16} \text{ s}$$

$$A = N^\circ \text{ de Avogadro } (6,02 \cdot 10^{23} \text{ at/atg})$$

$$M_{235} = \text{masa atómica del U-235}$$

N_A y N_M son las constantes nucleares que relacionan la tasa de emisión gamma de 186 keV de la muestra, con el número de átomos de U-235 o con la masa de U-235 respectivamente.

La proporcionalidad entre el número de fotones gamma de 186 keV/s/g U235 (N_M) y la concentración de U-235 permitiría, en principio, determinar en forma muy simple y directa el contenido de U-235 en una muestra. Sin embargo debido al elevado coeficiente de autoatenuación de los fotones gamma de 186 keV por el U, esta simple aproximación es solamente válida para muestras extremadamente delgadas, lo cual implica una muy baja tasa de conteo gamma y por lo tanto tiempos de medición extremadamente largos.

Cuando se miden muestras gruesas de material, se debe corregir por auto-atenuación de los fotones γ de 186 keV, como se puede ver en la siguiente ecuación que muestra el flujo diferencial de fotones γ de 186 keV (dI_γ) que sale de un elemento de superficie (dF) de una muestra de enriquecimiento (E) y llega al detector a través de un ángulo sólido diferencial ($d\Omega$) :

$$dI_\gamma(R, \Omega, F) = (E \cdot N_A / 4\pi\sigma_U) \cdot \beta \cdot (1 - \exp(-\int_0^R \lambda(x) dx)) \cos\theta \cdot d\Omega \cdot dF$$

$$= E \cdot A \cdot (1 - \exp(-\int_0^R \lambda(x) dx)) \cos\theta \cdot d\Omega \cdot dF \quad (1.1) \quad (5) \quad \text{donde :}$$

$N_A = P_{186} \cdot \ln 2 / t_{1/2} = 1,8 \cdot 10^{17}$ (N^* fotones de 186 keV emitidos/seg/átomo de U-235)

θ = ángulo formado por el eje normal a la superficie de la muestra y el ángulo sólido diferencial ($d\Omega$)

$\sigma_U = 582 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ (Sección eficaz de atenuación de fotones de 186 keV por el U)

$\beta = 1 / (1 + \sum_{i \neq U} N_i \sigma_i / N_U \sigma_U) = 1 / (1 + \sum_{i \neq U} \rho_i \mu_i / \rho_U \mu_U)$ (factor de corrección p/atenuación de matriz)

$A = (N_A / 4\pi\sigma_U) \cdot 1 / (1 + \sum_{i \neq U} \rho_i \mu_i / \rho_U \mu_U)$ (determinada por las constantes atómicas y nucleares y por la composición de la matriz de la muestra)

$\exp(-\int_0^R \lambda(x) dx)$ (factor de atenuación de la muestra)

$\lambda(x)$ = coeficiente de atenuación lineal del fotón en la muestra, en la posición x

R = espesor de la muestra respecto al ángulo sólido Ω que ve el detector

Estas correcciones por autoatenuación son complicadas y a veces imposibles, ya que dependen de parámetros característicos de la muestra, tales como: tamaño, densidad, distribución espacial, etc, que no siempre pueden ser cuantificados.

Los problemas asociados con la autoatenuación pueden ser evitados utilizando muestras con idéntica geometría, composición química y densidad.

Sin embargo, como en el ciclo de combustibles nucleares el U se presenta en diferentes materiales, esto implicaría una preparación previa de la muestra para llevarla siempre a la misma forma física y química.

Cuando el espesor de la muestra es lo suficientemente grueso, la radiación gamma generada en los átomos de U-235 más allá de un espesor límite, es absorbida completamente y por lo tanto no contribuye a la radiación γ observada en la superficie de la misma.

En efecto. Para muestras infinitamente gruesas ($R \rightarrow \infty$), el término exponencial de la ecuación 2.1 tiende a cero [$\exp \int_0^R (-\lambda(x)dx) \ll 1$]. En este caso el flujo gamma diferencial (dl_γ) en la superficie de la muestra puede ser escrito :

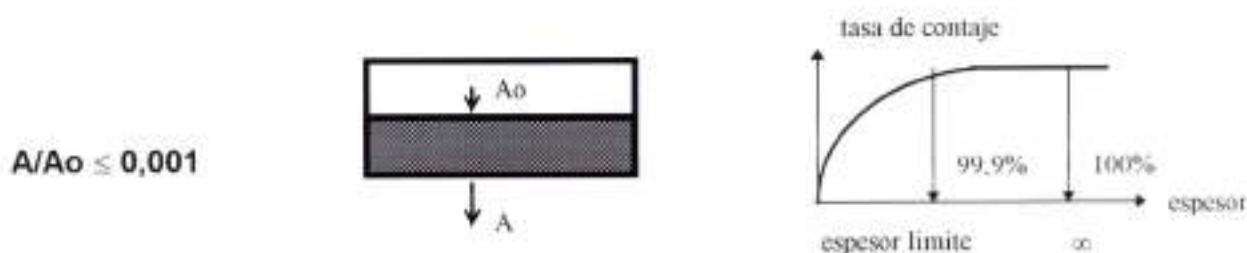
$$dl_\gamma^2(\infty, \Omega, F) = E.A.\cos\theta.d\Omega.dF \quad (1.2)$$

Por esta razón, incrementando el espesor de la muestra, el flujo gamma en su superficie alcanza un valor constante, que es casi independiente de su forma física. Para compuestos puros de U, este valor es proporcional a la concentración de U-235 y en general solo es necesario aplicar correcciones muy pequeñas debido a variaciones en la composición química de las muestras.

La ecuación 1.2 constituye el principio básico del medidor de enriquecimiento. En ella se muestra que, para el caso de una muestra infinita, el flujo gamma de 186 keV en la superficie es proporcional al enriquecimiento en U-235, debiéndose solamente tener en cuenta y corregir la influencia del material que compone la matriz de la muestra. Esta corrección es sin embargo muy pequeña en la mayoría de los casos.

1.4 ESPESOR QUASI-INFINITO DE UNA MUESTRA.

Se define como espesor "quasi-infinito" de una muestra ($e_{q.i.}$) a aquél que produce, para una geometría determinada, el 99,9 % de fotones γ de 186 keV respecto al que sería observado si la muestra tuviera espesor realmente infinito.



Para el caso mas simple de una muestra de U metálico de espesor infinito, el número de fotones gamma de 186 kev emitidos por segundo y por cada cm^2 de área, en el semiespacio 2π ($N_{U_{\text{met}}}$), está dado por la siguiente expresión :

$$N_{U_{\text{met}}} = P_{186} \cdot \ln 2 / t_{1/2} \cdot 1/4 \sigma_U \cdot 1/100 = 0,575 \cdot 0,693 / 2,22 \cdot 10^{16} \cdot 1/4 \cdot 582 \cdot 10^{-24} \cdot 1/100 = 77 \pm 4 \text{ } \gamma/\text{s} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{at\%U235}$$

donde : $1/\sigma_U \approx N_A/M_{235}$ (*)

(*) $N_U \cdot \sigma_U = \rho_U \cdot \mu_U = \rho_U \cdot (N_A/M_{235}) \cdot \sigma_U$; $N_A/M_{235} = \mu_U / \sigma_U \approx 1/\sigma_U$

$$N_U = n^\circ \text{ átomos/cm}^3 = \rho_U \cdot N_A / M_{235}$$

1.5 PARAMETROS CRITICOS DE MEDICION

La determinación de enriquecimiento por espectrometría gamma en muestras de U suficientemente grandes, se lleva a cabo midiendo exactamente el número de fotones γ de 186 kev por unidad de tiempo, emitidos por la muestra, utilizando una geometría de conteo fija. Por lo tanto, todos aquellos parámetros de medición que afectan la tasa de conteo gamma observada, deben ser cuidadosamente controlados y corregidos. Estos parámetros se muestran esquematizados en la figura 1.4.

Los diferentes factores que influyen en la relación entre el enriquecimiento expresado en % y la tasa neta de conteo de fotones en el fotopico de 186 kev (N_{186}) medida con un detector gamma en un sistema de conteo real, se muestran en la siguiente ecuación :

$$E\% = \underbrace{(100 \cdot N_{186})}_{(1)} \cdot \underbrace{(4 \cdot \sigma_U \cdot t_{1/2} / \ln 2 \cdot P_{186})}_{(2)} \cdot \underbrace{(1 / F \cdot \Omega \cdot \epsilon)}_{(3)} \cdot C_{MA} \cdot C_{WA} \cdot C_{E1} + C_{int} \quad (1.3)$$

(1) N_{186} : **tasa de conteo neta medida en el fotopico de 186 kev**

(2) $(4 \cdot \sigma_U \cdot t_{1/2} / \ln 2 \cdot P_{186})$: **Constantes nucleares y atómicas**

σ_U : Sección eficaz de atenuación de fotones de 186 kev en el U =

$$= (\mu_U \delta_U / A) \cdot (P_U / \delta_U) = (28/6,02 \cdot 10^{23}) \cdot (238/19) = 582 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

μ_U : coeficiente de atenuación másico del U = $1,47 \text{ cm}^2/\text{g}$

δ_U : densidad U metálico = 19 g/cm^3

$\mu_U \cdot \delta_U$: coeficiente de atenuación lineal del U = $28,0 \text{ cm}^{-1}$

A : número de Avogadro = $6,02 \cdot 10^{23} \text{ at/atg}$

P_U : peso atómico del U = 238 g/atg

$t_{1/2}$: vida media del U-235

P_{186} : probabilidad de emisión de fotones de 186 kev

(3) **1/ F. Ω . ϵ : Eficiencia total del sistema para fotones gamma de 186 kev**

F : sección transversal del colimador

Ω : ángulo sólido formado por el colimador y el detector

ϵ : eficiencia intrínseca del detector

C_{MA} : corrección por atenuación gamma de 186 kev en la matriz de la muestra

C_W : corrección por atenuación gamma de 186 kev en la pared del contenedor

C_{E1} : corrección por pérdida de conteo debido a la electrónica asociada.

C_{int} : corrección por interferencia gamma de otros isótopos del U.

Resulta evidente que en toda medida de enriquecimiento se deben cumplir 3 requisitos básicos para que a su vez se cumpla la proporcionalidad entre la tasa de conteo neta medida en el fotopico de 186 kev y el enriquecimiento :

- **Espesor quasi- ∞ en todas las muestras y geometría de conteo fija**
- **Distribución homogénea del U-235 en todas las muestras.**
- **Eficiencia de conteo total constante del sistema de medición, para los fotones γ de 186 kev. Esto es, geometría detector-colimador fija.**

En la mayor parte de las aplicaciones no es posible hacer correcciones cuantitativas si una de esas condiciones no se cumple.

Dados estos requisitos básicos, los factores remanentes que modificarían la tasa de conteo gamma y por ende el valor de enriquecimiento en U-235, son :

- la atenuación gamma en los materiales de la matriz de la muestra
- la atenuación gamma en las paredes del contenedor de la muestra.
- la pérdida de conteo gamma causado por la electrónica asociada
- las interferencias gamma.

Las correcciones para cada uno de estos ítems son posibles, siempre que se posea información adicional acerca de los parámetros respectivos, p.ej. tipo de compuestos de U, material y espesor de pared del contenedor, tiempo de resolución de pares de pulsos del sistema de contaje, nivel de contaminación gamma de la muestra, etc.

Mencionaremos aquí dos métodos alternativos de medición de U-235 por espectrometría gamma que pueden ser muy interesantes en muchas aplicaciones, debido a que son menos sensitivos a ciertos parámetros de la muestra, tales como: tamaño, geometría, composición química y material y espesor del contenedor, que son cruciales en mediciones de enriquecimiento que utilizan el principio del "medidor de enriquecimiento". Ambos métodos, que utilizan la relación entre los fotones gamma correspondientes al U-235 y U-238, observados simultáneamente tienen sin embargo las mismas limitaciones ya que ellos emplean rayos gamas *indirectos* de ambos isótopos del U. Rayos gamma de alta energía del Pa-234m para el U-238 en un método ⁽²⁾ y Th KX y rayos gamma del Th-234 en el otro ⁽³⁾

Las limitaciones de estas técnicas de medición son las siguientes:

- Solamente son aplicables a muestras de "U viejo" (> 3 meses después de la separación) o alternativamente aplicando correcciones para los descendientes del U-238, el Th-234 y el Pa-234m, que no están en equilibrio radiactivo cuando las muestras son de "U fresco"
- Determinación muy precisa de la eficiencia de detección relativa total, en un amplio rango de energía ⁽²⁾
- Evaluación de un triplete de rayos γ y X no resueltos ⁽³⁾.

1.6 USO DE MATERIALES DE REFERENCIA (MR)

Como se muestra en la ecuación 1.3 el enriquecimiento en U-235 es aproximadamente proporcional a la tasa neta de contaje gamma de 186 kev observada en una muestra suficientemente grande y homogénea de un material de U que contiene U-235, con la excepción de una pequeña desviación por

posibles efectos de interferencias debido a contaminantes gamma presentes en la muestra. Las principales constantes de proporcionalidad pueden ser resumidas en 2 grupos:

1. Constantes físicas básicas : σ , $t_{1/2}$ y P_{100}
2. Constantes que dependen del sistema de contaje particular : F , Ω , y ε

Los otros factores de corrección que entran en la ecuación 1.3. : C_{MA} , C_{WA} , C_{Et} y C_{Int} , pueden ser determinados con suficiente exactitud en la mayoría de las aplicaciones.

En principio, el enriquecimiento podría ser medido directamente sin el uso de materiales de referencia (MR) o patrones de calibración, si las constantes físicas fueran exactamente conocidas y la eficiencia de detección absoluta del sistema de contaje gamma pudiera ser determinada exactamente.

Sin embargo la situación real es la siguiente:

1. Poca exactitud en los valores de las constantes físicas

La incertidumbre relativa del valor de las constantes nucleares es del orden de 1,5% y el error relativo de la sección eficaz de atenuación del fotón de 186 kev, 2-5%. Estos valores, que entran en la determinación del enriquecimiento en U-235, están muy lejos del nivel de exactitud deseado (0,1%) .

2. Dificultad en la determinación de la eficiencia absoluta del sistema de contaje gamma

Es muy difícil calcular con la exactitud deseada la eficiencia de detección absoluta de un sistema de contaje. Por otra parte la determinación experimental de la misma es problemática ya que no se dispone de patrones gamma con el nivel de exactitud deseado. Además las fuentes puntuales utilizadas en la determinación de la eficiencia de sistemas de contaje gamma, no son adecuadas para este caso particular debido a las características angulares de su radiación (distribución angular). Esta es diferente a la de la superficie de muestras gruesas (distribución coseno) (⁴).

Por todas las razones que se acaban de exponer, las determinaciones muy exactas de enriquecimiento solamente son posibles cuando las mediciones están relacionadas a la de un patrón de calibración adecuado.

Idealmente, los materiales de referencia (MR) utilizados en la calibración de sistemas NDA para medición de enriquecimiento por espectrometría gamma (ver *apendice.2*), deben ser representativos de la muestra desconocida a medir, respecto a todos los parámetros que influyencien el resultado de la medición. Esto hace que los resultados de las mediciones dependan en general de ciertos **parámetros característicos de la muestra**, tales como: tamaño, forma, densidad y composición de la matriz y del material y espesor *del contenedor*. De ellos, el que tiene mayor influencia, es la fuerte atenuación gamma en el material de la muestra y en la pared del contenedor.

En el caso específico de la medición de enriquecimiento en muestras de espesor "quasi-infinito", la influencia de algunos de los parámetros de la muestra (tamaño, forma y densidad) sobre el resultado de la medida, se diluyen completamente. Sin embargo, los efectos debido a la pared del contenedor y a diferencias en la composición de la matriz de la muestra, aún son importantes.

Por lo tanto, en un sentido estricto, los materiales de referencia disponibles, son *ideales* sólo para medición de enriquecimiento de muestras de U3O8 contenidas en recipientes similares a los utilizados con los MR.

En el caso que se quiera extender la aplicación de los MR a la calibración de sistemas de medición utilizados para medir otros materiales de U, es necesario aplicar los factores de corrección correspondientes a fin de normalizar la respuesta gamma con respecto a diferencias en la composición de la matriz y pared del contenedor. Sin embargo es necesario tener en cuenta que los factores de corrección por atenuación gamma están basados en valores teóricos para la sección eficaz de fotones, con una incertidumbre declarada de 2 a 5%.

Esto representa una fuente de error sistemático cuando las correcciones requeridas son importantes. *En estos casos es recomendable validar experimentalmente los términos de corrección y su rango de aplicación.*

Cuando se usan MR se debe estar prevenido y no esperar valores muy precisos en las medidas de enriquecimiento con cualquier tipo de muestra, sobre todo si los parámetros más cruciales no están bien definidos y/o se requieren correcciones muy importantes.

Para dar un ejemplo, los MR pueden ser utilizados en la calibración directa de sistemas de contaje para medición de enriquecimiento de cilindros de UF₆, siempre y cuando sean tenidos en cuenta algunas propiedades específicas de este tipo de material, como ser :

1. La fuerte atenuación gamma en la pared de contenedores típicos de 1,5 cm de espesor, que requiere la determinación experimental de los factores de corrección por atenuación. (ver 3.2)
2. La determinación exacta del espesor de pared del contenedor por medio del medidor de ultrasonido, que puede ser dificultosa, sobre todo cuando la superficie es rugosa o tiene pintura.
3. Posibles depósitos superficiales en la pared interna del contenedor, que deben ser tenidos en cuenta debido a su atenuación y posible interferencia gamma .
4. Distribución inhomogénea del UF₆ que puede hacer que no se cumpla la condición de espesor cuasi-infinito de la muestra, en determinadas posiciones del detector.
5. La tasa de contaje gamma total y la forma del espectro gamma observado, que puede diferir significativamente en diferentes tipos de muestra. Esto requiere una corrección cuidadosa por efecto de tiempo muerto y apilamiento de pulsos y una técnica adecuada para evaluar el área neta del pico, que sea insensible a cambios en la forma del fondo continuo (⁸).

Estas características, inherentes a las mediciones de enriquecimiento en cisternas de UF₆, deben ser cuidadosamente evaluadas ya que pueden ser la causa de errores muy importantes (¹). En el caso de medición de enriquecimiento de cilindros de UF₆, sería por lo tanto recomendable volver a medir la muestra en lo posible, después de transformar el UF₆ en U₃O₈.

Para muchas aplicaciones prácticas sería recomendable disponer de patrones de trabajo física y químicamente diferentes al de U₃O₈. En algunos casos, estos patrones pueden ser calibrados directamente contra la MR de U₃O₈, siempre que puedan ser medidos en un sistema de contaje que asegure que se cumpla la condición de espesor cuasi-infinito para ambos tipos de patrones y que **se apliquen correcciones apropiadas para las diferencias entre los materiales de la muestra y del contenedor.**

Para otros patrones de trabajo, la condición de espesor cuasi-infinito de muestra puede no cumplirse, tal es el caso de la medición de barras combustibles. En este caso el enriquecimiento de la materia prima utilizada en la fabricación de los patrones de trabajo (pastillas de UO₂), puede ser medida con una geometría de espesor cuasi-infinito, contra el material de referencia (RM)

Dos condiciones generales limitan la aplicabilidad del medidor de enriquecimiento y deben ser cuidadosamente observadas y evaluadas :

- *La muestra debe ser de espesor cuasi-infinito para la radiación gamma de 186 kev. Esta condición restringe inherentemente la aplicación del método a muestras relativamente gruesas, por ejemplo óxidos de U de densidad de área mínima de 5,3 g/cm²*
- *La muestra debe ser muy uniforme con respecto al contenido de U-235. Cuando se ensayan mezclas de diferentes enriquecimientos, estas deben ser cuidadosamente homogeneizadas con el objeto de asegurar que la medida de enriquecimiento sea representativa de la media de todo el material de la muestra*

TABLA 1.1 : Rayos γ y característicos del decaimiento del U-235 en el rango de energía de 120-300 kev. Las tasas de emisión del Th-231 corresponden al equilibrio secular (> 1 mes después de la separación)

ENERGIA γ	ISOTOPO	FOTONES/s/g U-235
124.9	Th-231	$4.7 \cdot 10^1$
131.0	Th-231	$2.0 \cdot 10^1$
135.7	Th-231	$6.5 \cdot 10^1$
140.8	U-235	$1.9 \cdot 10^2$
143.8	U-235	$8.7 \cdot 10^1$
145.9	Th-231	$2.8 \cdot 10^1$
150.9	U-235	$6.5 \cdot 10^1$
163.1	Th-231	$1.3 \cdot 10^2$
163.4	U-235	$4.0 \cdot 10^1$
174.2	Th-231	$1.5 \cdot 10^1$
182.1	U-235	$3.4 \cdot 10^2$
183.5	Th-231	$2.8 \cdot 10^1$
185.7	U-235	$4.6 \cdot 10^4$
194.9	U-235	$5.0 \cdot 10^1$
198.9	U-235	$3.2 \cdot 10^1$
202.1	U-235	$8.5 \cdot 10^2$
205.3	U-235	$4.0 \cdot 10^3$
215.3	U-235	$2.3 \cdot 10^1$
217.9	Th-231	$3.3 \cdot 10^1$
233.5	U-235	$3.4 \cdot 10^1$
240.9	U-235	$6.8 \cdot 10^1$
246.8	U-235	$5.1 \cdot 10^1$
275.3	U-235	$4.2 \cdot 10^1$

ENERGIA γ	ISOTOPO	FOTONES/s/g U-235
49.5	U-238	40
63	Th-234	9160
125.4	Pa-234	0.16
131.0	Pa-234	3.25
137.7	Pa-234	0.02
140.1	Pa-234m	0.11
140.3	Pa-234	0.16
143.6	Pa-234	0.06
152.7	Pa-234	1.1
159.1	Pa-234	0.1
170.7	Pa-234	0.08
174.6	Pa-234	0.03
184.7	Pa-234m	0.15
186.0	Pa-234	0.32
193.4	Pa-234m	0.06
193.6	Pa-234	0.10
196.4	Pa-234	0.01
199.9	Pa-234m	0.05
200.6	Pa-234	0.18
203.0	Pa-234	0.19
209.9	Pa-234m	0.11
226.4	Pa-234	0.96
227.2	Pa-234	0.89
243.7	Pa-234m	0.05
245.2	Pa-234	0.15
247.7	Pa-234m	0.08
248.9	Pa-234	0.46
257.9	Pa-234m	7.01
267.1	Pa-234	0.03
272	Pa-234	0.21
275.5	Pa-234m	0.02
277.9	Pa-234	0.11
286.1	Pa-234	0.02
289.6	Pa-234	0.02
293.6	Pa-234	0.06
299.0	Pa-234m	0.06
1001.2	Pa-234m	73

TABLA 1.1' : Rayos γ característicos del decaimiento del U-238 en el rango de energías de 120-300 kev. La tasas de emisión de las hijas del U-238 están dadas en el equilibrio secular (> 3 meses después de la separación)

