

APLICACIÓN DE LA ESPECTROMETRIA ALFA PARA LA DETERMINACION DE ENRIQUECIMIENTO EN U-235

INFORME FINAL: MEDICIONES SOBRE MUESTRAS GASEOSAS DE UF₆

Adolfo Esteban, Fabricio Pusitanella
UACN – CAC - Comisión Nacional de Energía Atómica – Argentina

Este trabajo fue solicitado y auspiciado económicamente por la Agencia Brasileño-Argentina de Contabilidad y Control de Materiales Nucleares, ABACC.

RESUMEN

La determinación de la relación isotópica $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ por espectrometría alfa consiste en la medición de la relación de actividades correspondientes a las energías alfa de 4,4 Mev del U-235 y 4,2 Mev del U-238. La idea novedosa de usar espectrometría alfa para la medición del enriquecimiento en muestras gaseosas de UF₆ fue propuesta por O. Cristallini en su informe [2].

En las etapas anteriores de este desarrollo llevado a cabo en nuestro laboratorio se logró:

- Demostrar la factibilidad técnica del método [3].
- Poner a punto el método de medición, usando un dispositivo para la hidrólisis del UF₆ sólido, depositado a bajas temperaturas sobre un disco metálico [4].
- Realizar la hidrólisis del UF₆ utilizando discos impregnados en aceite mineral [5].

En esta etapa final, se ha logrado mejorar la precisión del método en general y ampliado su rango de aplicación. También, se intentó aunque sin éxito, la medición directa de UF₆ gaseoso conectando un detector de barrera de superficie directamente al dispositivo usado, en el lugar que ocupaba la celda de hidrólisis.

Dados los buenos resultados obtenidos en las mediciones sobre depósitos en discos metálicos, debería evaluarse su aplicación como método alternativo a los usados actualmente en salvaguardias, en los casos que se considere conveniente.

INTRODUCCION

La determinación de la relación isotópica $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, es de gran importancia en la tecnología nuclear y para los sistemas de salvaguardias internacionales. Normalmente, se asume que los análisis isotópicos más precisos y exactos se realizan aplicando *espectrometría de masa*. Sin embargo, la *espectrometría alfa*, donde se mide la relación de actividades correspondientes a las energías alfa del U-235 y del U-238, puede convertirse en un método alternativo, por ser más sencillo y económico.

O. Cristallini propuso en su informe [2] usar espectrometría alfa para la medición del enriquecimiento en muestras gaseosas de UF₆ de una densidad superficial del orden de 50 µg/cm².

Los ensayos realizados en nuestro Laboratorio demostraron la factibilidad técnica del método [3] y lograron la puesta a punto del mismo para realizar las mediciones, usando un dispositivo para la hidrólisis de UF_6 (s), depositado a bajas temperaturas sobre un disco metálico[4]. Posteriormente, se simplificó el procedimiento de hidrólisis usando discos metálicos impregnados en aceite mineral [5].

En ambos casos, se lograron obtener depósitos de uranio con cantidades adecuadas para coleccionar buenos espectros alfa, con tasas de conteo que permiten una buena estadística, sin consumir tiempos excesivos. Se alcanzó buena resolución, dispersión razonable en las mediciones y correspondencia lineal de las relaciones de las áreas de los picos (U-235/U-238) en función de la concentración de U-235 en las muestras.

En esta etapa final, se intentó la medición directa de UF_6 gaseoso conectando un detector de barrera de superficie directamente al dispositivo usado, en el lugar que ocupaba la celda de hidrólisis. Además, se buscó mejorar la precisión y exactitud alcanzadas hasta ahora, (entre 2-12% según el enriquecimiento de la muestra), modificando por ejemplo, los tiempos de colección de los espectros alfa y otras condiciones de medición, para intentar acercarse a los valores que suelen alcanzarse por espectrometría de masas.

En este informe se presentan los resultados de los diversos ensayos realizados y las conclusiones finales obtenidas.

MATERIALES Y EQUIPAMIENTO UTILIZADOS

Instrumental: Las partículas alfa fueron medidas usando un Analizador Multicanal Portátil Canberra, modelo Series 10, equipado con un Detector PIPS, (Passivated Implanted Planar Silicon), Canberra, de 1200 mm^2 de área activa, un Preamplificador Canberra, modelo 2003B, un Amplificador Canberra, modelo 2020 y una Cámara de Medición, conectada a una bomba de vacío rotatoria. La resolución del detector para la energía de 5,48 MeV del Am-241 es 20,2 keV. La distancia Fuente-Detector era de 10 mm. La eficiencia del conteo en estas condiciones era alrededor del 20%. Los espectros alfa fueron transferidos del multicanal a una computadora y el área de los picos fue calculada usando el programa AlphaVision de Ortec.

ENSAYOS REALIZADOS Y RESULTADOS OBTENIDOS

Medición directa de muestras de UF_6 gaseoso: Para realizar el intento de medición directa de UF_6 gaseoso fue necesario diseñar y construir un alojamiento en aluminio para el detector de barrera superficial, INVAP, de 531 mm^2 de área activa, que permitiera conectarlo al equipo usado para los ensayos anteriores, ocupando el lugar donde estaba la cámara de hidrólisis. Este alojamiento contaba con cierres adecuados para vacío, que permitían evacuar el sistema correctamente, antes de llenarlo con la presión elegida de UF_6 para intentar la medición. La descripción junto a un esquema del equipo de hidrólisis usado en las otras etapas, puede consultarse en los informes anteriores [4] y [5]. El detector fue probado, antes de su conexión, en la cámara alfa enfrente a una fuente de uranio y respondió correctamente. En la Figura 1 se aprecia una fotografía de este equipo con el detector en su alojamiento ya conectado.