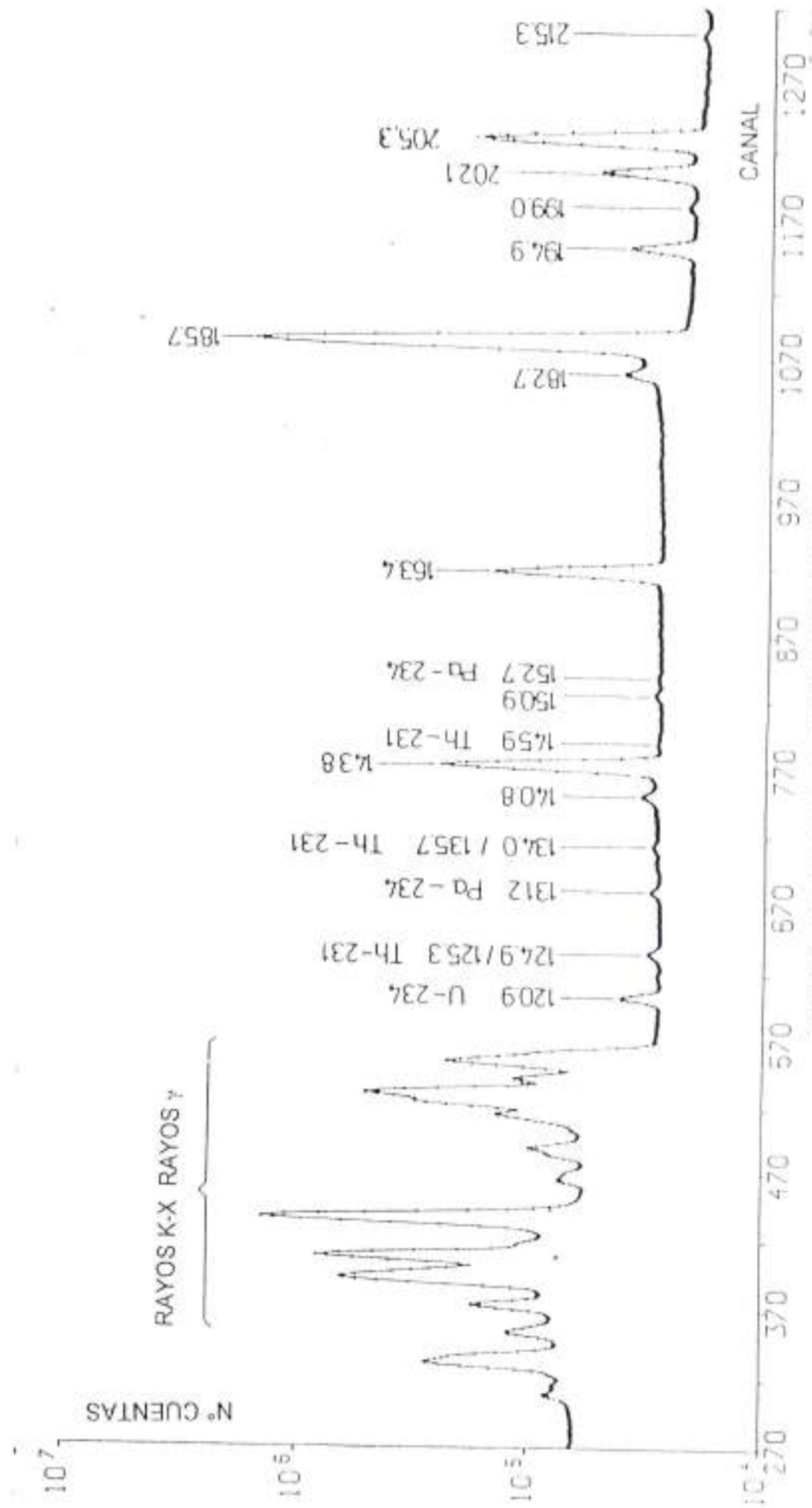


FIGURA 1.1 : Espectro γ de U_3O_8 enriquecido con detector de GeHP de alta resolución

FIGURA 1.2

COMPARACION DE ESPECTROS γ DE U DE DIFERENTES ENRIQUECIMIENTOS

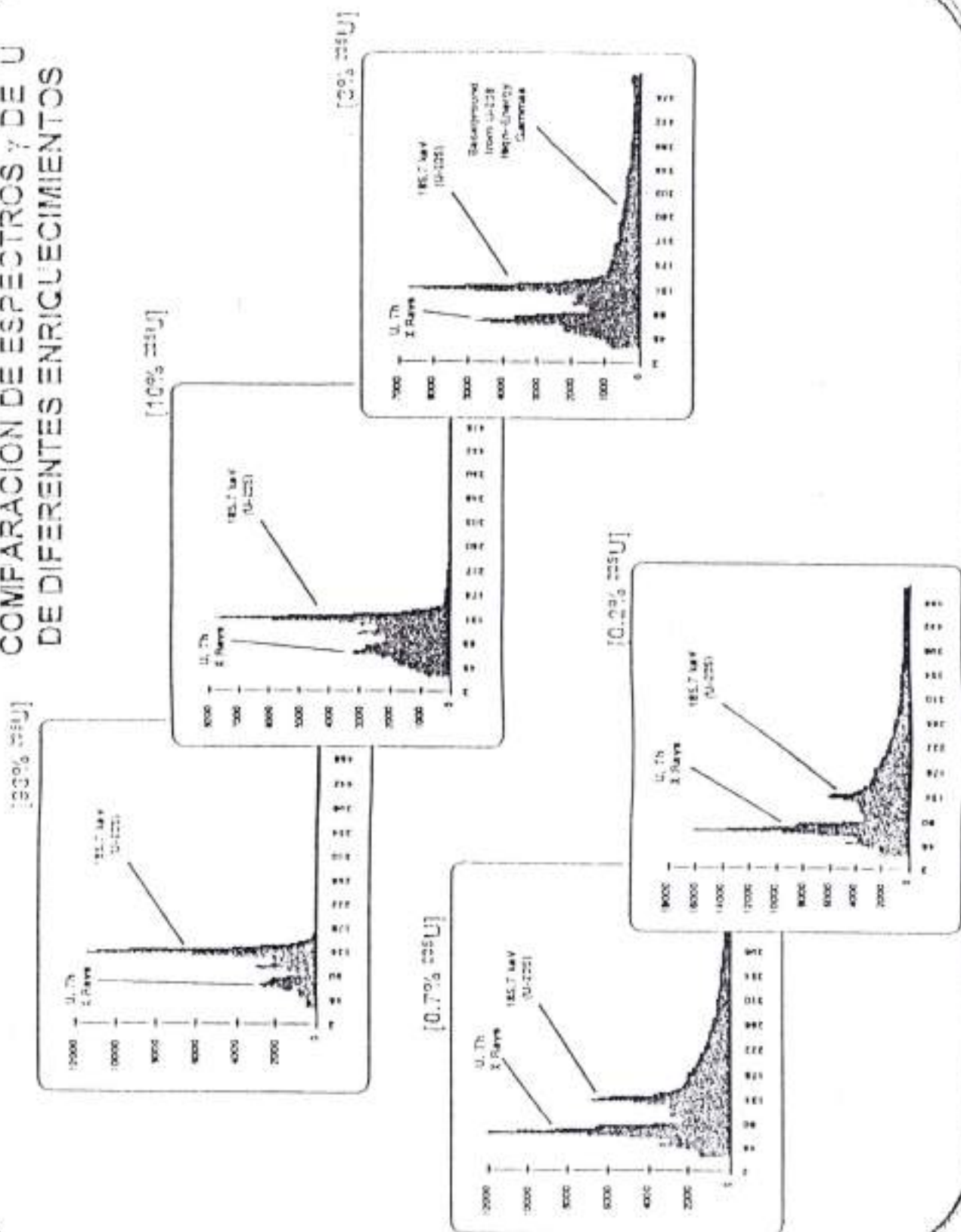
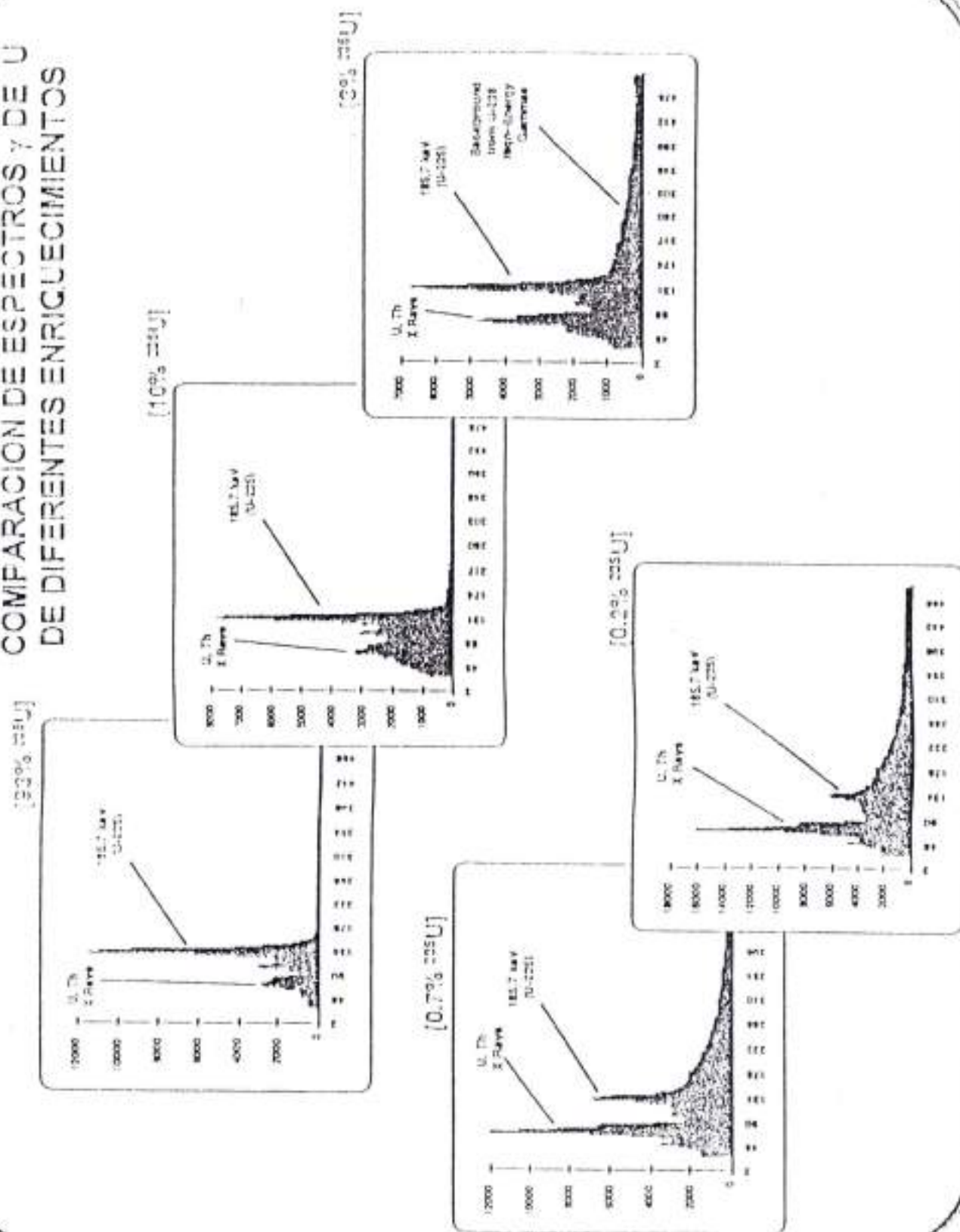


FIGURA 1.2
COMPARACION DE ESPECTROS Y DE U
DE DIFERENTES ENRIQUECIMIENTOS



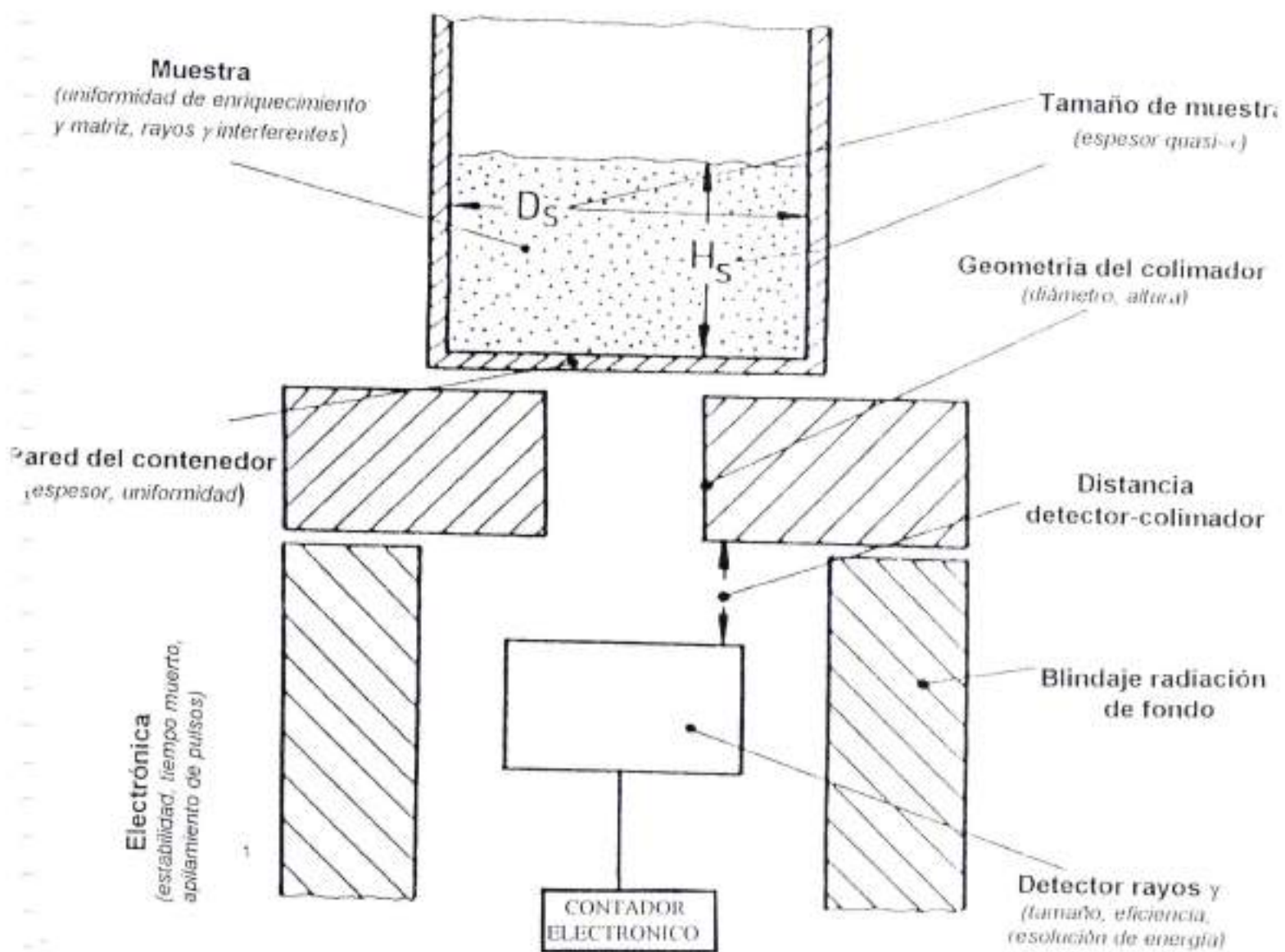
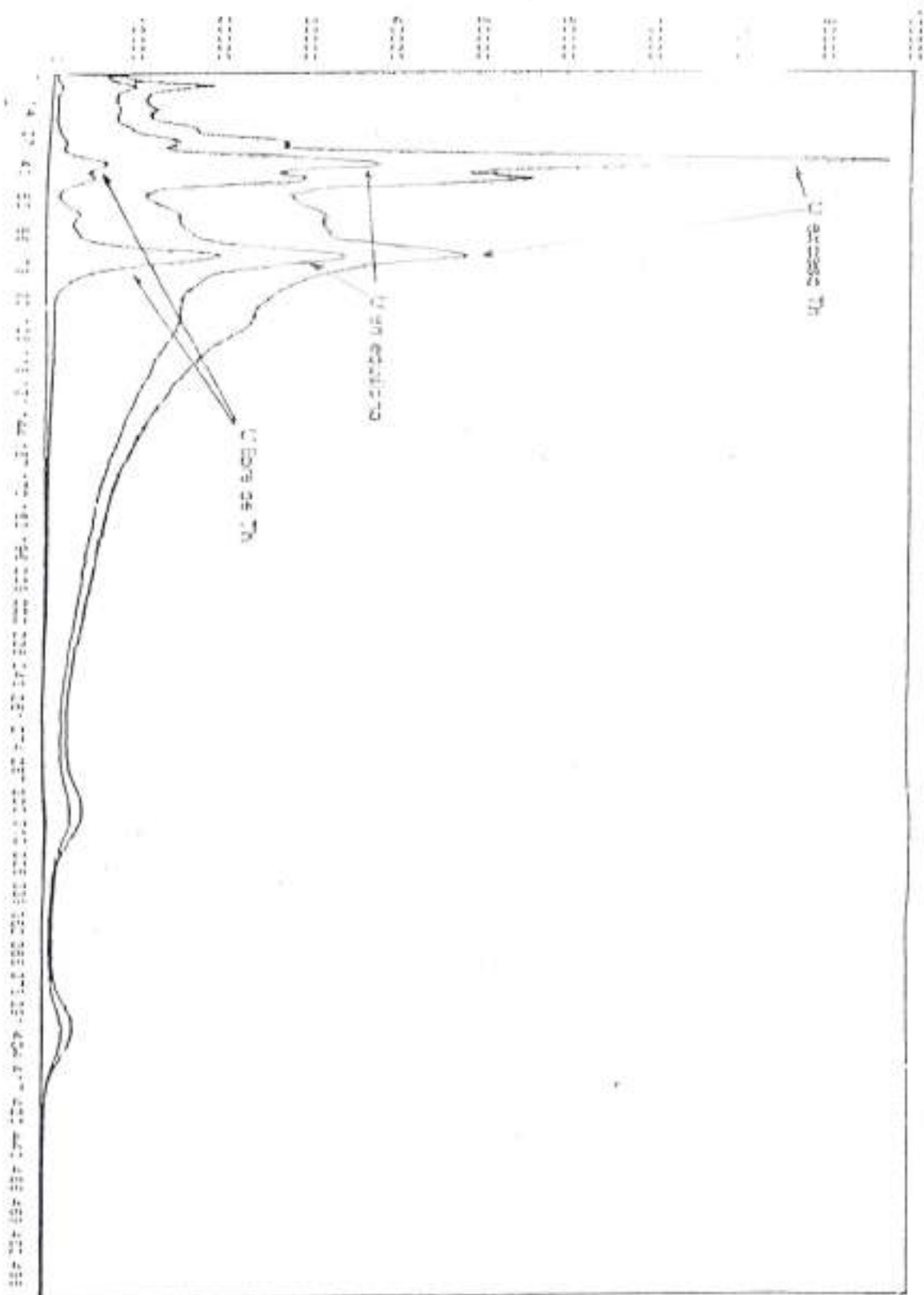


FIGURA 1.4 : Parámetros fundamentales que afectan la exactitud de las mediciones de enriquecimiento por espectrometría γ

FIGURA 1.3



2. PROPIEDADES DEL MATERIAL DE LA MUESTRA QUE AFECTAN LA EXACTITUD DE LA MEDICIONES

Se analizarán en esta sección aquellas propiedades del material de la muestra que afectan el resultado de las mediciones de enriquecimiento cuando se utiliza el principio de medición a espesor infinito. En particular: tamaño de la muestra, homogeneidad, tipo de compuesto de U, estequiometría, composición de la matriz e influencia de la radiación gamma proveniente de isótopos del U y sus productos de decaimiento.

2.1 TAMAÑO DE LA MUESTRA

A diferencia de otras técnicas de medición de enriquecimiento, las mediciones llevadas a cabo con el "*medidor de enriquecimiento*" requieren que la muestra tenga un espesor tal, que la adición de cualquier cantidad extra de la misma no altere en forma significativa el flujo de radiación gamma que llega al detector, para una determinada geometría de contaje.

2.1.1 Espesor quasi-infinito en todas direcciones

Los resultados de las mediciones con el "*medidor de enriquecimiento*" serán exactos, sólo si la muestra a medir es lo *suficientemente gruesa* como para absorber la radiación gamma de 186 keV del U-235 (>99,9%).

A fin de cuantificar el término "*suficientemente gruesa*", se definió el *espesor quasi-infinito* de una muestra en dirección Ω como: *el espesor necesario para que la radiación gamma de 186 keV, emitida desde un área fija de su superficie, alcance el 99,9% de la actividad esperada para una muestra infinitamente gruesa, dentro del mismo ángulo*. Si la muestra cumple con esta condición para cualquier ángulo sólido Ω que ve el detector, entonces el error introducido por el tamaño finito de la muestra será inferior al 0,1%.

Para un material uniforme, la *dimensión lineal mínima* de la muestra (r_{min}), requerida para una respuesta gamma del 99,9% está dada por :

$$\exp(-\mu\rho r_{min}) = 0.001 ; r_{min} = -\ln 0.001 / \mu\rho = \mathbf{6.91 / \mu\rho} \quad (2.1) \quad (\text{tabla 2.1})$$

μ : *coeficiente de atenuación lineal del material de la muestra (cm^2/g)*

ρ : *densidad del material de la muestra (g/cm^3)*

2.1.2 Tamaño quasi-infinito para muestras cilíndricas

Cuando decimos *espesor quasi-infinito de la muestra en todas direcciones* (r_{min}), tal como es vista por un detector de gran superficie a través de un colimador cilíndrico (ver figura 2.1), la altura mínima (H_m^{TD}) y el diámetro mínimo (D_m^{TD}) para una muestra cilíndrica están dadas por las siguientes ecuaciones :

$$H_m^{TD} = r_{min} \quad (2.2)$$

$$D_m^{TD} = D_c [1 + (2s/H_c) + 2 r_{min}/(D_c^2 + H_c^2)^{1/2}] \quad (2.3)$$

H_c : *altura del colimador*

D_c : *diámetro del colimador*

s : *distancia entre la superficie de muestra y el colimador que incluye el espesor de pared del contenedor.*

r_{min} : *espesor quasi-infinito lineal definido en la ecuación 2.1*

La condición para la altura mínima de muestra (H_m^{TD}) en la ecuación (2.2) puede también expresarse en términos de la densidad de área mínima (δ_{min}), dada en g/cm^2 y del coeficiente de atenuación másico del material de la muestra (cm^2/g).

$$\delta_{min} = -\ln 0.001/\mu = 6.91/\mu \quad (\text{g}/\text{cm}^2) \quad (2.4)$$

En general, la simple relación entre la geometría de conteo y la dimensión de muestra quasi-infinita dadas en las ecuaciones (2.2) y (2.3), sobreestima significativamente la cantidad de muestra realmente requerida. Por otra parte, cuando se utiliza esta aproximación siempre se está del "lado seguro", por lo tanto las ecuaciones 2.2 y 2.3 pueden ser usadas como estimaciones seguras para que se cumpla la condición de espesor- ∞ en aquellos casos donde se dispone de suficiente material y el recipiente de muestra es lo suficientemente grande.

El valor de espesor quasi-infinito de una muestra en todas direcciones, tal como es vista por el detector, da como resultado un volumen de muestra mucho mayor que el requerido para una respuesta del 99,9% . Eso se debe a dos factores que no han sido considerados al hacer la aproximación :

1. La longitud media de la trayectoria y por ende la atenuación asociada del fotón, incrementan con el incremento del diámetro del colimador (ver fig. 2.2). Por lo tanto la altura de muestra requerida para una respuesta del 99,9% a la radiación gamma de 186 kev es menor cuando se usan colimadores de mayor diámetro. *El espesor de muestra quasi-infinito (r_{min}) tal como fué definido en la ecuación (2.1) está sobreestimado y sólo es requerido para colimadores muy estrechos.*
2. La transmisión de los rayos gamma de 186 kev a través del colimador es mayor cuando la muestra está posicionada en el eje de simetría del colimador (Ω) y decrece a medida que incrementa la distancia a dicho eje, debido a que el ángulo de visión (Ω') se hace mucho menor (fig 2.3). La contribución de la porción de muestra muy alejada del eje de simetría sobre la tasa de conteo gamma, es despreciable. Esta transmisión muy reducida de la porción de material muy alejada del eje, a través del colimador, no ha sido tenida en cuenta en la aproximación dada anteriormente. Se puede asumir en consecuencia, que también el diámetro de la muestra (D_m^{TD}) definido en la ecuación (2.3) está sobreestimado para una respuesta gamma del 99,9%.

Es de esperar que las dimensiones de muestra requerida para una respuesta gamma del 99,9% sea en general inferior en tamaño, que las derivadas de las ecuaciones (2.2) y (2.3).

En lugar del espesor quasi-infinito en todas direcciones es más conveniente definir el *volumen de muestra quasi-infinito* que produce el 99,9 % de la tasa de conteo gamma esperada para una muestra infinita. Para el caso de muestras y colimadores cilíndricos con eje de simetría común, Matussek ⁽⁵⁾ calculó el diámetro (D_m^g) y la altura (H_m^g) requerida para una respuesta γ del 99,9%, a partir de la siguiente ecuación implícita :

$$F(D_m^9 H_m^9) = [I_\gamma(D_m^9 H_m^9, \rho, \mu, D_c, H_c, s, d, \lambda_d)] / [I_\gamma(\infty, \infty, \mu, D_c, H_c, d, \lambda_d)] = 99,9\% \quad (2.5)$$

d, λ_d : espesor y coeficiente de atenuación lineal del fotón en la pared del colimador

ρ, μ : densidad y coeficiente de atenuación lineal del material de la muestra

I_γ : función de transmisión

donde la respuesta gamma de una muestra finita es comparada con la de una muestra infinita.

Entre todas las geometrías posibles de muestras cilíndricas que dan una respuesta gamma del 99,9% para un determinado material y sistema de medición, hay una forma particular con dimensiones $D_m^{\min}$, $H_m^{\min}$ que requiere la mínima cantidad de material. Tales dimensiones mínimas quasi-infinitas de muestra y sus correspondientes masas, calculadas a partir de la ecuación 2.5, se dan en la tabla 2.2 para muestras de polvo de U3O8 con una densidad de 2,5 g/cm³ y diferentes geometrías de colimador. A modo de comparación, se muestran también las dimensiones de muestra "aproximadamente mínimas" para una densidad de área fija de 5,45 g/cm² (tal como se recomienda para muestras de U3O8) y 5,2 g/cm² (especificada para el material de referencia), calculadas a partir de las ecuaciones 2.6, 2.7 y 2.8. En las últimas 3 columnas se da el tamaño y masa de muestra necesarios para alcanzar el espesor quasi-infinito en todas las direcciones visibles a través del colimador, calculadas a partir de las ecuaciones 2.2 y 2.3

2.1.3 Masa de muestra mínima

Un examen de la altura mínima de muestra requerida para una respuesta gamma del 99,9% (tabla 2.2), muestra que esos valores son sólo ligeramente diferentes del espesor de muestra quasi-infinito $r_{\min}$ definido en 2.1.1. Con el objeto de simplificar la estimación de las dimensiones mínimas de muestra, se sustituyen en cálculos ulteriores la altura de muestra mínima real $H_m^{\min}$ por la dimensión de muestra quasi-infinita lineal mínima ($r_{\min}$) dada en la ecuación 2.1

El diámetro de muestra correspondiente ($D_m^{\min}$) para el 99,9% de respuesta gamma es entonces obtenido a partir de la ecuación 2.5 reemplazando H_m^9 por $r_{\min}$

Con esta aproximación, la altura de muestra requerida para una respuesta γ del 99,9%, no es más dependiente de las propiedades del colimador y del detector. Se puede verificar que la masa de muestra mínima aproximada en este caso es sólo ligeramente mayor que la masa mínima verdadera (ver tabla 2.2).

Con la nueva altura de muestra mínima aproximada, se tiene

$$H_m^{\min} = r_{\min} = -\ln(0,001)/\mu\rho = 6,91/\mu\rho \quad (2.6)$$

A partir de la ecuación 2.1 y del "aún desconocido" diámetro de la muestra $D_m^{\min}$, se puede derivar una expresión para la masa de muestra mínima aproximada (M_m) requerida para una respuesta gamma del 99,9%.

$$M_m^{\min} = (\pi \cdot D_m^2/4) \cdot H_m \cdot \rho = 6,91 \cdot \pi \cdot D_m^2/4\mu = 5,43 \cdot D_m^2/\mu \quad (2.7)$$

donde μ es el coeficiente de atenuación másico de la muestra para fotones gamma de 186 keV y ρ la densidad de la muestra. En la ecuación 2.7 se puede observar que la masa de muestra definida de esta forma no depende de la densidad de la muestra.

Las masas mínimas aproximadas para una muestra uniforme de U3O8 han sido calculadas en función del diámetro de muestra, a partir de la ecuación 2.7 y graficadas en la figura 2.4. La línea punteada representa el diámetro del contenedor de la muestra de referencia (7 cm). Si se mide otro compuesto de U diferente al U3O8, entonces la masa de muestra obtenida a partir de la ecuación 2.7 debe multiplicarse por el término de corrección:

$$M_m^{\min}(Ux) = [\mu(U3O8)/\mu(Ux)] \cdot M_m(U3O8) \quad (2.8)$$

En la determinación de la masa de muestra mínima aproximada se asume que la densidad de la muestra es uniforme. Esto restringe la aplicabilidad de la ecuación 2.7 a muestras homogéneas.

En caso de muestras muy heterogéneas, tal el caso de la medición de pastillas de UO2, la ecuación 2.7 no es aplicable. La cantidad mínima de material requerida para la determinación exacta de enriquecimiento en U-235 debe ser determinada experimentalmente, adicionando sucesivas capas de pastillas, hasta que la actividad gamma de 186 keV no aumente más ⁽⁶⁾.

Cuando se utilizan recipientes de muestra de referencia ($7\text{ cm } \Phi$) en la medición de concentración de U-235 en materiales homogéneos, la masa de muestra aproximadamente mínima, dada en la ecuación 2.7 toma la forma simple :

$$M_m^{\min} (D_m^{\min} = 7\text{cm}) = 6,91 \cdot \pi \cdot 7^2 / 4\mu = 2,66/\mu \text{ (gr)} \quad (2.9) \quad (\mu : \text{cm}^2/\text{gr})$$

A partir de la ecuación 2.8 y aplicando un margen de seguridad del 10% se obtiene la "masa mínima recomendada" (M_m^{recom}), para muestras medidas en recipientes de referencia :

$$M_m^{\text{recom}} (Ds 7\text{cm}) = 220 \text{ gr (polvos UO}_2\text{)} ; M_m^{\text{recom}} (Ds 7\text{cm}) = 230 \text{ gr (polvos U}_3\text{O}_8\text{)}$$

Como se puede apreciar, la masa de muestra mínima recomendada no depende de la densidad de la muestra. Esto es, cualquier cantidad de polvo de U_3O_8 mayor que 230 gr, sin importar su densidad, es adecuada para medir enriquecimiento siempre que se asegure la distribución uniforme del material. Sin embargo es importante recalcar que la geometría adecuada del colimador, debe ser seleccionada de acuerdo con la densidad de la muestra.

Dentro de ciertos límites, muchas dimensiones de muestra (H_g , D_g) dan una respuesta gamma del 99,9% . Las dimensiones de los patrones de referencia caen dentro de estos límites. Por lo tanto, es posible asumir que, para casi todas las geometrías de colimador utilizadas comunmente, los patrones de referencia cumplen las condiciones requeridas para una respuesta gamma del 99,9%. Las limitaciones y recomendaciones para la selección de las dimensiones de colimador adecuadas, están dadas en 2.1.4.

También hay que tener en cuenta, que en aplicaciones prácticas del medidor de enriquecimiento, existe generalmente un pequeño error sistemático causado por el tamaño finito de la muestra y de los patrones de referencia.

En la práctica sucede que en general las muestras medidas son infinitamente gruesas (tambores de UO_2 , cisternas de UF_6 , etc), por lo tanto se debe aplicar a los valores de enriquecimiento medidos un factor de corrección de 1,0002 y 1,001 respectivamente, debido al tamaño finito de los patrones de referencia usados en la calibración del sistema de medición.

2.1.4 Dimensiones recomendadas del colimador

Cuando se utilizan recipientes con diámetro interno fijo para la determinación de enriquecimiento por espectrometría gamma, la *cantidad mínima* de muestra, $M_m^{\min}$ (203 g UO₂ ó 210 g de U₃O₈) queda determinada para polvos de cualquier densidad (fig 2.4).

Conocidos el diámetro y la densidad de una muestra, entonces se determinan las dimensiones del colimador con el objeto de cumplir con la condición de geometría de muestra *quasi-infinito*. Cuando se selecciona el colimador, se debe tener en cuenta que su geometría determina la tasa de conteo gamma que llega al detector. Con colimadores de pequeño diámetro y mucha altura la tasa de conteo es muy baja y se requieren tiempos de medición muy largos. Por lo tanto, la elección del colimador debe satisfacer tanto la condición de geometría *quasi- ∞* como de transmisión de radiación gamma lo más alta posible.

Estas condiciones se pueden tomar de la figura 2.5, que muestra la tasa de radiación gamma de 186 kev (cuentas/seg/%U₂₃₅), que incluye la corrección por atenuación en el fondo del recipiente de referencia y por la distancia entre la muestra y el colimador (3mm), en función del diámetro del colimador, para 4 alturas diferentes del mismo (1, 2, 3 y 4 cm).

Los límites superiores de dimensión del colimador que proveen geometría *quasi-infinita* de la muestra, están representadas por la línea punteada, para densidades de U₃O₈ entre 1 y 2,5 g/cm³. Cualquier dimensión del colimador por debajo de dicha línea cumple con la condición de geometría *quasi-infinita* de la muestra, en tanto que cualquier dimensión por encima de ella, produce errores superiores al 0,1% para la densidad dada o cualquier otra densidad inferior a la misma. No se deben usar colimadores con geometría que caigan dentro de la región sombreada, puesto que en ese caso los patrones de referencia no cumplen con la condición de geometría *quasi-infinita*.

En la figura 2.5 se muestran también los tiempos de conteaje necesarios para que el error de medición esté por debajo del 0,2 y 0,5% cuando se miden polvos de material de U enriquecido al 1% así como también las dimensiones del colimador requeridas para una respuesta gamma del 99,9%, las cuales dependen fundamentalmente de la densidad del material.

En la práctica sucede a menudo que el sistema calibrado con patrones de referencia, es usado para medir enriquecimiento de muestras de densidad muy variada, por lo que la selección del colimador debe garantizar la geometría quasi-infinita de la muestra para todo el rango de densidad esperado del material.

En la tabla siguiente se muestran los parámetros relevantes del colimador, para muestras de densidad de 1 g/cm³, así como la tasa de conteaje gamma estimada y el tiempo de conteaje requerido para errores de medición de 0,2 y 0,5%.

Altura colimador cm	Diámetro colimador cm	Tasa conteaje max. c/s/ % U-235	Tiempo de conteaje p/ error relativo	
			0,5%	0,2%
1	1,04	11	121'	12,6 hs
2	1,83	28	48'	5,0 hs
3	2,31	35	38'	4,0 hs
4	2,73	38	35'	3,7 hs

Como se puede apreciar, para densidades de 1 g/cm³ la mejor elección es 4 cm de altura y 2,73 cm de diámetro.

Una mayor cantidad de material permite el uso de colimadores de mayor diámetro, con lo cual se reduce el tiempo de conteaje requerido para una determinada precisión. Un ejemplo práctico es el siguiente:

Utilizando un recipiente de 7 cm diametro para contener una muestra de densidad $\geq 2,5$ g/cm³, las dimensiones óptimas del colimador, deducidas de la ecuación 2.8, son :

altura del colimador : 1 cm (2 cm)

diámetro del colimador : 3,6 cm (4,1 cm)

Los tiempos de medición indicados en cada caso para alcanzar un error de contaje del 0,5% y 0,2% son de 3,3 min (3,8 min) y 21 min (24 min) respectivamente, cuando se mide U enriquecido al 1%.

Nota : los valores entre paréntesis corresponden a un colimador de 2 cm de altura

La figura 2.5 puede ser usada para determinar la geometría del colimador adecuada, cuando se miden otros compuestos de U contenidos en recipientes de referencia. En este caso, en lugar de utilizar la verdadera densidad d_x del compuesto de U (x), se utiliza la densidad efectiva d_{eff} en la ecuación 2.8 :

$$d_{\text{eff}} = (\mu_x / \mu_{\text{UO}_2}) \cdot d_x \quad (2.10)$$

Para UO_2 la densidad efectiva es muy cercana a 1 (1,035), por lo que la ecuación 2.8 puede ser usada para ambos óxidos de uranio.

Se debe tener en cuenta finalmente que los sistemas de contaje que trabajan con dimensiones mínimas de muestra o geometría máxima del colimador, requieren un posicionamiento cuidadoso de la muestra con el objeto de mantener la geometría de muestra quasi-infinita.

2.2 HOMOGENEIDAD DE LA MUESTRA

Todas las consideraciones que se han hecho anteriormente presuponen que la muestra es uniforme con respecto a los parámetros de enriquecimiento y composición de la matriz, o más precisamente que las relaciones entre *átomos de U-235/átomos de U total* y *átomos de la matriz/átomos de U total*, son constantes para cualquier sub-muestra tomada del total. Sin embargo partículas o regiones de la misma, con diferente enriquecimiento en U-235 y/o diferente composición de la matriz, pueden introducir errores significativos en las mediciones de enriquecimiento del grueso de la muestra.

Por el contrario, el error en las mediciones de enriquecimiento de muestras inhomogéneas respecto a la densidad, puede ser despreciado cuando se utiliza geometría de espesor quasi-infinito. Aún la presencia de cavidades en la muestra,

no afecta los resultados de las mediciones, siempre que se mantenga la geometría de espesor quasi-infinito, con suficiente material "detrás de las cavidades".

Un ensamble de pastillas de igual enriquecimiento y composición de matriz puede ser considerado uniforme, si las pastillas están ordenadas en forma tal que la muestra cumpla la condición de espesor quasi-infinito. Esto puede ser efectuado, o bien llenando el contenedor con un gran número de pastillas ordenadas al azar o bien en capas densamente empaquetadas. Dos o más capas garantizan espesor infinito para cualquier ángulo de visión ⁽⁶⁾.

Cuando se cumplen los requerimientos de uniformidad de la muestra, el valor de enriquecimiento medido es representativo de todo el volumen de la misma. Para muestras con enriquecimiento o matriz no uniforme, los resultados de las mediciones dependen de una manera compleja, de la forma, tamaño, grado y posición de las inhomogeneidades en la muestra, por lo tanto solamente serán considerados algunos aspectos generales del problema.

En primer lugar se definirán las condiciones respecto a la homogeneidad que tiene que satisfacer el grueso de la muestra para asegurar una medida de enriquecimiento que sea representativa de toda la muestra.

2.2.1 Requerimientos de homogeneidad para medidas de enriquecimiento representativas de toda la muestra.

Debido al elevado coeficiente de autoatenuación de los materiales de U, la mayor parte de los rayos gamma de 186 keV que llegan al detector, emergen de una capa superficial muy fina de material. Por esta razón, los requerimientos de homogeneidad de la muestra respecto al U-235 y a la composición de la matriz deben ser muy estrictos si la representatividad del valor de enriquecimiento medido debe ser asegurado para toda la muestra.

Si F es el área de muestra vista por el detector, entonces el volumen de muestra que produce el 50% de la radiación gamma de 186 keV medida, está dada en forma aproximada por: $V_{50}=F \cdot \Lambda$, donde $\Lambda=\ln 2/\mu_L \rho$ es el camino libre

medio de la radiación gamma en la muestra. Λ varía entre 0,025 cm para U metálico y 0,76 cm para polvo de UO_2 de densidad de 0,7 g/cm³.

Si el valor de enriquecimiento determinado por espectrometría gamma debe ser representativo del grueso de la muestra, con un error relativo $\leq 0,1\%$, entonces el enriquecimiento en la capa V_{50} debe ser representativa de toda la muestra, o en otras palabras el valor de enriquecimiento medio de cualquier submuestra de volumen V_{50} , o de su masa equivalente tomada del grueso de la muestra, no debería desviarse en más del 0,1% del enriquecimiento medio de la "gran muestra".

Una condición similar puede ser derivada del grado de heterogeneidad de la matriz tomando en cuenta el impacto del material de la matriz sobre el resultado de la medición de enriquecimiento, tal como se describe más adelante. La relación entre la masa de la matriz y la masa de U en cualquier submuestra de volumen V_{50} no debe variar en más del 1% para materiales de bajo Z ó del 0,1% para materiales pesados, si se quiere mantener el valor del error relativo de la medida debajo del 0,1%.

Estas condiciones generales respecto a la homogeneidad de las muestras solo asegura que el enriquecimiento medido es representativo de toda la muestra y no da límites de tolerancia para inhomogeneidades locales.

2.2.2 Inhomogeneidad en forma de una capa superficial de muestra

Este es el caso más desfavorable en la determinación de enriquecimiento por espectrometría gamma. Consideremos una capa muy fina en la superficie de la muestra, con un enriquecimiento (E_i), diferente del enriquecimiento medio del resto de la muestra (E). Se puede estimar el espesor máximo ($e_{\max}$) de la capa que produce un error $\leq 0,1\%$, a partir de la siguiente ecuación:

$$[(E_i - E)/E] \cdot e_{\max} = 0,001 \cdot \Lambda \quad (2.11) \quad \text{donde :}$$

Λ : camino libre medio de los rayos gamma de 186 keV en la capa de espesor $e_{\max}$.

Por ejemplo, si el enriquecimiento en U-235 de la capa superficial es 50% mayor o menor que el enriquecimiento medio del resto de la muestra (p.ej 1,5% ó 4,5% en la superficie y 3% en el resto de la muestra), el valor de $e_{\max}$ para un error de 0,1% es de 0,5 μm , 11 μm y 3 μm para U metálico, UO_2 ($\delta=1$) y UF_6 ($\delta=4,7$), respectivamente

Si la matriz de la capa superficial es diferente, se puede estimar el espesor máximo ($e_{\max}$) de la capa que produce un error $\leq 0,1\%$, a partir de la siguiente ecuación:

$$[(1/\beta_i)-(1/\beta)/(1/\beta)], e_{\max} < 0,001 \cdot \Lambda \quad (2.12) \quad \text{donde :}$$

β_i y β : factores de atenuación de la capa superficial y del resto, respectivamente.

Por ejemplo: en el caso de una muestra compuesta por una capa superficial de U308 puro y el resto de UO_2 de igual enriquecimiento, el valor de $e_{\max}$ (0,1%) es de 2,0 mm y 0,8 mm para U308 ($\delta=1\text{g/cm}^3$) y U308 ($\delta=2,5\text{g/cm}^3$), respectivamente.

Los ejemplos numéricos dados demuestran que una capa superficial en la muestra con diferente concentración de U-235 ó con una matriz diferente de la media del grueso de la muestra, produce errores significativos en la medida de enriquecimiento.

En aplicaciones prácticas la formación de una capa superficial con diferente matriz y/o enriquecimiento del grueso de la muestra, puede ocurrir cuando la muestra está compuesta de una mezcla de dos polvos de diferente matriz o enriquecimiento y cuando los dos polvos difieren significativamente con respecto al tamaño de partícula y/o densidad. En este caso el polvo con menor tamaño y/o mayor densidad de partícula se acumulará en el fondo del recipiente (segregación de polvos), especialmente cuando la muestra está sujeta a vibraciones.

Se deben tomar precauciones muy especiales cuando se miden mezclas de polvos de diferente enriquecimiento, tal el caso del combustible nuclear levemente enriquecido de Atucha, obtenido por blending de polvos de UO_2 natural y UO_2

enriquecido al 3,4%. El material debe ser cuidadosamente homogeneizado antes de la medición, para asegurar una distribución uniforme.

Otro caso que se presenta en la práctica está relacionado con la presencia de un heel de U (*) remanente de llenados previos, en cisternas de UF6. Si este depósito es suficientemente grueso, podría enmascarar la señal del UF6 contenido en la cisterna, debido al camino libre medio muy corto de los fotones γ de 186 keV ($\Lambda \approx 2$ mm). La magnitud de este efecto ha sido estudiada por Walton et al (7), asumiendo que el heel de U está depositado uniformemente en la superficie de la cisterna cubierta por el UF6 (figura 2.6). Se puede observar en dicha figura que, para una cisterna 30B que contiene UF6 (2% U-235), la cantidad máxima de heel permitida (≈ 11 Kg) produce un error en la medida de enriquecimiento del 16%, si la [U-235] en el heel es del 3%.

Otro caso de inhomogeneidad en forma de una capa superficial de muestra, se puede presentar en la práctica cuando UF6 de diferentes enriquecimientos, provenientes de la línea de proceso de una cascada, se recogen en una misma cisterna de almacenaje por desublimación. En este caso el espesor máximo ($e_{\max}$) de la capa adyacente a la superficie de la cisterna, que produce un determinado error, se puede hallar aplicando la ecuación 2.11.

Por ejemplo: el espesor de una capa superficial con un enriquecimiento del 5% que produce un error del 10% en la medida de enriquecimiento, cuando el grueso de UF6 contenido en la cisterna tiene un enriquecimiento del 3,5%, es de :
 $[(5-3,5)/3,5] \cdot e_{\max} = 0,1 \cdot \Lambda \approx 0,03 \text{ cm}$ donde $\Lambda = \ln 2 / \mu_p = \ln 2 / 4,8 = 0,14$

(*) Depósitos de U compuesto por UO2F2, UO4, UO5 u otros compuesto fluorados intermedios.

2.3 COMPOSICION DE LA MATRIZ DE LA MUESTRA

A excepción del U, todo elemento presente en el material de la muestra es considerado componente de la matriz. La atenuación de la radiación gamma por los elementos que componen la matriz de la muestra, reduce el flujo gamma

observado en su superficie y por lo tanto influencia el valor de enriquecimiento observado.

El factor de atenuación β de la matriz, está dado por :

$$\beta = 1/(1 + \sum_{i \neq U} N_i \sigma_i / N_U \sigma_U) \quad (2.13) \quad \text{ó} \quad \beta = 1/(1 + \sum_{i \neq U} \rho_i \mu_i / \rho_U \mu_U) \quad (2.14)$$

(N_i/N_U) : relación atómica ; (ρ_i/ρ_U) : relación de masas

Si se usa U308 en la calibración del sistema de medición, el valor de enriquecimiento de muestras desconocidas con diferente composición de matriz se debe corregir respecto al U308 aplicando la siguiente ecuación :

$$E = E_{\text{medido}} \cdot C_{\text{ma}} \quad (2.15)$$

lo cual significa que la composición de la matriz debe ser conocida para poder hacer las correcciones necesarias .

El factor de corrección de matriz C_{ma} está compuesto de tres términos que son los que más contribuyen a la atenuación de la matriz :

1. Diferentes compuestos de U y diferentes estequiometrias
2. Impurezas en la muestra
3. Contenido de humedad

2.3.1 Compuestos de U y estequiometría

En la tabla 2.3 se muestran los factores de atenuación de matriz (β) (*) y la variación de la tasa de conteo gamma relativa al U308 calculados para algunos compuestos de U típicos, así como también los factores de corrección correspondientes, que normalizan la respuesta gamma del material de la muestra (x), respecto al U308.

Los óxidos de U con una relación O/M conocida y los compuestos de fluor, se normalizan respecto al material de referencia (U308), usando las ecuaciones de corrección :

$$C_{\text{comp}}(r_{O/M}) = 0,985 + 0,0056 \cdot r_{O/M} \quad (2.16) \quad \text{donde } r_{O/M} = N_O/N_U$$

$$C_{\text{comp}}(r_{F/M}) = 0,985 + 0,0063 \cdot r_{F/M} \quad (2.17) \quad \text{donde } r_{F/M} = N_F/N_U$$

(*) Estos factores fueron calculados a partir de las secciones eficaces atómicas, las cuales han sido determinadas con un error del 5%.

2.3.2 Impurezas presentes en la muestra

Los componentes minoritarios de la muestra no afectan la medida de enriquecimiento si la relación :

$$\sum_{i \neq U} \mu_i \cdot \rho_i / \rho_{\text{comp}} \ll \mu_{\text{comp}}$$

donde $\rho_i / \rho_{\text{comp}}$ es la concentración del elemento minoritario i , dada como fracción de masa del compuesto de U y μ_i es el coeficiente de atenuación asociado, que varía entre $0,15 \text{ cm}^2/\text{g}$ para $Z < 30$ a $1,5 \text{ cm}^2/\text{g}$ para elementos pesados (tabla 2.4)

Una estimación de la concentración máxima de impurezas, que no altera la medición de enriquecimiento por encima del 0,1% es :

1 % en peso del compuesto de U para elementos livianos

0,1% en peso del compuesto de U para elementos pesados

Para el material de referencia (U308) se cumplen estos requisitos.

Si la fracción de impurezas en la muestra es mayor que el límite crítico, se debe incluir el factor de corrección de impurezas C_{imp} para incrementar la exactitud del valor de la medición de enriquecimiento, cuando el sistema de medición fue calibrado con U308 MR, aplicando la siguiente ecuación:

$$C_{\text{imp}} = 1 + \sum_{i \neq U} \rho_i \mu_i / \rho_{\text{comp}} \cdot \mu_{\text{comp}} \quad (2.18)$$

Un ejemplo práctico es el de un combustible nuclear con veneno quemable, por ejemplo UO_2 con 5% de Gd. En este caso el factor de corrección obtenido aplicando la ecuación 2.18 es de 1,024.

La influencia de impurezas es despreciable en la medición de enriquecimiento de elementos combustibles, dentro de los límites de concentración aceptables.

Como se puede apreciar en la tabla 2.5, aunque todos los elementos estén presentes en las concentraciones dadas, el factor de corrección es de 1,0004

2.3.3 Contenido de humedad

El contenido de humedad de la muestra contribuye al error sistemático, sobre todo en el caso de compuestos muy higroscópicos. El factor de corrección, cuando se calibra contra U308 RM de muy bajo contenido de humedad, es de :

$$C_{\text{humed}} = 1 + (\mu_{\text{H}_2\text{O}}/\mu_{\text{comp}}) * (\rho_{\text{H}_2\text{O}}/\rho_{\text{comp}}) \quad 2.19$$

$\rho_{\text{H}_2\text{O}}/\rho_{\text{comp}}$: contenido de agua en la muestra, en fracción de masa

Usando los valores de μ para H₂O y UO₂

$$\mu_{\text{H}_2\text{O}} = 0,139 \text{ cm}^2/\text{g} \text{ y } \mu_{\text{UO}_2} = 1,313 \text{ cm}^2/\text{g}$$

se halla el factor de corrección para UO₂, que es representativo para la mayoría de los compuestos de U.

$$C_{\text{H}_2\text{O}} (\text{UO}_2) = 1 + 0,105 \rho_{\text{H}_2\text{O}}/\rho_{\text{U}} \quad (2.20)$$

Si el contenido de H₂O es del 1%, afectará el resultado de la medida de enriquecimiento en más del 0,1% relativo y se debe aplicar este factor de corrección (2.20) al resultado de la medida.

2.4 INTERFERENCIA DE RADIACION GAMMA

La radiación gamma proveniente de otros radionucleídos presentes en la muestra, interfiere con la radiación gamma de 186 keV del U-235 cuando su energía es muy próxima y no puede ser resuelta por el detector. La influencia de la radiación interferente, depende de la resolución de energía del sistema de conteo usado. Cuando se utiliza detector de Ge de alta resolución, es necesario examinar la presencia de radiación interferente, dentro de una ventana de energía de aproximadamente $\pm 1,5$ keV que engloba el fotopico gamma de 186 keV. También las ventanas de background requeridas para la determinación del fondo Compton continuo debajo del fotopico, pueden estar sujetas a efectos de interferencia.

Esta situación es mucho más grave si se utiliza NaI como detector, donde las ventanas típicas de energía son de 160-210 keV para la región del fotopico y entre 220-280 keV para la región de fondo.

La interferencia gamma equivale a un enriquecimiento adicional en U-235, y la magnitud y signo de ese "bias" depende de las propiedades de la radiación del isótopo interferente, de su concentración en la muestra y de la selección de las ventanas de conteo. Con el objeto de tener una estimación del término de interferencia gamma, se asume que la eficiencia del detector y la atenuación de fotones en el material de la muestra y en el contenedor no dependen de la energía gamma dentro de las regiones de interés.

La siguiente expresión es utilizada para corregir la interferencia gamma (C_{int}) originada en el isótopo radiactivo x :

$$C_{int} = [100 \cdot N_x(t) / N_U] \cdot [(P_x - bB_x) / (P_{235} - bB_{235})] \quad (2.21)$$

C_{int} está dado en unidades de enriquecimiento de U-235 (at%), N_x / N_U es el contenido del isótopo interferente x en el material muestra, dado en fracción de átomos de U total (todos los isótopos), P_x y B_x significan la tasa de emisión acumulativa (por átomo) de aquellos fotones interferentes cuyas energías están dentro de la ventana del fotopico o de fondo, respectivamente. P_{235} y B_{235} son las tasas de emisión de fotones correspondientes al U-235 y b es la tasa de fondo continuo integrado en ambas ventanas.

En lugar de utilizar como unidad la fracción de átomos y la tasa de emisión por átomo, se pueden utilizar en la ecuación 2.21, las unidades equivalentes de fracción de masa y de tasa de emisión específica (fotones emitidos/g de isótopo).

El contenido del isótopo x presente en la muestra, puede decrecer o incrementar en función del tiempo transcurrido desde la separación química del material muestra, dependiendo de la vida media del isótopo particular y/o las vidas medias de sus predecesores en la cadena de decaimiento.

La discusión de los efectos de interferencia gamma están restringidas en esta sección a materiales de U altamente purificados. Entonces solamente será considerada la radiación gamma proveniente de isótopos del U y sus descendientes en la cadena radioactiva.

2.4.1 Interferencia por decaimiento del U-238

En todos aquellos materiales que contienen U de bajo enriquecimiento, el U-238 está presente en grandes cantidades. Por lo tanto la interferencia de los rayos gamma originados en la cadena de decaimiento del U-238 debe ser cuidadosamente examinada.

Muy especialmente, el Pa-234 (producto de decaimiento del Th-234) que emite rayos gamma de energía de hasta 2 Mev. El Pa-234 crece con el decaimiento del U-238 después de la purificación química del U y alcanza el equilibrio radiactivo con el U después de 3 meses de la separación.

En el equilibrio, la actividad del Pa es proporcional al contenido de U-238 y por lo tanto es aproximadamente constante para U de bajo enriquecimiento. Afortunadamente dentro de la región del fotopico de 186 kev, cuando se usa detector de Ge, solamente 2 picos gamma con energías de 186 (0,32%) y 184,7 (0,15%) han sido identificados. Estos fotones gamma son emitidos por el decaimiento del Pa-234 y Pa-234m respectivamente.

El contenido de Pa en la muestra crece, después de la separación, con la vida media del Th-234 (24 d), de acuerdo con la siguiente ecuación :

$$N_{Pa}/N_U = (1-E/100) \cdot (1-e^{-0,0298t}) \quad (2.22) \quad \text{donde :}$$

E = átomos % de U-235

t = tiempo después de la separación (días)

Asumiendo que la ventana de fondo está libre de rayos gamma interferentes y usando los valores para las actividades específicas de los fotones γ de 184,7 y 186 kev (0,15+0,32 γ /s/g U-235) (tabla 1.1') en la ecuación 2.21, se llega a la siguiente estimación para el término de interferencia (C_{int}), cuando se utiliza detector de Ge :

$$C_{int}(Pa) = (100-E) \cdot (1-e^{-0,0298t}) \cdot (0,15+0,32)/4,6 \cdot 10^4 = (100-E) \cdot (1-e^{-0,0298t}) \cdot 1 \cdot 10^{-5} \quad (2.23)$$

que se puede aproximar para U de bajo enriquecimiento :

$$C_{int}(Pa) = 0,001 \cdot (1-e^{-0,0298t}) \text{ (at\% U235)} \quad (2.24)$$

Debido a la interferencia de los rayos gamma del Pa, muestras de U "envejecido" exhiben una tasa de contaje gamma ligeramente mayor en la región de 186 keV, comparado con material de U recién separado. Esto da como resultado un pequeño "bias" ($+C_{int}$) para muestras de U envejecidas.

Por otra parte si el sistema ha sido calibrado usando un material de referencia envejecido, entonces el valor de enriquecimiento de un material de U "fresco" (recién separado) es ligeramente bajo. En este caso el enriquecimiento en U-235 debe ser corregido usando la fórmula :

$$E_{verd} = E_{calib} + 0,001 \cdot (1 - e^{-0,0293t}) \text{ (at\% U-235)} \quad (2.25)$$

Es de notar que la corrección por el Pa dada en la ecuación 2.25 es pequeña y tiende a cero para materiales de U envejecidos, esto es aproximadamente 3 meses después de la separación. La corrección puede ser despreciada (error relativo $<0,1\%$) si el enriquecimiento en U-235 de la muestra excede el 1%. Por otra parte, las mediciones de materiales frescos de U depletado (0,2-0,3% U-235) pueden dar un "bias" de hasta $-0,4\%$ si no se aplica la corrección dada en 2.25.

Como se muestra en la figura 2.7, el error puede ser mucho mayor cuando se mide con un detector de NaI en un instrumento calibrado con patrones de referencia en equilibrio radioactivo y se aplica el método de las 2 ventanas para corregir el fondo. Se puede apreciar en dicha figura la variación de la medida de enriquecimiento a partir de la separación del Th-234 (material fresco) hasta alcanzar el equilibrio radioactivo (material envejecido)

Cuando se usa detector de NaI en las mediciones de enriquecimiento, se debe barrer un rango de energía mayor para detectar radiación gamma interferente, debido a la menor resolución de este tipo de detectores.

Puesto que muchas líneas gamma con diferentes energías provenientes del decaimiento del U-238 (*), son observadas en las regiones de interés de las mediciones de enriquecimiento, el valor del término de corrección de interferencia,

depende de la elección de la ventana de contaje, (ancho y posición en el espectro) y no puede ser fácilmente predecible.

La línea gamma más intensa proveniente del decaimiento del U-238 en el rango de energía considerado, es la de 258,7 keV originada en el decaimiento del Pa-234m. Si esta línea es incluida en la ventana de fondo y la amplitud de ventana del fotopico y de fondo son aproximadamente iguales ($b=1$ en eq. 2.21) entonces es de esperar un valor negativo del término de corrección por interferencia (C_{int}) de alrededor de -0,003% a -0,005% para materiales de U envejecidos. Por lo tanto se debe aplicar una corrección negativa, correspondiente a la ecuación 2.25, en materiales recién separados, si el sistema de medición fue calibrado con material de referencia envejecido.

Como se puede notar en la fórmula 2.21, el efecto de interferencia disminuye si el numerador tiende a cero. Bajo ciertas condiciones, que dependen del espectro gamma del radioisótopo interferente, esto puede ser llevado a cabo a través de una elección apropiada de las ventanas de contaje (ancho y posición), tal como será discutido más adelante.

(*) Especialmente 258 keV (7%) del Pa-234m y 131-152 keV (3-1%) del Pa-234

TABLA 2.1 Dimensiones lineales de la muestra para una respuesta γ del 99,9% en una dirección

Compuesto de U	Coefficiente atenuación másico	Densidad de la muestra	Espesor de muestra para una respuesta γ del 99,9%
-	cm ² /g	g/cm ³	cm
U metal	1,47	19,0	0,25
UO ₂	1,31	1,0	5,27
		2,0	2,64
		11,0	0,48
U ₃ O ₈	1,27	1,0	5,44
		2,0	2,72
		8,3	0,66
UF ₆	1,03	1,0	6,71
		4,7	1,43
UO ₂ (NO ₃) ₂ ·6H ₂ O	0,77	1,0	8,97
		2,8	3,20

Parámetros colimador		Parámetros de muestra mínimos verdaderos				Parámetro, de muestra "aprox. mínimo", para $\delta_{mín}=5,45 \text{ g/cm}^3$ U3O8				Parámetro, de muestra "aprox. mínimo", para $\delta_{mín}=5,20 \text{ g/cm}^3$ MR				Parámetros de muestra para el 99,9 % espesor quasi- ∞ en todas direcciones			
D_c (cm)	H_c (cm)	D_m^{min} (cm)	H_m^{min} (cm)	M_m^{min} (g)	D_g (cm)	H_m (cm)	M_m (g)	D_m (cm)	H_m (cm)	M_m (g)	D_m^{TD} (cm)	H_m^{TD} (cm)	M_m^{TD} (g)	D_m^{TD} (cm)	H_m^{TD} (cm)	M_m^{TD} (g)	
2	1	5,08	2,15	109	5,05	2,18	109	5,19	2,08	110	7,10	2,18	216	7,10	2,18	216	
2	2	4,21	2,24	78	4,29	2,18	79	4,59	2,08	86	5,68	2,18	138	5,68	2,18	138	
2	3	3,65	2,28	60	3,78	2,18	61	4,22	2,08	73	4,82	2,18	99	4,82	2,18	99	
2	4	3,29	2,29	49	3,44	2,18	50	4,14	2,08	70	4,25	2,18	77	4,25	2,18	77	
3	1	6,34	2,08	165	6,23	2,18	166	6,35	2,08	165	8,93	2,18	342	8,93	2,18	342	
3	2	5,64	2,16	135	5,63	2,18	135	5,81	2,08	138	7,53	2,18	242	7,53	2,18	242	
3	3	5,13	2,22	115	5,18	2,18	115	5,50	2,08	123	6,68	2,18	191	6,68	2,18	191	
3	4	4,75	2,25	99	4,85	2,18	101	5,32	2,08	116	6,06	2,18	157	6,06	2,18	157	
4	1 (*)	7,49	2,04	224	7,31	2,18	229	7,42	2,08	225 (*)	10,63	2,18	483	10,63	2,18	483	
4	2	6,87	2,11	195	6,78	2,18	197	6,92	2,08	196	9,10	2,18	354	9,10	2,18	354	
4	3	6,41	2,16	175	6,41	2,18	176	6,61	2,08	178	8,29	2,18	293	8,29	2,18	293	
4	4	6,08	2,20	159	6,42	2,18	159	6,42	2,08	168	7,68	2,18	252	7,68	2,18	252	
5	1 (*)	8,61	2,00	291	8,38	2,18	300	8,48	2,08	293 (*)	12,27	2,18	644	12,27	2,18	644	
5	2 (*)	8,01	2,06	260	7,85	2,18	264	7,98	2,08	260 (*)	10,55	2,18	476	10,55	2,18	476	
5	3 (*)	7,62	2,11	241	7,53	2,18	243	7,70	2,08	242 (*)	9,74	2,18	406	9,74	2,18	406	
5	4 (*)	7,31	2,15	226	7,27	2,18	226	7,49	2,08	229 (*)	9,15	2,18	358	9,15	2,18	358	

(*) : Estos colimadores no deben ser usados con los recipientes de referencia porque dan una respuesta γ 99,9%

TABLA 2.2 : Dimensiones y masas de muestra requeridas para una respuesta γ del 99,9% en función de las dimensiones del colimador (calculada a través de la ecuación 2.9)

Material de la muestra : polvo de U3O8

Densidad de la muestra : $2,5 \text{ g cm}^{-3}$

Muestra y colimador : cilindricos (eje común)

Diámetro del colimador : D_c

Altura del colimador : H_c

Pared del contenedor : 2 mm de Al

Distancia muestra/plano entrada colimador : 3 mm

Diámetro de muestra : $D_m^{\text{mín}}, D_m^{\text{TD}}, D_m^{\text{MR}}, D_m^{\text{TD}}$

Altura de muestra : $H_m^{\text{mín}}, H_m^{\text{TD}}, H_m^{\text{MR}}, H_m^{\text{TD}}$

Masa de muestra : $M_m^{\text{mín}}, M_m^{\text{TD}}, M_m^{\text{MR}}, M_m^{\text{TD}}$

TABLA 2.3 : Factores de atenuación y corrección de matriz y cambios relativos en la tasa de conteo γ de 186 kev para algunos compuestos de U (U3O8 usado como referencia)

Compuesto de U	Factor de atenuación de la matriz (β)	Cambio relativo tasa de conteo γ de 186 kev	Factor de corrección de matriz (C_{comp})
U metal	1,0000	+1,51%	0,9849
UO ₂	0,9886	+0,38%	0,9962
U ₃ O ₈	0,9849	0	1
UF ₄	0,9750	-1,00%	1,0101
UF ₆	0,9630	-2,22%	1,0228
UO ₂ (NO ₃) ₂ ·6H ₂ O	0,9098	-7,62%	1,0825

TABLA 2.4 : Límites máximos de concentración de impurezas en combustibles LWR y coeficientes de atenuación másico para γ de 186 keV (5)

ELEMENTO	Nivel de concentrac. Máx.	μ_i (186 keV)	$(p/p_U) \cdot \mu_i$
-	p/p_U (ppm)	cm^2/g	cm^2/g
B	1.5	0.116	$1.74 \cdot 10^{-7}$
C	100	0.125	$1.25 \cdot 10^{-5}$
N	75	0.125	$9.38 \cdot 10^{-6}$
F	25	0.119	$2.98 \cdot 10^{-6}$
Mg	50	0.124	$5.95 \cdot 10^{-6}$
Al	300	0.122	$3.66 \cdot 10^{-5}$
Si	500	0.127	$6.35 \cdot 10^{-5}$
Cl	20	0.125	$2.50 \cdot 10^{-6}$
Ca	100	0.136	$1.36 \cdot 10^{-5}$
Ti	40	0.129	$5.16 \cdot 10^{-6}$
V	1	0.130	$1.30 \cdot 10^{-7}$
Cr	500	0.135	$6.75 \cdot 10^{-5}$
Mn	10	0.137	$1.37 \cdot 10^{-6}$
Fe	500	0.144	$7.20 \cdot 10^{-5}$
Co	6	0.147	$8.82 \cdot 10^{-7}$
Ni	300	0.157	$4.71 \cdot 10^{-5}$
Cu	50	0.155	$7.75 \cdot 10^{-6}$
Zn	20	0.161	$3.22 \cdot 10^{-6}$
Cd	1	0.321	$3.21 \cdot 10^{-7}$
In	3	0.336	$1.01 \cdot 10^{-6}$
Sn	5	0.348	$1.74 \cdot 10^{-6}$
Sm, Eu, Gd, Dy	0.6	0.6	$3.60 \cdot 10^{-7}$
W	50	0.892	$4.41 \cdot 10^{-5}$
Pb	20	1.13	$2.26 \cdot 10^{-5}$
Bi	2	1.17	$2.34 \cdot 10^{-6}$

$$\Sigma(p/p_U) \cdot \mu_i = 4.63 \cdot 10^{-7}$$

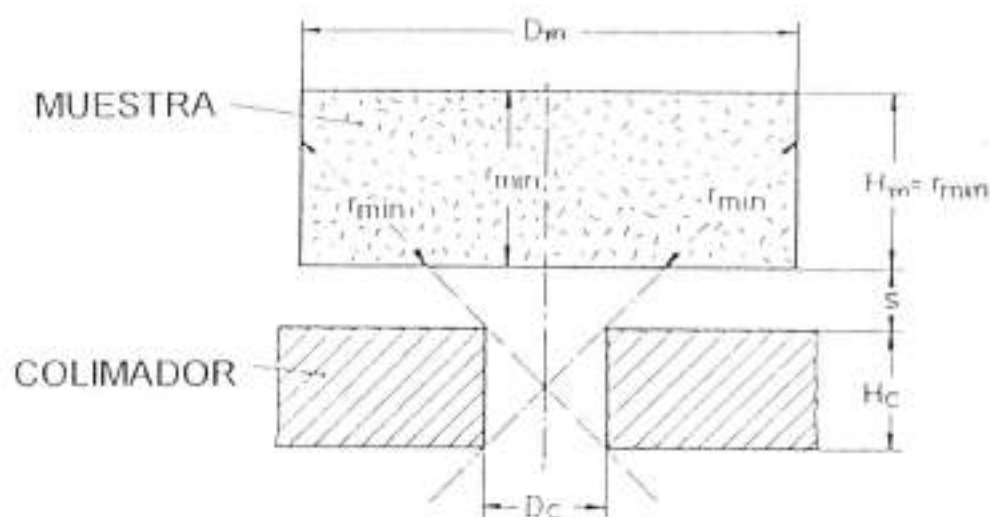


Figura 2.1 Dimensiones de una muestra de espesor quasi- ∞ en todas direcciones visible por un detector de gran superficie



Figura 2.2 : Camino libre medio de los rayos γ a través de la muestra
a) para colimadores estrechos
b) para colimadores anchos

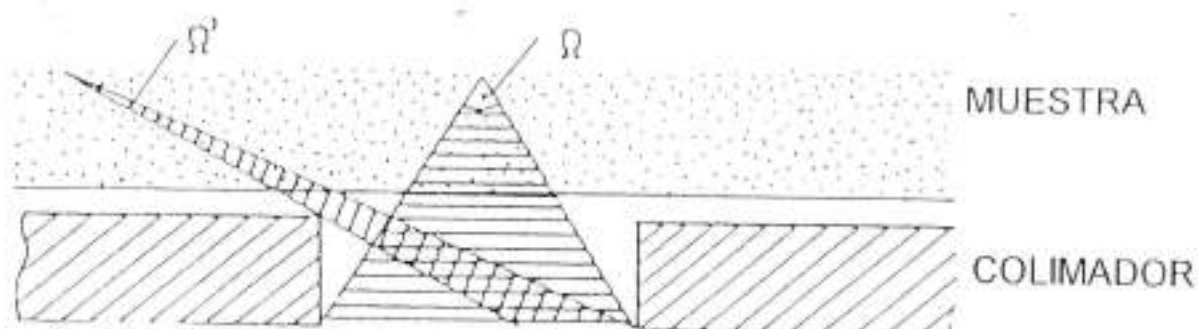


Figura 2.3 : Transmisión de rayos γ a través de un colimador cilíndrico

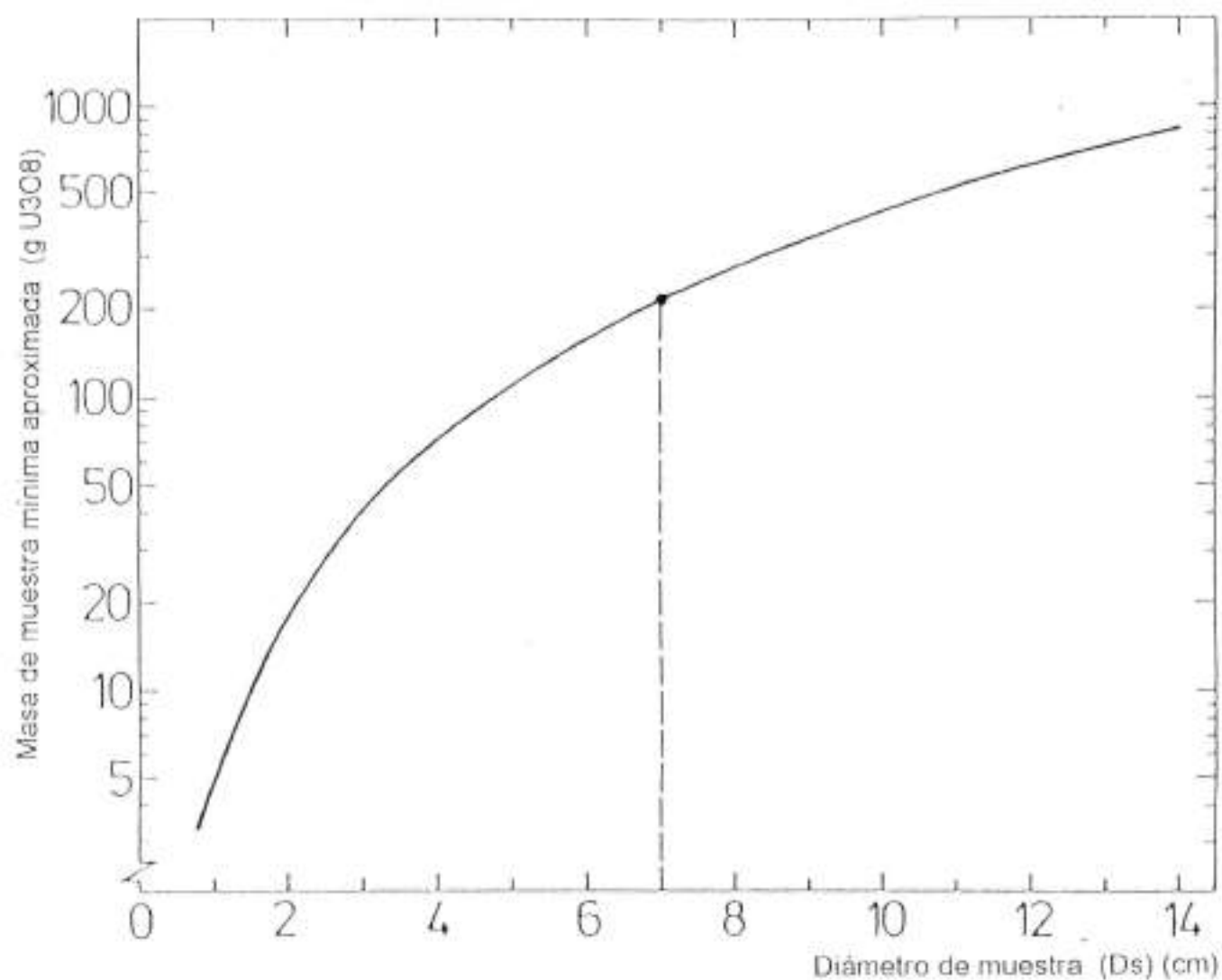


FIGURA 2.4 : Masa de U308 *aproximadamente mínima* requerida para una respuesta γ del 99,9% en función del diámetro de muestra (6)

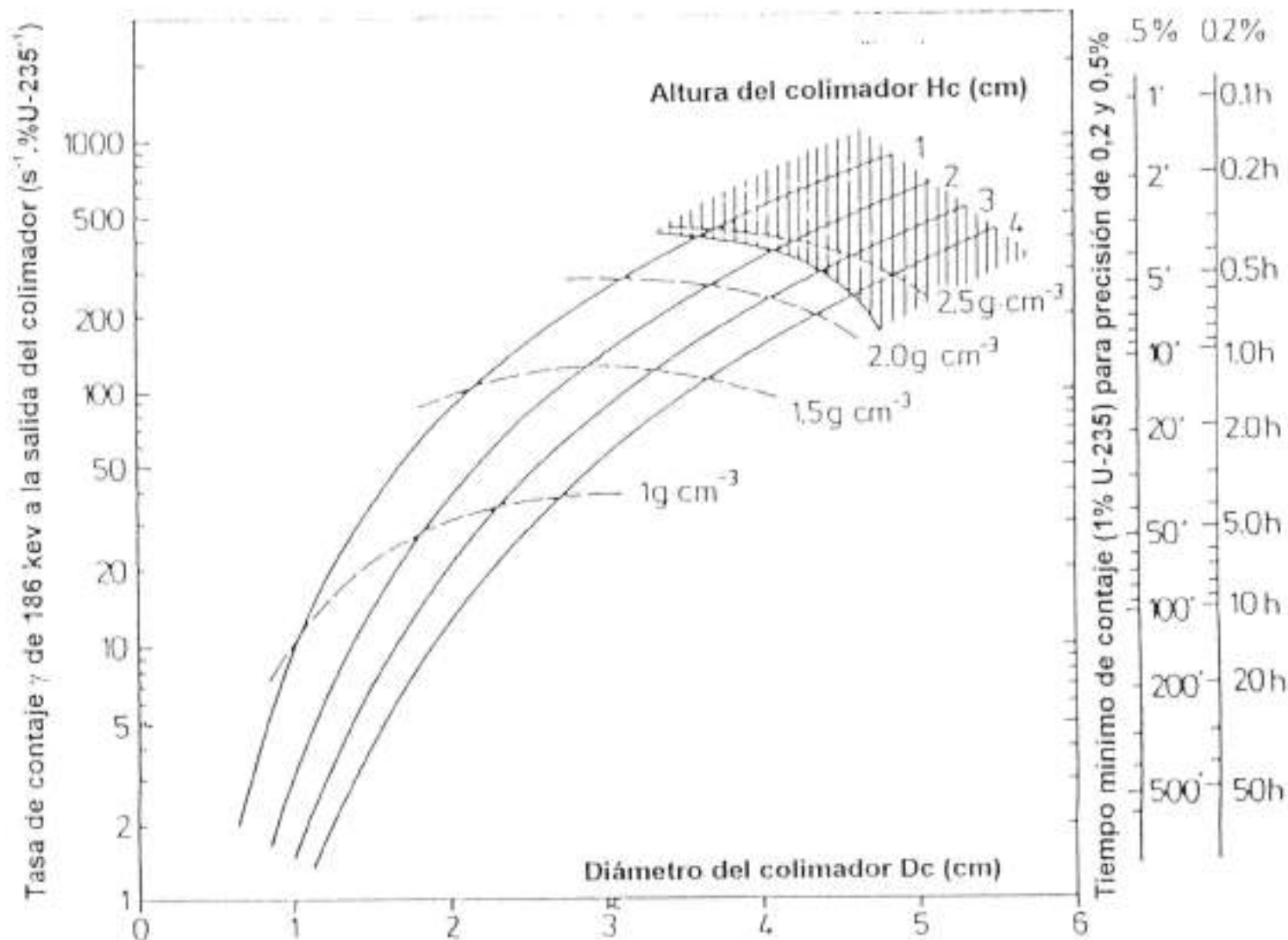


FIGURA 2.5 :Dimensiones de colimador recomendadas, tasa de conteo y tiempo (5)

Los límites superiores de dimensión del colimador para diferentes densidades de U3O8 contenido en recipientes de referencia, se muestran en líneas punteadas.

Las geometrías de colimador correspondiente a la región sombreada no cumplen con la condición de geometría $\text{quasi-}\infty$ para los patrones de referencia

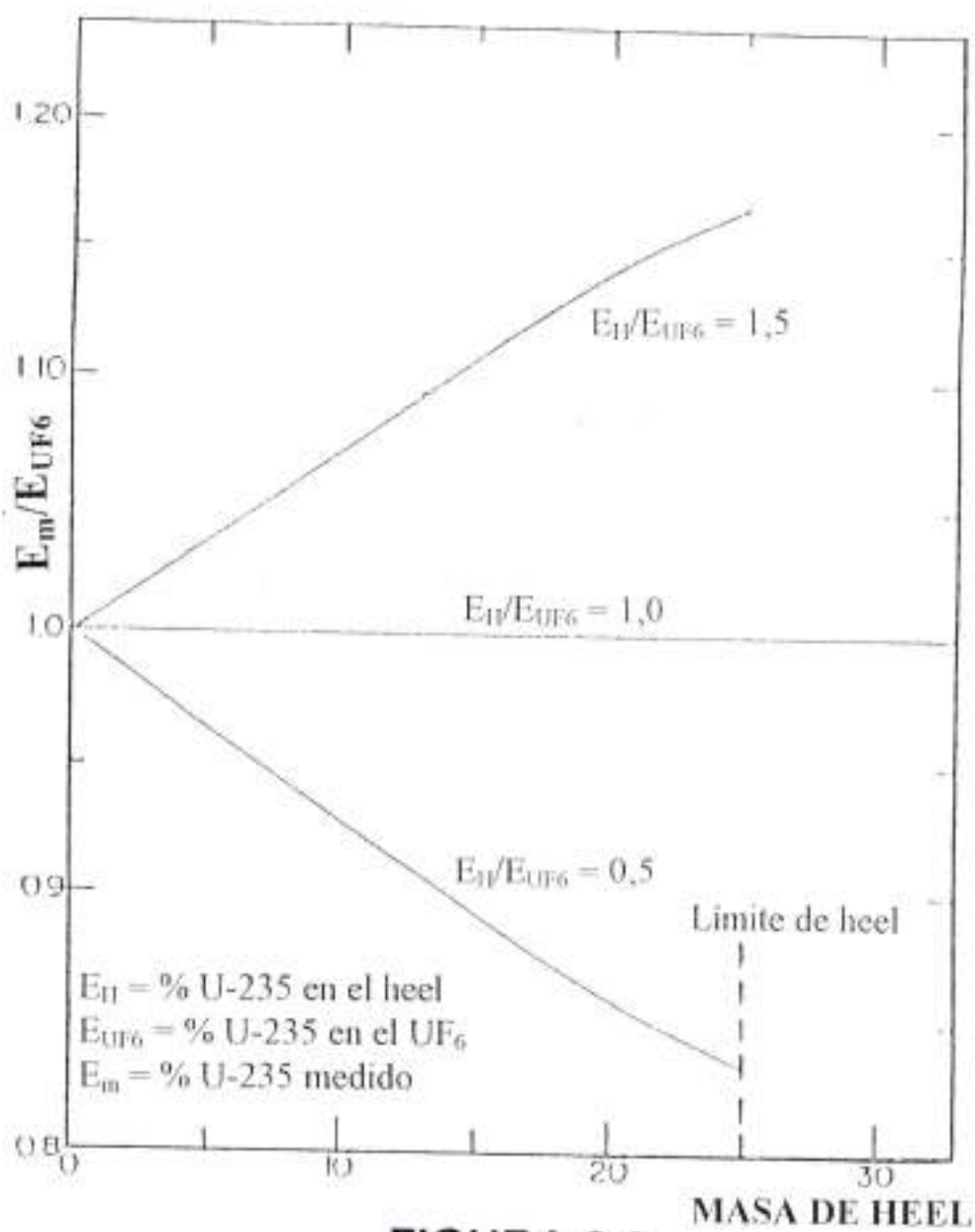
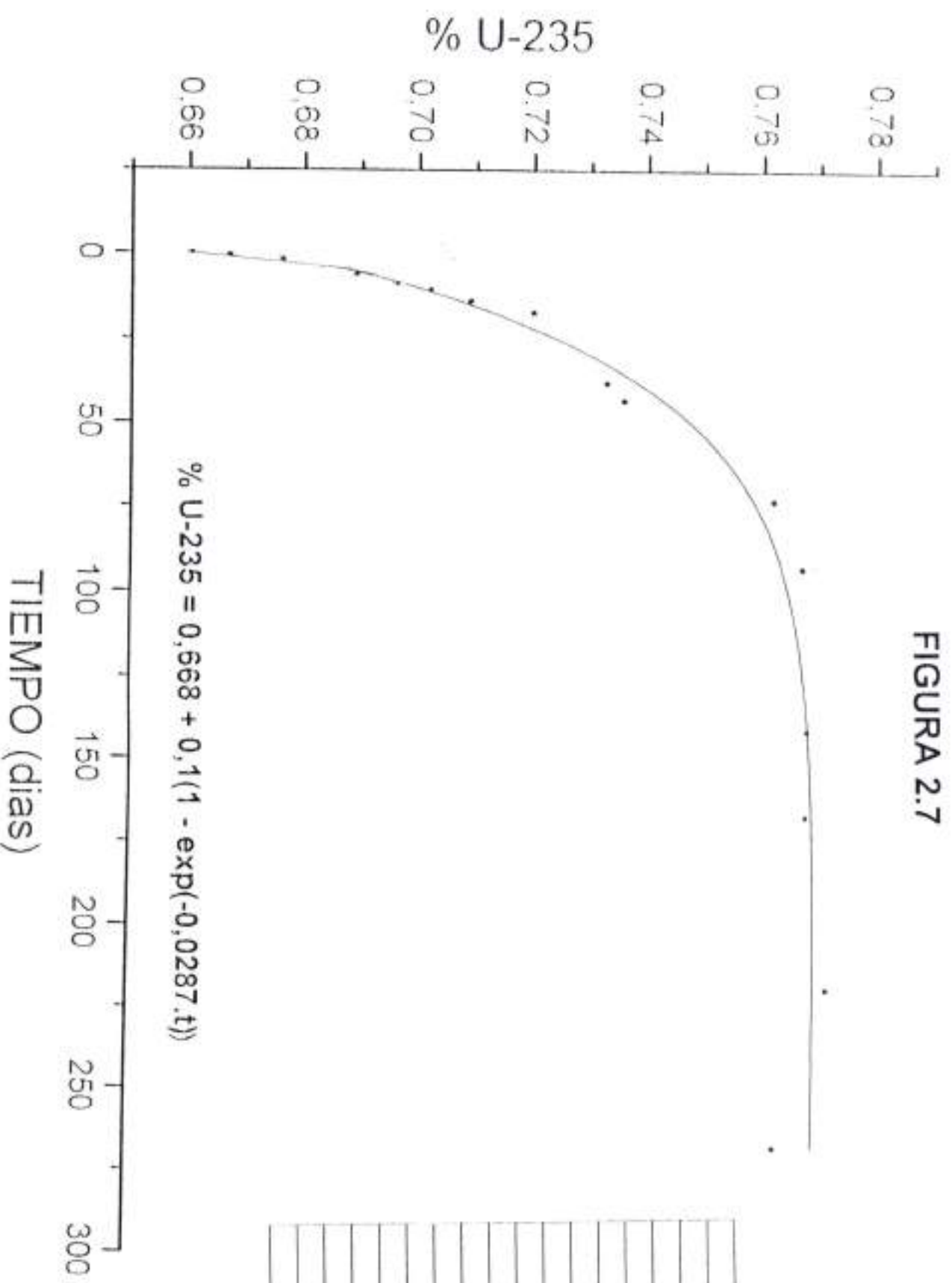


FIGURA 2.6

FIGURA 2.7



$$\% \text{ U-235} = 0,668 + 0,1(1 - \exp(-0,0287.t))$$

TIEMPO (días)

[illegible]

3. INFLUENCIA DE LA GEOMETRIA DE CONTAJE Y RECIPIENTE DE LA MUESTRA

Los parámetros de la muestra (tamaño y composición) que afectan los resultados de las mediciones de enriquecimiento por espectrometría gamma, fueron analizados en la sección anterior. Analizaremos ahora la influencia de aquellos parámetros de medición que no están relacionados con la muestra propiamente dicha. Estos comprenden tanto los efectos introducidos por la disposición geométrica del sistema de conteo (muestra, colimador, detector) como por la atenuación gamma en la pared del contenedor.

3.1 GEOMETRIA DETECTOR-COLIMADOR

La tasa de conteo máxima que puede ser observada en un sistema de medición, está determinada por los elementos geométricos que definen el ángulo sólido que ve el detector. Estos elementos son, el área de entrada del colimador y en ciertos casos el área activa del detector gamma.

En la figura 3.1 se muestran algunas configuraciones típicas colimador-detector, para diferentes diámetros de detector. Se asume, tanto para el detector como para el colimador, una forma cilíndrica con un eje común. Las áreas sombreadas de la figura 3.1 muestran el ángulo sólido que ve el detector.

Se puede ver en dicha figura, que cuando varía la distancia colimador-detector en los casos a, b y c, varía el ángulo sólido visto por el detector y por lo tanto la tasa de conteo, mientras que en el caso d, la respuesta gamma del sistema de conteo no se ve afectada por pequeñas variaciones de la distancia detector-colimador.

En discusiones previas relativas al tamaño de muestra quasi-infinito y de la tasa de conteo gamma de 186 kev, se asumió siempre que el área activa del detector es significativamente mayor que la sección transversal del colimador, como en el caso (d) de la figura 3.1. Con el uso de detectores de menor tamaño, se plantean los siguientes interrogantes:

1. Es válido el valor del tamaño de muestra quasi-infinito recomendado en 2.1.4 para todas las geometrías detector-colimador consideradas aquí?
- 2.Cuál es la tasa de conteo gamma de 186 kev esperada en cada caso?
3. En qué medida pequeñas variaciones en la distancia entre el colimador y el detector pueden afectar los resultados de las mediciones?

1. La primera pregunta se puede contestar fácilmente por medio de simples consideraciones geométricas. Se puede deducir de la figura 3.1 que el ángulo sólido a través del cual el detector ve a la muestra, decrece con el decrecimiento de tamaño del detector y con el incremento de la distancia entre el colimador y el detector. Conjuntamente con el ángulo de visión también decrece el diámetro de muestra requerido para alcanzar la condición de muestra quasi-infinita. Por lo tanto si esta condición se cumple para una determinada muestra y un colimador particular usando un detector de gran área, entonces también se cumple para detectores más pequeños ubicados a cualquier distancia entre el detector y el plano de salida del colimador.

2. La estimación de la tasa de conteo gamma de 186 kev y el tiempo de conteo asociado, requerido para una precisión determinada en la medida, es útil en el diseño de nuevos sistemas de conteo y puede ser obtenido a partir de las siguientes ecuaciones, para colimadores cónicos y cilíndricos⁽⁵⁾:

$$I_{\gamma}^{cono} = E \cdot \pi \cdot A(\pi D_c^2/4) \cdot [(2H_c^2/D_c^2) \cdot (1 + (D_c^2 + D_{det}^2)/4H_c^2) - [1 + (D_c^2 + D_{det}^2)/4H_c^2]^2 \cdot D_c^2 \cdot D_{det}^2/4H_c^2]^{1/2} \quad (3.1)$$

$$I_{\gamma}^{cil} = E \cdot \pi \cdot A(\pi D_c^2/4) \cdot [(2H_c^2/D_c^2) \cdot (1 + (D_c^2/2H_c^2)) - (1 + D_c^2/H_c^2)^{1/2}] \quad 3.2$$

Las tasas de conteo a la salida del colimador que se muestran en la figura 2.5 son solamente válidas para detectores de gran superficie. Las obtenidas con detectores de menor superficie pueden ser estimadas a partir de

la geometría de contaje efectiva, tal como se indica en la figura 3.1. Las 4 geometrías colimador-detector típicas, indicadas en dicha figura, están caracterizadas por los tamaños relativos del diámetro del colimador (D_c) respecto al del detector (D_{det}) :

- a) $D_{det} < D_c$ En este caso el ángulo de visión está determinado por el área de entrada del colimador y por la sección transversal del volumen activo del detector. Esta geometría corresponde aproximadamente a un colimador cónico con diámetro D_c y D_{det} para las áreas de entrada y salida del colimador, respectivamente. La altura efectiva del colimador (H_{eff}) es aproximada por la distancia entre el plano de entrada del colimador y el plano correspondiente al espesor medio del detector. Una estimación de la tasa de contaje máxima puede ser obtenida a partir de la ecuación 3.1 para colimadores cónicos.
- b) $D_{det} = D_c$ En este caso la geometría es aproximadamente equivalente a la de un detector cilíndrico con un diámetro D_c y una altura H_{eff} , entre el plano de entrada del colimador y el plano correspondiente al espesor medio del detector.. La ecuación 3.2 describe la eficiencia geométrica para este caso particular.
- c) $D_{det} > D_c$ En este caso la estimación de la tasa de contaje gamma de 186 kev máxima observable, es obtenida a partir de la ecuación 3.2 para un colimador cilíndrico de diámetro D_c y una altura efectiva H_{eff} , medida entre el plano de entrada del colimador y un plano ubicado entre los planos de salida del colimador y el correspondiente al espesor medio del detector (fig. 3.1 C).
- d) $D_{det} \gg D_c$ En este caso la eficiencia geométrica está determinada exclusivamente por las dimensiones del colimador D_c y H_c , tal como se describe en la ecuación 3.2

Es de hacer notar que los valores máximos observables de la tasa de contaje gamma de 186 kev obtenidas a partir de las ecuaciones 3.1 y 3.2, si bien tienen en cuenta el diámetro del detector, no tienen en cuenta la eficiencia intrínseca del mismo. A fin de hacer una estimación de la tasa de contaje gamma de 186 kev realmente observable, se pueden usar valores de alrededor de 40 a 60% para la eficiencia intrínseca del detector en el pico de 186 kev. Esto representa una estimación aceptable para los detectores de Ge comunmente usados, con una capa activa de 2 cm de espesor.

Los efectos de la geometría detector-colimador sobre la tasa de contaje gamma de 186 kev son ilustrados en la figura 3.2 para dos colimadores típicos, asumiendo una geometría cilíndrica con un eje de simetría común para el colimador y el detector. El gráfico, que representa la tasa de contaje relativa del detector en función de la relación diámetro detector/diámetro colimador,

muestra la fracción de rayos gamma que llegan al detector, comparada con el número total de fotones gamma que penetran en el colimador. La "eficiencia de conteo geométrica" definida de esta forma incrementa desde el 0% para detectores extremadamente pequeños hasta el 100% para detectores de gran área.

3. Un montaje inestable del colimador, puede introducir errores sistemáticos considerables en las mediciones de enriquecimiento por variaciones de la distancia detector-colimador. En la figura 3.2', que muestra las variaciones que causan errores del 0,1% en la tasa de conteo gamma, se puede ver la gran sensibilidad del sistema de conteo a variaciones de la distancia colimador-detector, si el área activa del detector es más pequeña que el área del colimador. Un cambio de tan sólo 20 μm produce un error de medición del 0,1%. Esta extrema sensibilidad decrece sólo lentamente con el incremento del diámetro del detector para distancias colimador-detector realistas (ver fig 3.2). Por lo tanto se deben tomar precauciones para mantener la distancia colimador-detector fija durante las mediciones.

Con el objeto de reducir la influencia de posibles variaciones en la distancia colimador-detector durante las mediciones, se recomienda el uso de colimadores con diámetro significativamente inferiores al diámetro del área activa del detector gamma, como se muestra en la figura 3.1 (d) o bien fijar rígidamente el colimador al detector cuidando de no dañar el mismo.

3.2 ATENUACION DE FOTONES POR LA PARED DEL CONTENEDOR DE LA MUESTRA (ver app.1)

Una ventaja inherente de la medición de enriquecimiento en U-235 por espectrometría gamma es que esta puede ser efectuada *en forma no destructiva a través de la pared del contenedor*. Sin embargo, la medición debe ser corregida por la atenuación que sufren los rayos gamma al atravesar dicha

pared. Esto requiere especificaciones muy estrictas y control del espesor de la pared del recipiente que contiene la muestra.

La atenuación de fotones en una capa de absorbedor de espesor (d) está expresada por la relación :

$$A_{abs} = \exp(-\lambda \cdot d) \quad 3.3 \quad \lambda : \text{coeficiente de atenuación lineal de la capa de material.}$$

Sin embargo, esta ecuación sólo expresa la atenuación de los rayos gamma que penetran la capa de absorbedor perpendicularmente a su superficie, de tal forma que esta aproximación sólo es válida para colimadores de sección muy estrecha.

Para colimadores "reales" usados en espectrometría gamma, es necesario considerar que la trayectoria efectiva de los fotones a través de la pared del contenedor, ($d/\cos\theta$) y por lo tanto su atenuación, incrementa al incrementar el ángulo (θ) entre la dirección del foton y el eje perpendicular a la superficie de la pared, como se puede apreciar en la figura 3.3

Debido a este efecto, la atenuación efectiva de los fotones depende de la distribución angular de la fuente gamma (distribución coseno en este caso) y de la aceptación angular de la geometría detector-colimador. Por otra parte la eficiencia intrínseca del detector gamma depende del ángulo de incidencia y del punto de incidencia del fotón gamma que alcanza la superficie del detector, como se puede observar en la figura 3.3'.

Por lo tanto, para correcciones por atenuación muy precisas se debe tener en cuenta el tipo y espesor de pared del contenedor, la geometría del colimador y el tipo y geometría del detector gamma. Es de esperar que la atenuación efectiva de los fotones sea mayor para colimadores anchos, así como para detectores delgados y de gran superficie.

En la figura 3.4 se muestran los límites de tolerancia, en función de la geometría del colimador dada por la relación diámetro/altura, calculados para variaciones del espesor del fondo del recipiente del patrón de U3O8,

correspondientes a un cambio en la medición gamma de 0,1% para un detector grueso de gran área.

En la tabla siguiente se muestran los valores de tolerancia de la pared del contenedor y los coeficientes de atenuación lineal de materiales de contenedores típicos, asumiendo un efecto máximo del 0,1% en la medida de la radiación gamma de 186 kev.

TABLA : 3.1

MATERIAL CONTENEDOR	COEFICIENTE ATENUACION LINEAL A 186 KEV (CM-1)	TOLERANCIA PARA EL ESPESOR DE PARED DEL CONTENEDOR (MM)
POLIETILENO	0,14	0,07
ALUMINIO	0,34	0,03
ACERO	1,28	0,008

Estos límites de tolerancia muy estrechos necesitan de una muy cuidadosa determinación del espesor de pared del contenedor de la muestra. El espesor de pared del contenedor se puede medir con la precisión requerida por medio de una sonda de ultrasonido de alta precisión, en diferentes posiciones del área vista por el detector. Si el espesor de pared es uniforme dentro de los límites de tolerancia dados en la tabla, su valor medio debe ser usado para la corrección por atenuación gamma. Pequeñas rayaduras en la superficie no afectarán la exactitud de las medidas de enriquecimiento si su volumen acumulado es muy pequeño comparado con el volumen total de la pared del contenedor vista por el detector gamma.

Cuando solamente se utilizan contenedores de Al en las mediciones de enriquecimiento y cuando la diferencia entre el espesor de pared del patrón de referencia (d_{rel}) y el espesor de pared de la muestra desconocida (d), excede los límites de tolerancia definidos anteriormente, entonces se requiere corregir

la medida por atenuación por medio del factor de corrección (C_{WA}) obtenido a partir de la siguiente ecuación:

$$C_{WA} = \{ \exp(\lambda_{Al} \cdot DK_{abs}(d-d_{ref})) \} \quad 3.4$$

λ_{Al} = Coeficiente de atenuación lineal del Al a 186 keV

DK_{abs} = Función de corrección que tiene en cuenta la diferencia efectiva de la trayectoria de los fotones en las paredes de ambos contenedores.

DK_{abs} está dado en la figura 3.5 para dos tipos de detectores de gran superficie, en función de la geometría del colimador. La función de corrección C_{WA} está normalizada para el contenedor del patrón de referencia.

El error relativo de la corrección por atenuación es dominado por la incertidumbre entre ± 2 y $\pm 5\%$ del coeficiente de atenuación lineal del Al (λ_{Al}). Por esta razón es recomendable restringir la aplicación de la ecuación (3.4) a pequeñas variaciones de espesor de pared del contenedor de Al a fin de eliminar los errores sistemáticos mayores del 0,1%. En este caso el error de corrección por atenuación está dado por :

$$\Delta C_{WA} / C_{WA} = DK_{abs} \cdot \lambda_{Al} \cdot \Delta d \quad 3.5$$

Si la atenuación gamma en la pared el contenedor de la muestra es significativamente diferente a la del patrón de referencia (2 mm de Al) , entonces debe ser determinada experimentalmente midiendo a través de capas de diferente espesor, del mismo material de la pared del contenedor de la muestra medida.

Se debe tener en cuenta que en el rango de espesor ensayado se cumpla con la condición de geometría de "muestra quasi-infinita". Si dicha condición no se cumple para el patrón de referencia (esto es cuando se usan absorbedores gruesos), se debe utilizar una cantidad adecuada de material conteniendo U-235, en un contenedor de pared muy fina (bolsa de plástico) como fuente gamma, tal que cumpla la condición de "muestra quasi-infinita".

El uso de fuentes gamma puntuales puede llevar a resultados erróneos debido a la diferente distribución angular de la radiación..

Para dar un ejemplo de la determinación experimental de la corrección por atenuación en el caso de contenedores de paredes gruesas, supongamos que se utiliza un sistema de contaje para el cual la condición de muestra quasi-infinita no se cumple cuando se interpone una capa gruesa de absorbedor entre el colimador y el patrón de referencia. En este caso la fuente gamma masiva antes mencionada sirve como fuente de radiación.

Las mediciones de transmisión se efectúan interponiendo capas de diferente espesor del mismo material de pared del contenedor de la muestra, entre el colimador y la fuente gamma, determinando la tasa de contaje neta del pico de 186 kev (N). Si el espesor de pared del contenedor de la muestra a medir varía entre d_1 y d_U , las mediciones deben ser llevadas a cabo usando 3 capas diferentes:

1. Una chapa de Al de 2 mm de espesor, para normalizar la atenuación gamma del fondo del recipiente, con la muestra de referencia. N_1 representa la tasa de contaje γ de 186 kev con 2 mm de Al.
2. Una chapa del material del contenedor de la muestra de espesor d_1 , representa el limite inferior de espesor de pared esperado para la muestra a medir, siendo N_2 la tasa de contaje gamma de 186 kev.
3. Idem 2 de espesor d_U , correspondiente al limite superior de espesor de pared esperado. N_3 es la tasa de contaje gamma esperada.

Cuando el sistema ha sido calibrado usando el patrón de referencia, la corrección por atenuación requerida para el contenedor de una muestra, de material x con espesor de pared (d), tal que $d_1 < d < d_U$, está dada por :

$$D_{CWA}(d) = N_1/N_2 * \exp[D\lambda(d-d_1)] \quad 3.6$$

$$\lambda = (\ln N_2 - \ln N_3)/(d_1-d_U) \quad 3.7$$

El valor $D\lambda$ determinado experimentalmente es solo válido para la geometría particular usada en la calibración, para un determinado material de pared del contenedor y para el rango de espesor de pared comprendido entre d_1 y d_u . $D\lambda$ corresponde a $D\lambda = \lambda \cdot DK_{abs}$, dado por la ecuación 3.4 para contenedores de Al.

Es recomendable poner mucha atención en estas mediciones porque el error se propaga a todas las medidas de enriquecimiento siguientes.

3.3 DEFORMACIONES EN LA PARED DEL CONTENEDOR Y POSICIONAMIENTO DE LA MUESTRA

Para muestras que cumplen la condición de geometría quasi-infinita, la distribución espacial de la misma no debería afectar el resultado de la medición. El efecto espacial considerado aquí debido a la inclinación de la pared del contenedor respecto a la superficie del colimador, es debido exclusivamente a la diferente atenuación gamma en la pared del recipiente.

En efecto. Si el contenedor está inclinado respecto al plano del colimador, entonces el espesor de pared efectivo incrementa en $d + \Delta d$ (figura 3.6). Usando por lo tanto el valor de tolerancia Δd_{max} de variación de espesor de pared del colimador dado en la tabla 3.1

$$C_{max} = \arccos(d / (d + \Delta d_{max})) \quad 3.8$$

se puede calcular el ángulo de inclinación aproximado que puede ser tolerado para un contenedor de espesor de pared de Al de 2 mm y un error de medida por debajo del 0,1%, siempre que al inclinar el contenedor no se viole la condición de geometría quasi-infinita del sistema de medición, ($C_{max} \approx 5^\circ$)

A partir de los valores de tolerancia para la inclinación del recipiente se puede hacer una simple estimación de la deformación máxima tolerable del fondo del contenedor. Para un contenedor de Al de 7 cm de diámetro y 2 mm de espesor de pared, la tolerancia de deformación del fondo (f_{max}), para mantener el error de medida por debajo del 0,1% es de 3mm (fig 3.7)

Aunque el centrado de la muestra no es requerido en el caso de muestras muy grandes, es importante sin embargo para aquellas donde el espesor quasi-infinito mínimo o una geometría del colimador máxima sean usadas en las mediciones de enriquecimiento.

Para asegurar un centrado apropiado de la muestra respecto al eje del colimador, es útil insertar la muestra en un anillo guía como se muestra en la figura 3.8.

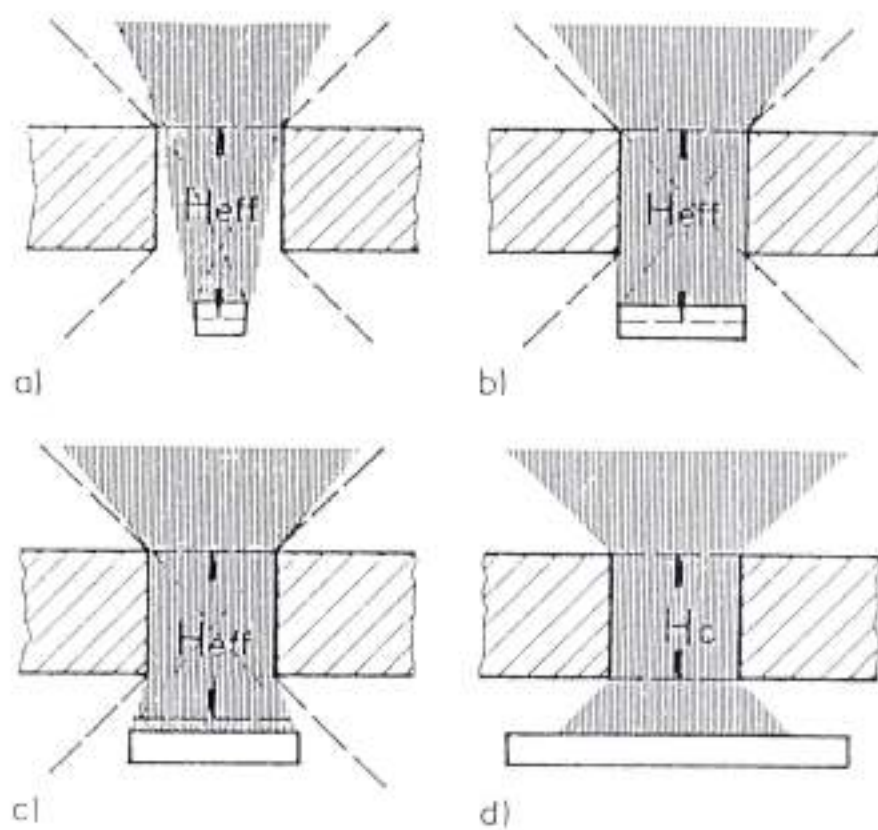


FIGURA 3.1 : Diferentes geometrías colimador-detector

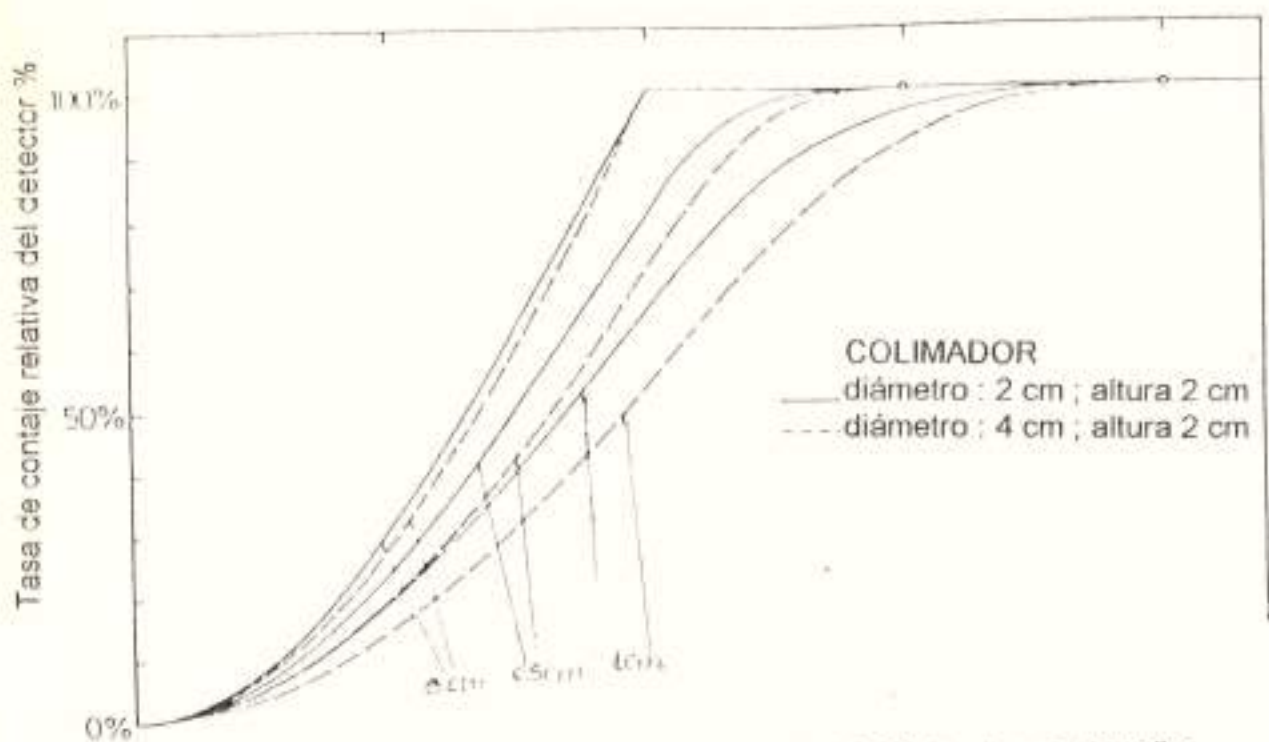


FIGURA 3.2 : Eficiencia geométrica relativa del detector vs tamaño

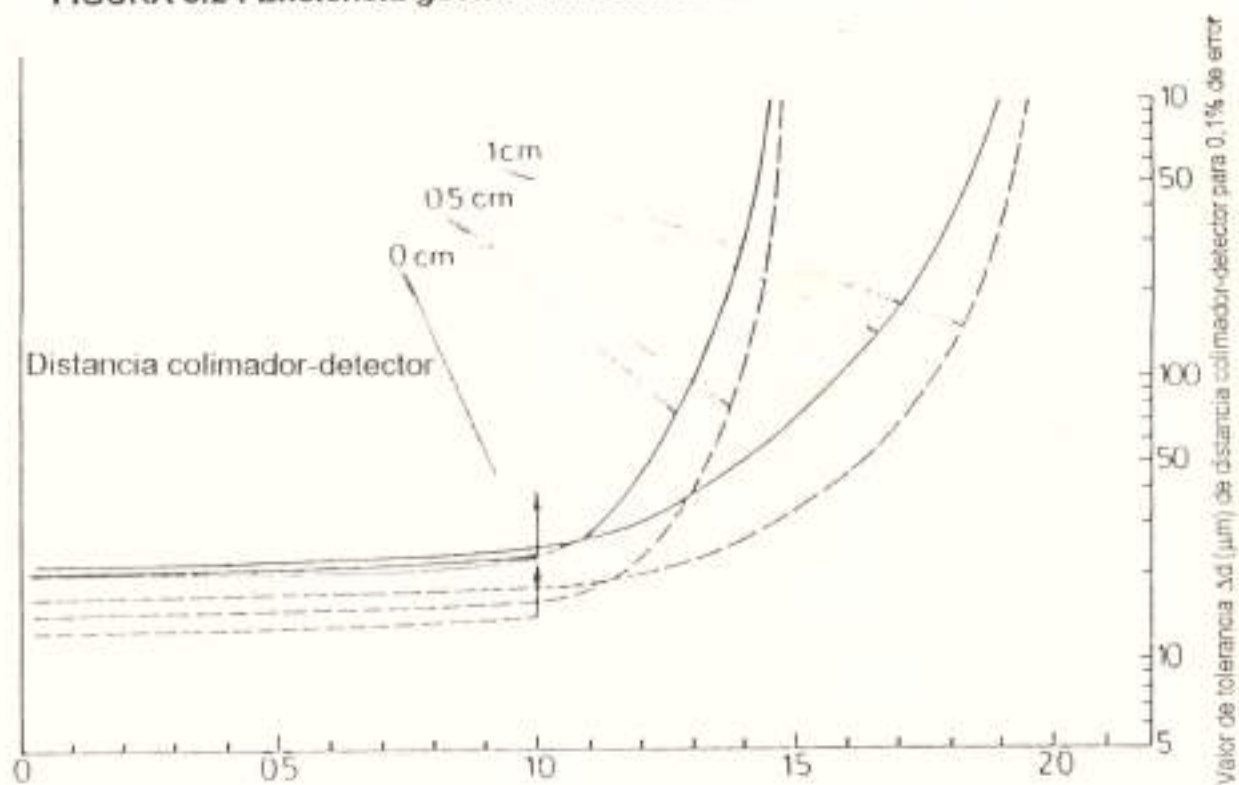


FIGURA 3.2' : Límites de tolerancia respecto a las variaciones de distancia detector-colimador para un nivel de error del 0,1%

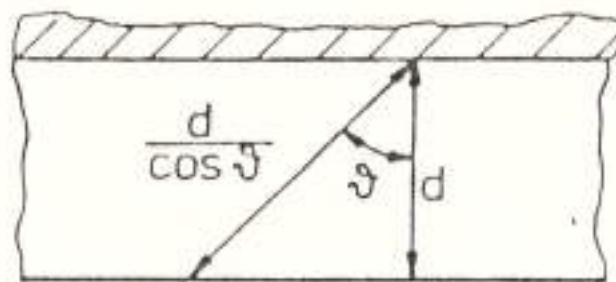


FIGURA 3.3 : Trayectoria de los rayos γ en una capa de absorbedor

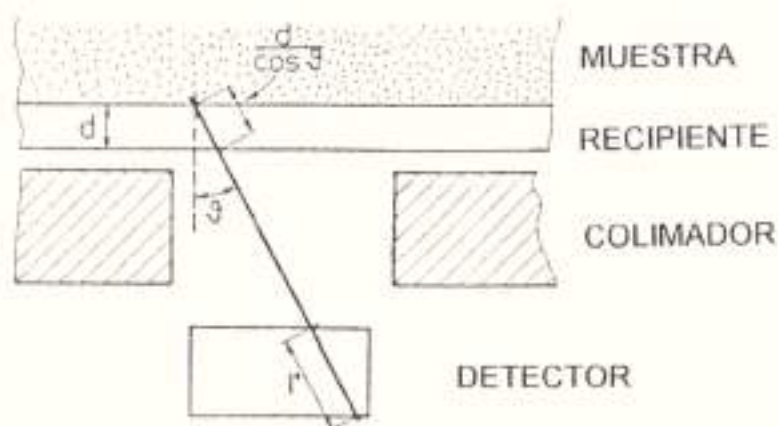


FIGURA 3.3' : Sección esquematizada de un sistema de conteo típico

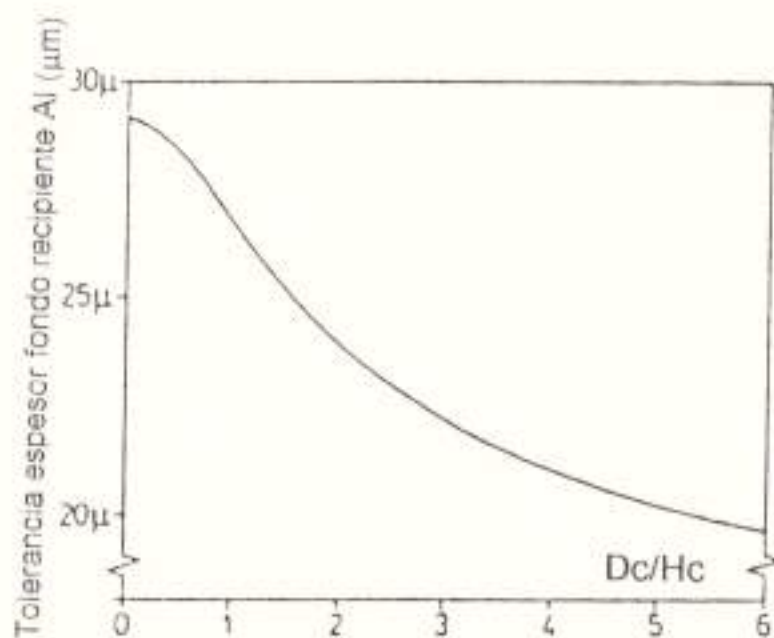


FIGURA 3.4 : Valores de tolerancia del espesor de pared del contenedor de Al vs geometría del colimador, para un error de 0,1 %

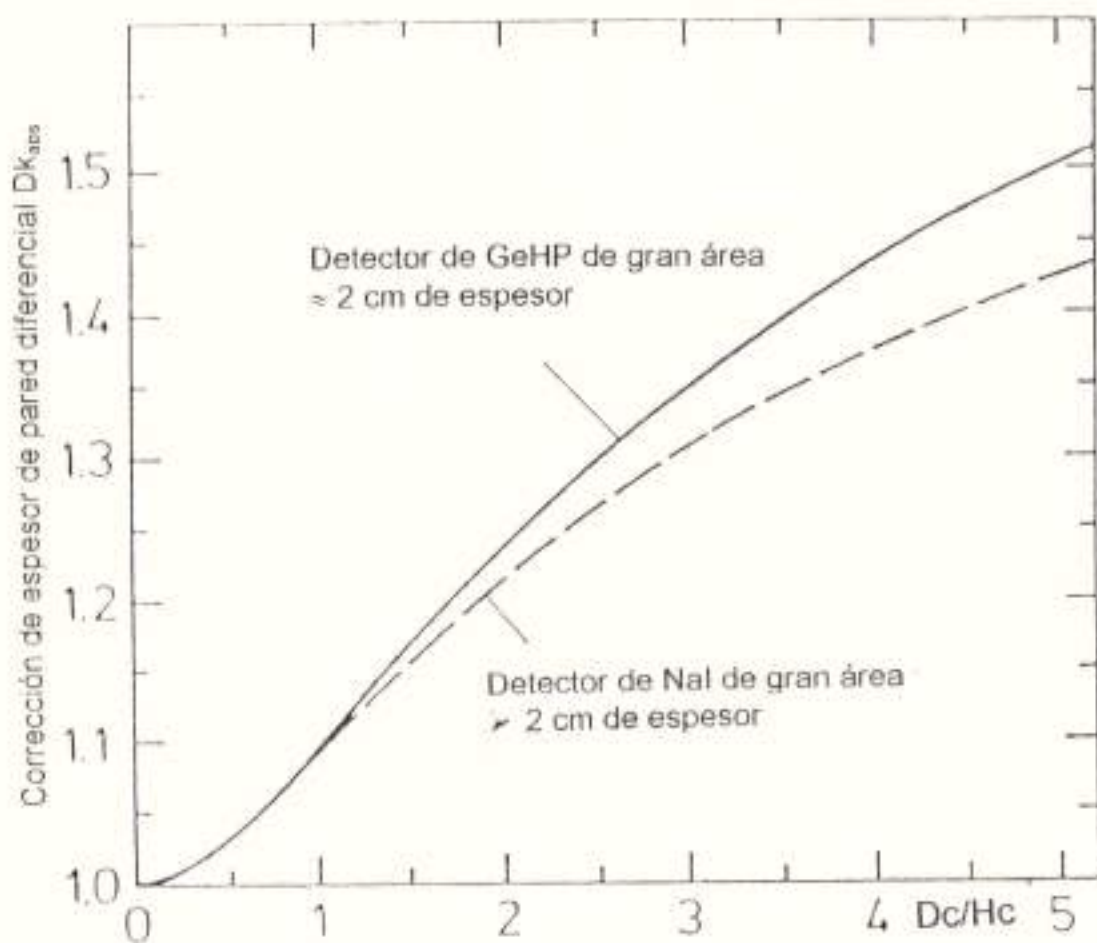
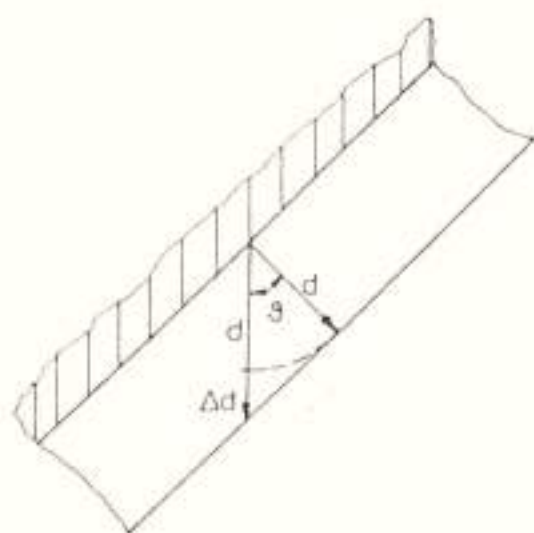
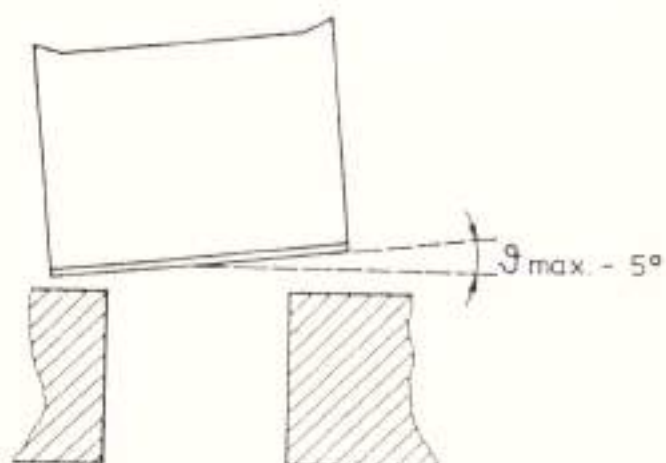


FIGURA 3.5 : Función de corrección diferencial Dk_{obs} vs geometría del colimador para dos tipos de detectores de gran área



a)



b)

FIGURA 3.6 : Inclínación del recipiente de muestra relativa a la superficie del colimador

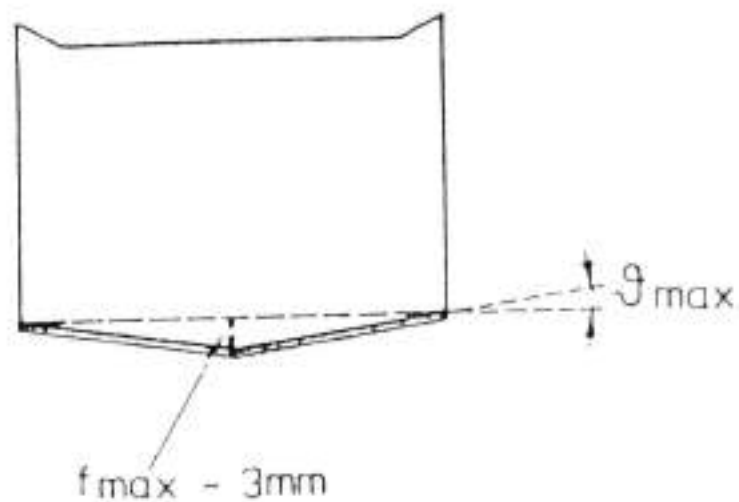


FIGURA 3.7 : Deformación máxima tolerable del fondo de un recipiente de Al de 2 mm de espesor

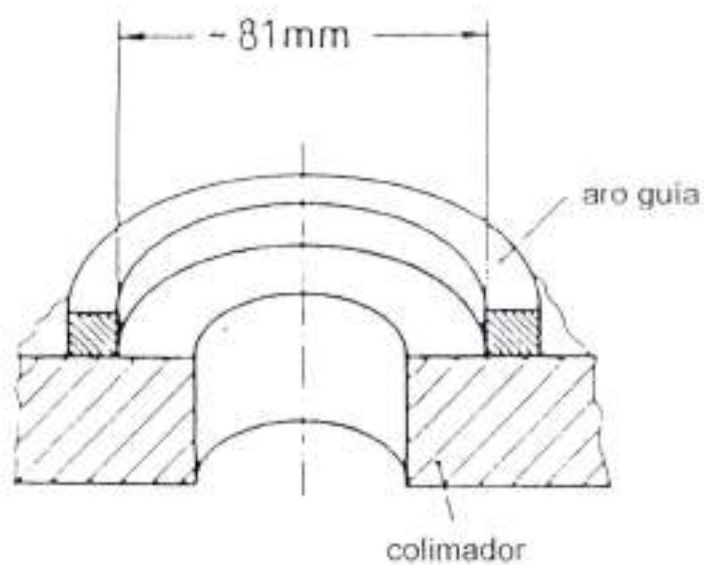


FIGURA 3.8 : Aro guía para posicionamiento de la muestra

PARAMETRO	EFFECTO SOBRE LA DETERMINACION DE ENRIQUECIMIENTO	REFERENCIA	OBSERVACIONES
1. Radiación gama interferente proveniente de otros sótopos del U y sus descendientes	Pequeña y despreciable con detector de Ge/crítico con detectores de NaI	ver 3.4	El efecto depende del tiempo transcurrido desde la última separación química. Detectores de NaI no deben ser usados en el análisis de U reciclado
2. Composición química de la muestra			
2.1 Diferentes compuestos de U y estequiometría	Hasta unos pocos % generalmente requiere corrección	ver 2.3.1	
2.2 Impurezas en la muestra	Requiere corrección si la fracción de masa de impurezas es >1% (matriz de bajo Z) ó >0.1% (matriz de Z elevado) respecto al contenido de U	ver 2.3.2	
2.3 Contenido de H ₂ O	Requiere corrección si la fracción de masa respecto al U es > 1%	ver 2.3.3	
Densidad de la muestra	No afecta para muestras "quasi- ∞ "	-	
3. Inhomogeneidad de muestra			
3.1 Enriquecimiento	Mucha influencia. Variaciones locales deben ser <0.1% relativa	No está dado en forma analítica (ver 2.2)	Correcciones requieren conocimiento exacto del valor absoluto y distribución de las respectivas inhomogeneidades. Difícil de tratar matemáticamente
3.2 Composición de la matriz	Poca influencia. Despreciable para variaciones locales <1% para matriz de bajo Z		
3.3 Densidad	No tiene efecto para muestras quasi- ∞		
4. Tamaño de muestra	No tiene influencia en muestras quasi- ∞ . Efecto muy importante para espesores no-infinito (muestras muy pequeñas, colimadores demasiado grandes, densidad del material muy baja)	No dado en forma analítica	Recomendaciones para tamaño de muestra mínimo y dimensiones máximas del colimador en 2.1 para materiales de diferentes densidades
5. Posicionamiento de la muestra	No tiene efecto para muestras quasi- ∞	-	Posicionamiento apropiado es requerido cuando se miden muestras de tamaño mínimo
6. Contenedor de la muestra			
6.1 Espesor de pared	Mucha influencia. El espesor debe ser conocido con una exactitud de $\sim 20\mu\text{m}$ para Al y $\sim 5\mu\text{m}$ para Fe	ver 3.2	El espesor de pared del contenedor debe ser uniforme en toda el área vista por el detector
6.2 Deformación de pared	Despreciable en la mayoría de las aplicaciones. El ángulo entre la sup. del colimador y el contenedor no debe exceder de 3 a 5°	ver 3.3	
7. Variación de la distancia colimador-detector	No influye si diámetro del detector es $\gg$ que el del colimador. Caso contrario las variaciones no deben exceder de 20-30 μm	No se da en forma analítica ver 3.1	El colimador debe estar fijado rigidamente con respecto al detector, o bien deben usarse detectores de gran diámetro
8. Radiación ambiental de fondo	Afecta en forma significativa las aplicaciones en planta		Debe blindarse convenientemente el detector de la radiación de fondo
9. Tiempo muerto del sistema y apilamiento de pulsos	Efecto muy importante	ver 4.2	Se debe utilizar una electrónica adecuada para corregir estos efectos. Se recomienda pile-up rejector

FUENTES DE ERROR SISTEMATICO EN LAS MEDICIONES DE ENRIQUECIMIENTO EN U-235

(Los valores de tolerancia se dan con referencia a un error relativo del 0.1%)

BIBLIOGRAFIA

- 1.- Harry R.J.S. et al. "Gamma-spectrophotometric determination of isotopic compositions without use of standards", Safeguarding Nuclear Materials, Proceeding of a symposium , Vienna, Octubre 20-24 , 1975, IAEA Vol II, pag 235-245, Vienna, Austria, 1976
- 2.- Dragnew T.N. Damjanow B.P. "Methods for Precise Absolute Gamma-Spectrometric Measurements of U and Pu Isotopic Ratios", Nuclear Safeguards Technology 1978, Proceeding of a Symposium, Vienna, Octubre 2-6, 1978, IAEA, Vol I, pag. 739-753, Vienna, Austria (1979)
3. Cristallini O, Paganini C, Medición de enriquecimiento en cisternas de UF₆ por contaje gamma con detector de NaI. Informe Interno ABACC.
4. Perucca E , Física General y Experimental (Ed. Labor) , Tomo II, pag 106 1978)
5. Matussek P., Accurate Determination of the U-235 Isotope Abundance by Gamma Spectrometry , KFK-3752 (May 1985)
6. Meyer H et al, Accurate U-235 Abundance Determination of UO₂ Pellets Assemblies by Gamma Spectrometry ; EUR 10354 EN (1985)
7. Walton R.B., et al , Measurements of UF₆ Cylinders with Portable Instruments, Nuclear Technology Vol. 21 pag 133-148, Feb. 1974
8. Cristallini O. , Interferencia del fondo gamma en la medición de enriquecimiento con detector de NaI, ABACC-BA3

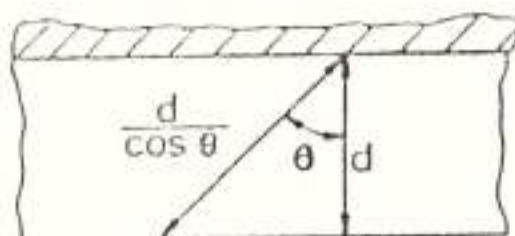
APENDICE 1

MATERIAL ABSORBEDOR ENTRE MUESTRA Y DETECTOR

En toda medición por espectrometría gamma, siempre hay un material absorbedor interpuesto entre la muestra y el detector, ya sea el recipiente que contiene la muestra o la cubierta del detector. Es importante poder cuantificar la influencia de dichos absorbedores sobre la medición gamma.

Assumiendo que todos los materiales absorbedores interpuestos entre la muestra y el detector, pueden ser representados por una única capa de espesor uniforme (d), paralela a la superficie del colimador, como se puede observar en la figura 1, la trayectoria del fotón gamma de 186 keV a través del absorbedor dependerá del ángulo de incidencia de la radiación, respecto al eje del colimador (θ). La longitud de la misma ($d/\cos\theta$) y por lo tanto la atenuación se incrementa con el ángulo de incidencia θ .

FIGURA 1



La longitud media de la trayectoria de los fotones gamma de 186 keV que llegan al detector a través del absorbedor, depende tanto de la distribución angular de la fuente de radiación como de la geometría del sistema de conteo.

Como se demostrará más adelante, **la atenuación gamma efectiva no queda determinada solamente por el espesor y el material del absorbedor, sino también por las características del sistema de conteo.**

Cuando una capa de material absorbedor de espesor d , se interpone entre la muestra y el detector, el número de fotones gamma de 186 keV que penetran el colimador, por unidad de tiempo, está dado por:

$$I_{\gamma}^{att} = \text{ent } A \cdot \int_{\Omega} \cos^2 \theta [\exp(-\lambda \cdot d/\cos \theta)] d\Omega dF \quad (1)$$

λ = coeficiente de atenuación lineal a 186 keV.

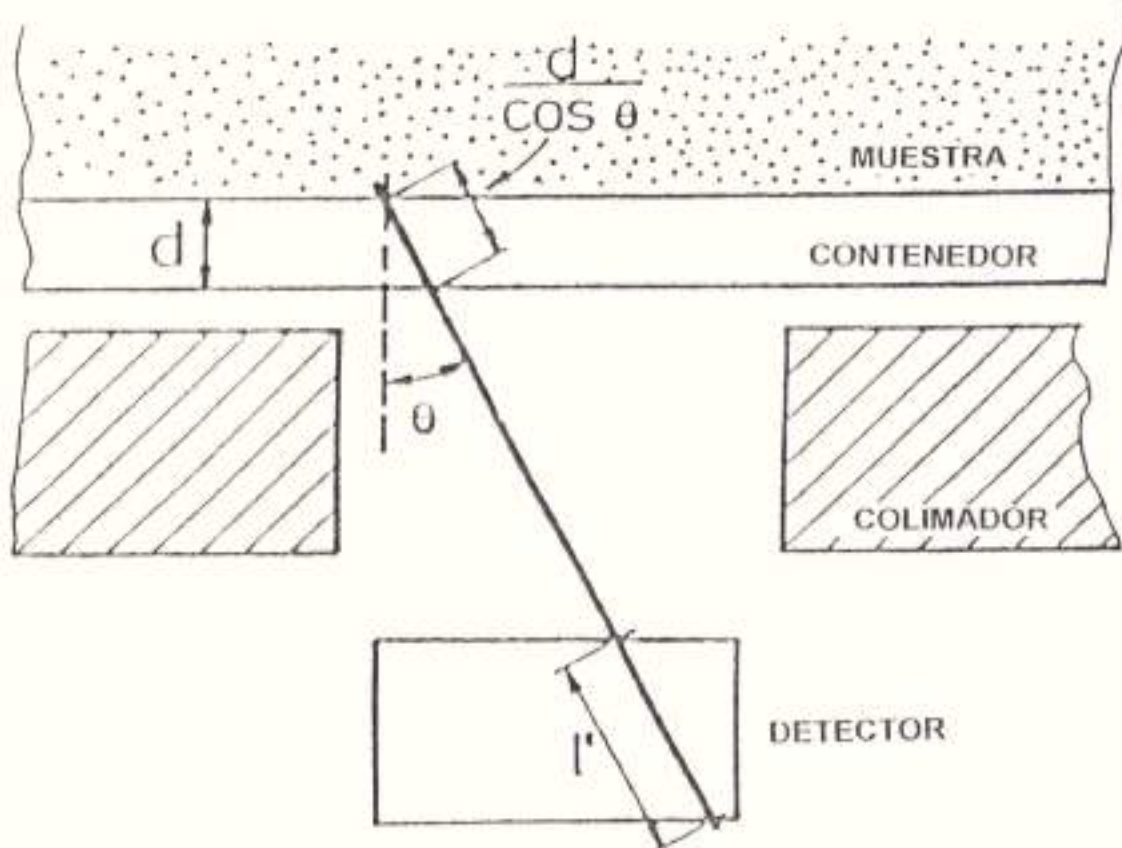
A = constante de proporcionalidad, determinada por las constantes atómicas y nucleares y por la composición de la matriz de la muestra.

A partir de la ecuación (1) se obtiene la **tasa máxima de conteo** de fotones gamma de 186 keV que podría ser obtenida idealmente con un detector de 100 % de eficiencia de detección en el pico.

Sin embargo, en un sistema de conteo **real** debe ser tomada en cuenta la eficiencia de detección limitada del detector. Esta comprende: la **eficiencia geométrica** (tamaño y posición del detector) y la **eficiencia intrínseca** del detector.

En la figura 2 se representa en forma esquemática un corte del sistema de conteo :

FIGURA 2



Usando un modelo muy simple, que desprecia el efecto de scattering de fotones, la eficiencia intrínseca del detector gamma (ϵ), puede ser descrita :

$$\epsilon = \epsilon_0 (1 - \exp(-\lambda l)) \quad (2)$$

ϵ = eficiencia de fotoabsorción lineal del material del detector

l = longitud de la trayectoria "no-dispersa" del foton, dentro del absorbedor

ϵ_0 = eficiencia pico de un detector infinito para fotones gamma de 186 keV

Como se puede apreciar, ϵ depende del ángulo incidente y de la ubicación del punto de incidencia del foton en la superficie del detector, la eficiencia es cero cuando el foton no choca con el detector ($l=0$)

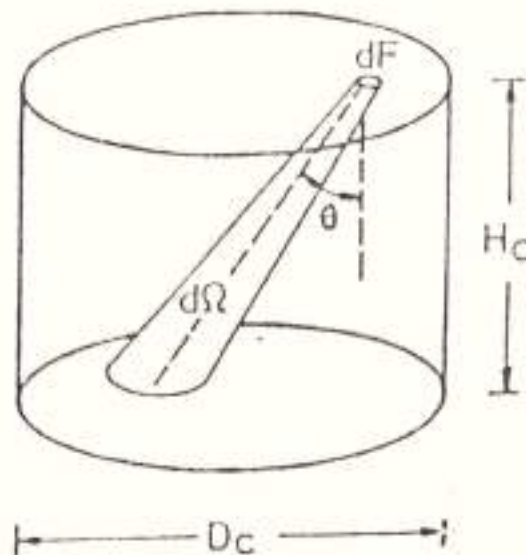
Usando las ecuaciones (1) y (2) se llega a una fórmula que describe la tasa de conteo gamma de 186 keV de un detector, en un sistema de conteo real:

$$N_{\text{res}} = \text{cfr } A_{\text{res}} \int_0^{\pi/2} \cos \theta \epsilon_0 (1 - \exp(-\lambda l)) \exp(-\lambda d \cos \theta) d\theta dF \quad (3)$$

Según los rangos de integración :

- Todos los elementos dF del área de entrada del colimador (F)
- Todos los posibles ángulos sólidos $d\Omega$, definidos por el área de salida del colimador, vista por cada elemento de área dF . (ver figura 3)

FIGURA 3



La solución de la ecuación 3 requiere en general técnicas de integración numérica.

En la atenuación de fotones gamma por una capa de absorbedor, son de interés primario aquellos efectos que influyen en la tasa de conteo gamma que llega al detector, mas que la transmisión a través del colimador mismo.

Se puede deducir de la ecuación (3) que la **atenuación gamma efectiva** en una capa de material absorbedor, no queda determinada solamente por el espesor y el tipo de material, sino también por la geometría del colimador (límites de integración) y además por el tamaño, posición y eficiencia intrínseca del detector gamma (λ, f)

Como se puede observar en la figura 2, el rango aceptado del ángulo de penetración (θ), decrece con la disminución del tamaño del detector, lo que da como resultado una **menor atenuación gamma efectiva para pequeños detectores**

La atenuación de fotones en una capa de absorbedor, está dada generalmente por la relación de la tasa de conteo observada, con y sin absorbedor.

Para simplificar la **corrección por atenuación** para diferentes espesores de pared del contenedor, se define el **factor de corrección por espesor de pared** (K_{ap}), dado por :

$$N_{int}(d)/N_{int}(0) = \exp(-K_{ap}d) \quad (4)$$

$$K_{ap} = [\ln N_{int}(0) - \ln N_{int}(d)]/\lambda \cdot d \quad (5)$$

el término $K_{ap}d = d_{ap}$ describe la longitud media de la trayectoria de los fotones a través de una capa de absorbente de espesor d .

El valor de K_{ap} depende de los parámetros específicos de la geometría de conteo utilizada y de las propiedades del contenedor de la muestra medida

Para facilitar el cálculo de la atenuación gamma efectiva, al menos para un rango limitado de espesor del absorbedor (d) alrededor de un espesor medio (d_0), en un sistema de conteo dado, se define un factor diferencial de corrección de espesor de pared, (DK_{abs}) :

$$DK_{abs}(d_0) = \left[\frac{dK_{abs}(d)}{d} \right]_{d=d_0} \quad (6)$$

La atenuación gamma dentro de una capa de absorbedor de espesor (d) está dada por :

$$A_{\gamma,abs} = \exp[-\lambda K_{abs}(d_0) \cdot d_0] \cdot \exp[-2 \cdot DK_{abs}(d_0) \cdot (d-d_0)] \quad (7) \quad \text{donde :}$$

$K_{abs}(d_0)$ y $DK_{abs}(d_0)$ pueden considerarse constantes para un rango limitado de espesor de absorbedor alrededor de (d_0), siendo válido para un material absorbedor y un sistema de conteo particular.

Es interesante examinar el rango de variación de K_{abs} en función de varios parámetros de medición. Para ello se recalculó primero la dependencia de K_{abs} con el tamaño del detector, asumiendo una capa de absorbedor de Al de 2 mm.

Se consideraron 3 tipos de detectores gamma :

1. Detector de gran área y espesor infinito
2. Detector de gran área y espesor infinitamente fino
3. Detector puntual

La figura 4 muestra los valores calculados de K_{abs}^{-1} en función de la geometría del colimador. Para colimadores muy estrechos K_{abs} alcanza un valor muy cercano a 1 ($K_{abs}^{-1} \rightarrow 0$). Para colimadores más anchos y planos el valor de K_{abs} crece hasta aprox. 1,5 ($K_{abs}^{-1} \rightarrow 0,5$), indicando que en estos casos la longitud de la trayectoria media efectiva de los fotones en la capa del absorbedor puede ser de alrededor del 50% mayor que en el caso de colimadores estrechos. ($K_{abs} \cdot d = d_{eff}$). También se puede observar que la atenuación gamma efectiva es mayor para detectores finos de gran área (caso 2).

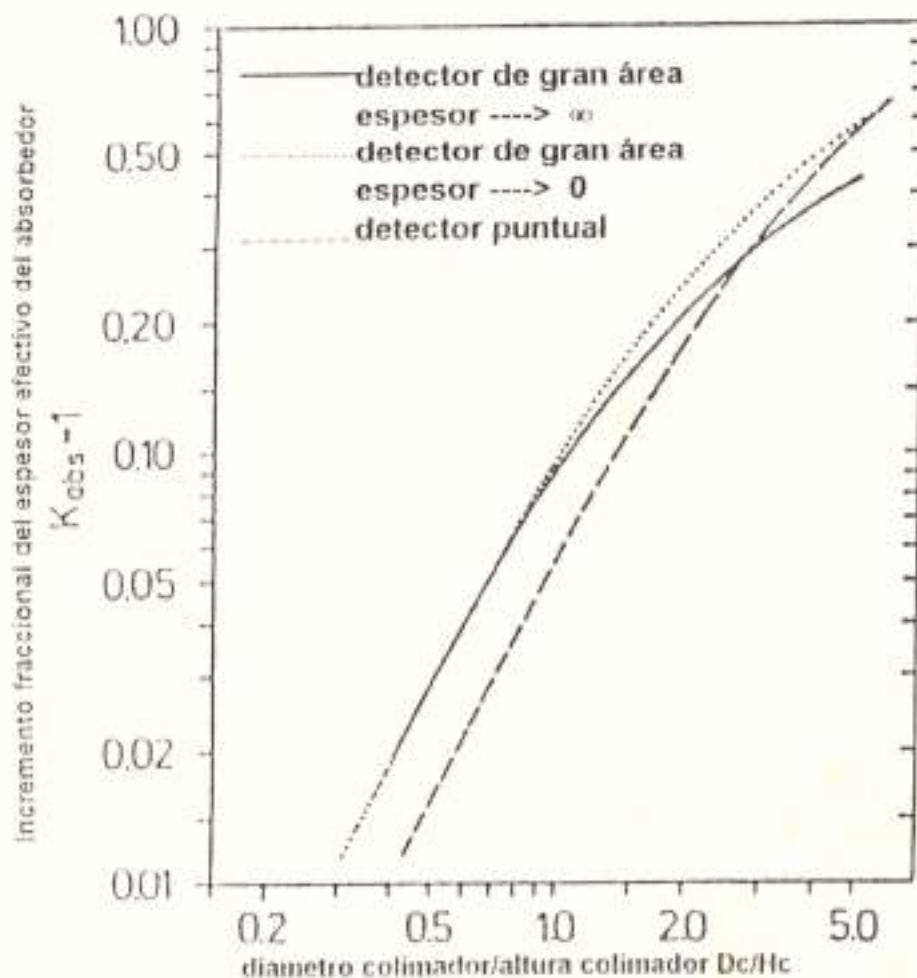


FIGURA 4

A fin de demostrar la dependencia de K_{abs} con el espesor de la capa del absorbedor, se calculó éste en función del material y espesor de absorbedor, expresado por el producto $\lambda \cdot d$ del coeficiente de atenuación lineal λ y del espesor d del absorbedor, asumiendo un detector grueso de gran área. (caso 1)

Los resultados se muestran en la figura 5. La escala superior muestra la transmisión lineal del fotón $[1 - \exp(-\lambda \cdot d)]$ que corresponde al valor de $\lambda \cdot d$ dado en la escala inferior.

La figura muestra que el factor de corrección por espesor K_{abs} decrece con el incremento del espesor del absorbedor. Esto puede ser entendido considerando la distribución angular de los fotones vistos por el detector. En caso de contenedores de pared extremadamente gruesa sólo son vistos por el detector los rayos gamma provenientes de la muestra que penetran la pared del contenedor perpendicularmente a la superficie.

La figura 5 también muestra que la dependencia de K_{abs} con el espesor de pared del contenedor es mayor cuando se usan colimadores anchos y planos.

Las flechas que se muestran en la figura indican el valor $\lambda \cdot d$ para un absorbedor de 2 mm de espesor de Al (recipiente contenedor de patrones de U3O8) y de 1,5 cm de acero (recipientes típicos de contenedores de UF6).

Se puede ver que los correspondientes valores de K_{abs} pueden diferir hasta en un 10% para colimadores anchos.

NOTA: El uso de los procedimientos de corrección calculados a partir de las fórmulas dadas anteriormente debe restringirse a pequeñas correcciones por atenuación, en caso contrario, pueden resultar errores no despreciables debido a la incertidumbre de los coeficientes de atenuación usados y a la incertidumbre del cálculo de la eficiencia del detector.

Por lo tanto es fuertemente recomendable determinar experimentalmente las correcciones por atenuación, si el espesor de pared de la muestra medida se desvía significativamente del de la muestra usada en la calibración del sistema de medición.

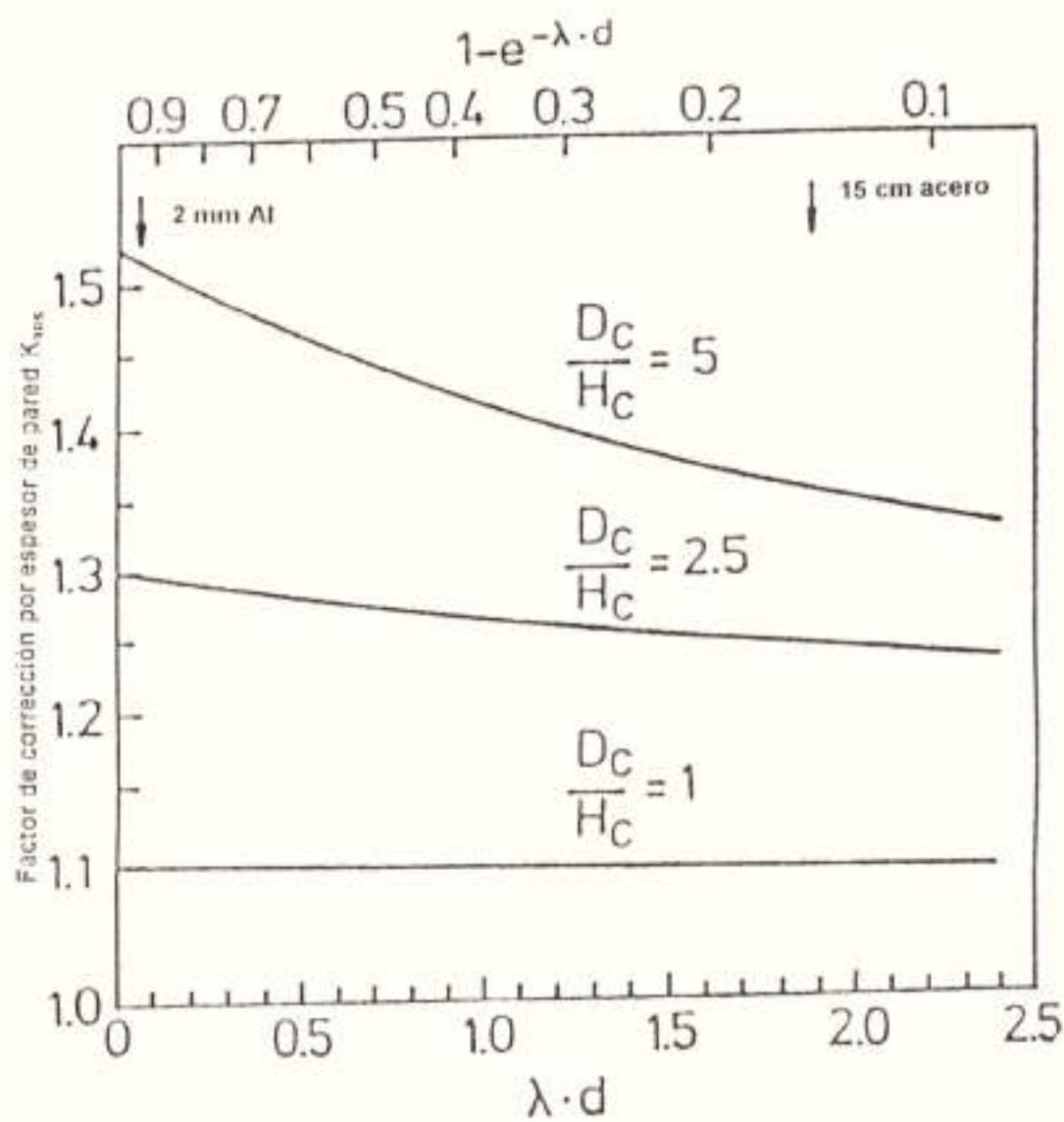


FIGURA 5

Apéndice 2 : Calibración del medidor de enriquecimiento

Las mediciones de enriquecimiento en U-235 por espectrometría gamma no pueden ser llevadas a cabo con el nivel de exactitud deseada sobre la base de mediciones absolutas. Las determinaciones muy exactas requieren mediciones relativas respecto a patrones de referencia con valores de enriquecimiento exactamente conocidos. La calibración de un sistema de medición consta de cuatro etapas :

1. La medición del patrón de referencia en el sistema de contaje a calibrar.
2. La formulación de un modelo matemático que relaciona la respuesta del sistema de medición (tasa de contaje γ de 186 kev) con el parámetro de interés (% U-235)
3. Determinación de los parámetros del modelo a partir de las mediciones
4. Determinación de las desviaciones standard de dichos parámetros.

A partir de un conjunto de parámetros de calibración es posible determinar el enriquecimiento en U-235 de una muestra desconocida por espectrometría gamma, usando alguna información adicional, tal como espesor de pared del contenedor, composición de la matriz, etc. Es esencial también conocer el límite de error del valor de enriquecimiento medido.

El procedimiento de calibración que se describe a continuación, asume que existe una relación lineal entre la tasa de contaje gamma de 186 kev y el valor de enriquecimiento en U-235. Las constantes de calibración y sus respectivas desviaciones standard se obtienen aplicando cuadrados mínimos, teniendo en cuenta que ambos valores (tasa de contaje gamma y enriquecimiento) están ambos sujetos a error.

1. Ecuaciones de calibración

En condiciones bien definidas la relación entre la tasa de contaje gamma de 186 kev (N) y el enriquecimiento en U-235 (E) puede ser expresada a través de la siguiente ecuación :

$$E = a \cdot N' \cdot C_{ma} \cdot C_{wa} \cdot C_E + C_{int} \quad (4.22a)$$

C son los factores de corrección por atenuación de matriz C_{ma} , de pared del contenedor C_{wa} , pérdidas de contaje C_E e interferencia gamma C_{int} . N' es la tasa de contaje gamma de 186 kev y a el factor de proporcionalidad determinado en el procedimiento de calibración, usando material de referencia.

Cuando se utiliza el método de las 2 ventanas para la determinación del área neta del fotopico de 186 kev, la tasa de contaje no es evaluada en forma explícita. La ecuación 4.22 es modificada :

$$E = (a \cdot P' + b \cdot F') \cdot C_{ma} \cdot C_{wa} \cdot C_E + C_{int} \quad (4.22.b)$$

donde P' y F' son las tasas de contaje brutas en las ventanas del fotopico y de fondo respectivamente. Los parámetros a y b son determinados en la calibración, utilizando patrones de referencia.

Como se puede ver en la ecuación 4.22b, el mismo factor de corrección por atenuación C_{ma} y C_{wa} es utilizado en ambas ventanas. Esta aproximación es aceptable si las energías medias de las 2 ventanas de contaje no son muy diferentes y/o la corrección por atenuación es pequeña.

Los factores de corrección C_{ma} y C_{wa} son iguales a 1 para el material de referencia, es decir para muestras de U3O8 contenidas en recipientes de referencia (fondo de Al de 2 mm espesor). Las ecuaciones de calibración para muestras de referencia están dadas por :

$$E = a.N + C_{int} \quad (4.2a)$$

$$E = (a.P + b.F) + C_{int} \quad (4.2b)$$

donde :

$$N = N'.C_E \quad P = P'.C_E \quad F = F'.C_E$$

Las ecuaciones 4.2a y 4.2b representan el modelo lineal para la relación entre el valor de enriquecimiento y la tasa de conteo gamma de 186 kev.

Una estimación del término C_{int} de interferencia gamma puede ser derivado de la ecuación 2.28 siempre que la abundancia relativa de los isótopos que producen la interferencia sea conocida, lo cual se cumple para el material de referencia.

El término de interferencia C_{int} puede también ser considerado un parámetro libre para el procedimiento de ajuste. Una comparación del valor de C_{int} ajustado y el valor esperado, puede servir como indicador de la bondad del ajuste o de la validez del modelo lineal.

Una vez que el término C_{int} es determinado (este puede ser forzado a cero por medio de una selección adecuada de las ventanas de conteo (ver 2.4), se arriba a una forma homogénea de la ecuación de calibración:

$$E' = E - C = a.N \quad (4.24 c)$$

$$E' = E - C = a.P + b.F \quad (4.24 d)$$

Si los parámetros correspondientes al método de las 3 ventanas son determinados por el procedimiento de calibración entonces las ecuaciones de calibración correspondientes son :

$$E = a.P + e.B_u + f.B_r + C \quad (4.24 e)$$

$$E' = E - C = a.P + e.B_u + f.B_r \quad (4.24 f)$$

Apéndice 3 :

Determinación del área neta del fotopico de 186 kev

La medición de enriquecimiento requiere la determinación muy precisa de la tasa de conteo neta de 186 kev de la muestra. Para su evaluación a partir del espectro gamma medido es necesario restar el fondo continuo debajo del pico, causado fundamentalmente por el scattering Compton de los rayos gamma de alta energía del Pa-234m.

Tres son los métodos más utilizados para la evaluación del área neta del fotopico de 186 kev

- a) método de las 2 ventanas
- b) método de las 3 ventanas, lineal
- c) método de las 3 ventanas, por etapas

1. Selección de las ventanas del fotopico y de fondo

La condición de muestra de espesor infinito no solamente se cumple para los fotones gamma de 186 kev sino también para los fotones de menor energía presentes en el U-235 y muy cercanamente para los fotones gamma débiles, de energía por encima de 186 kev (ver tabla 1.1). Por otra parte, puesto que la "saturación" de la actividad gamma en muestras gruesas, comprende tanto al fotopico como al continuo debido al scattering inelástico, es de esperar que todo el espectro gamma originado en el U-235 (no solamente al pico de 186 kev), sea proporcional al enriquecimiento en U-235 de muestras de espesor infinito.

Sin embargo se debe tener en cuenta que al decrecer la energía de los fotones, la tasa de conteo gamma del U-235 se hace más sensible a las variaciones de la matriz de la muestra y de la pared del contenedor.

El fondo corresponde a la porción del espectro gamma total (fotopico+continuo) proveniente de otros emisores gamma y por lo tanto no es proporcional al contenido de U-235.

Los fotones que originan el fondo continuo por scattering inelástico provienen del Pa-234m, isótopos menores del U, contaminación gamma que puede estar presente en la muestra o radiación de fondo ambiental.

La amplitud de este espectro de fondo, su intensidad y su forma pueden variar con :

- a) la edad de la muestra
- b) el tamaño de la muestra
- c) la composición isotópica de la muestra

A fin de hallar la tasa de conteo gamma neta, correspondiente al U-235, esta porción de fondo debe ser restada del número total de eventos registrado en el espectro gamma, debajo del fotopico.

En el caso de mediciones de muestras gruesas, en principio no es necesario restringir la evaluación de la tasa de conteo gamma del U-235, solamente a los fotones de 186 kev. Cualquier ventana de energía adecuada, en el espectro gamma del U-235 puede servir para la medición de enriquecimiento. Sin embargo la mejor elección es la región de energía del espectro que provea mayor relación señal-ruido para la radiación gamma del U-235 y la menor sensibilidad a los cambios de los parámetros de medición secundarios.

En la mayoría de las aplicaciones, ambos requerimientos se cumplen para una ventana de energía que engloba el pico de 186 kev.

Los siguientes criterios deben ser tenidos en cuenta al seleccionar el ancho y posición de las ventanas de conteo:

1. Minimizar el error debido a la estadística de conteo
2. Poca sensibilidad e inestabilidad de la electrónica asociada (corrimientos de ganancia y/o cero ó cambios de resolución)
3. Poca sensibilidad a los cambios en la forma del espectro de fondo
4. Minimizar los efectos de interferencia gamma.

Cuales de estos factores podrían tener mayor efecto en la exactitud de la medida, depende de las propiedades del sistema de conteo y del material de la muestra.

1.1 Ventanas de fondo

El ancho de ventana de fondo seleccionada debería tener al menos el mismo tamaño que el ancho de ventana del fotopico o preferiblemente mayor.

Las ventanas de fondo deben estar claramente afuera de la región del fotopico de interés, en la parte plana del espectro gamma, pero no demasiado distante del mismo. Se debe tener especial precaución para evitar la interferencia gamma de otros isótopos.

Nota : La presencia de fotones correspondientes al U-235 en la(s) ventana(s) de fondo no introduce un error sistemático en el resultado de la medida de enriquecimiento. Esta solo incrementa el error estadístico en la determinación del área neta de pico. En particular cuando se usa NaI puede ocurrir que no se puedan hallar ventanas de fondo adecuadas en la zona de alta energía adyacente al pico de 186 keV debido a los efectos de una fuerte interferencia gamma. En este caso uno puede utilizar una ventana de fondo en la zona de baja energía adyacente al fotopico de 186 keV a expensas de un incremento en el error estadístico en las cuentas netas de pico.

1.2 Ventana del fotopico de 186 keV

La selección del ancho de ventana del fotopico es siempre un compromiso entre la relación señal/fondo (P/F) óptima y baja sensibilidad a inestabilidades electrónicas. Cuando se utilizan detectores de NaI se deben tener en cuenta los efectos posibles de interferencia gamma. En la tabla 1 se muestran los límites de tolerancia para inestabilidades electrónicas a diferentes anchos de ventana, para que el error de medición sea inferior al 0,1%. La tabla provee también factores de error para algunos valores de relación señal/fondo típicas, que muestran el incremento del error estadístico de conteo cuando se lo compara con una medición libre de fondo, usando una ventana amplia de fotopico. Los valores dados en la tabla han sido obtenidos a partir de un modelo simple con una forma de pico puramente gaussiana, fondo constante e igual amplitud de ventana de fondo y fotopico.

De las columnas 5, 6 y 7 de la tabla se puede deducir que la mejor elección del ancho de ventana de pico, con respecto al menor error estadístico de conteo es de 1,3 a 1,8 unidades de FWHM. Sin embargo esos anchos de ventana hacen que la medición resulte muy sensible respecto a pequeños corrimientos en la posición de pico y variaciones en la resolución de energía (columnas 3 y 4). Por esta razón es recomendable usar un ancho de ventana de 1,5 a 3 veces el FWHM del fotopico. En el caso de espectros de Ge, de alta resolución se puede considerar incluir el pico satélite de 182,7 keV del U-235 dentro de la ventana del fotopico.

Nota: Es una buena práctica monitorear la posición y el FWHM del pico de 186 keV durante las mediciones con el objeto de aumentar la confiabilidad de los resultados

Ancho ventana de pico (unidades de FWHM)	% del total de área neta de pico	Corrimiento de pico tolerable (en % FWHM)	Variación tolerable de FWHM (%)		Factor de error relativo a una medición libre de fondo		
					P/F=0.1	P/F=1	P/F=10
1	76,16	+2,4	+0,15	-0,17	5,81	2,14	1,28
1,5	92,26	±3,4	+0,29	-0,33	5,85	2,10	1,19
2	98,15	±5,5	+0,80	0,87	6,33	2,22	1,19
2,5	99,08	±11	+2,92	-3,07	6,95	2,39	1,21
3	99,96	±23	+10,6	-	7,58	2,56	1,25
4	99,999	±68	+43,2	-	8,73	2,92	1,32

TABLA 1 : Valores tolerables de corrimiento de pico y variaciones en el FWHM para mantener la medida de enriquecimiento con un error por debajo del 0,1%. Factores de error para diferentes anchos de ventana de fotopico y diferentes relaciones P/F.