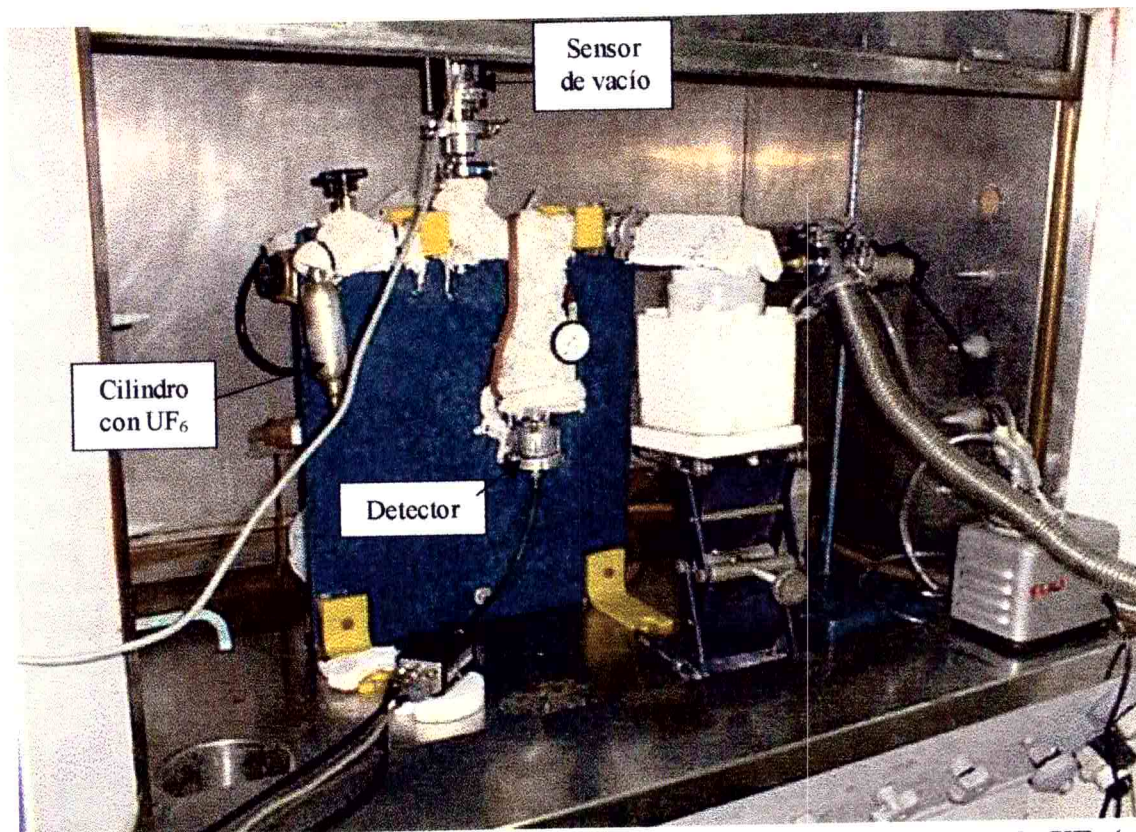


Figura 1: Equipo de Hidrólisis con Detector conectado para mediciones de UF_6 (g)

Para intentar la medición directa del UF_6 gaseoso, primero se hizo vacío en todo el sistema, mientras se calentaba el manifold con la cinta calefactora a 70°C para secar bien el interior. Se controló la estanqueidad y el fondo del detector. Luego, se permitió el ingreso del UF_6 al sistema desde el cilindro muestreador hasta una presión de 7-10 mb. Inmediatamente, se inició el conteo observándose un aumento notorio del tiempo muerto, desde un valor inicial de por sí alto del 25% hasta la saturación completa del detector (100%). Además las cuentas se acumulaban en la región del espectro de bajas energías, menores a 2 Mev, que no corresponden a las energías alfa del uranio. Esto estaba indicando un deterioro progresivo y muy rápido de la película de oro que recubre el área activa del detector, impidiendo una correcta medición. Una vez retirado el detector del sistema, se pudo observar sobre su superficie pequeñas discontinuidades circulares en su cubierta metálica. Colocado nuevamente en la cámara alfa con vacío y enfrentado a una fuente de uranio al 3%, no pudo colectarse el espectro alfa correspondiente, solo un gran pico ancho en la zona de energías inferiores a 2 Mev. Evidentemente, el detector no resistió la atmósfera a la que fue expuesto y dejó de funcionar correctamente.

Estudio de la precisión en las Curvas de Calibración: El objetivo, en este caso, era encontrar las condiciones donde las mediciones presentaran la menor dispersión, variando las distancias fuente-detector, que afecta la resolución de los picos, y los tiempos de recolección del espectro, que afecta la estadística del conteo.

Cuatro fuentes de U fueron medidas 4 veces cada una, durante distintos tiempos (30, 60 y 120 minutos) y a dos distancias (10 y 20 mm). Las fuentes habían sido preparadas por electrodeposición, conteniendo 0,71-1,80-3,32 y 19.8 % de U-235, con

una densidad superficial de alrededor de $50 \mu\text{g U/cm}^2$ y habían sido utilizadas para realizar las curvas de calibración anteriores [4].

En la TABLA 1 se muestran los parámetros de las distintas curvas de calibración obtenidas, que son la pendiente, la intersección con el eje y (ordenada al origen) y el coeficiente de correlación, cuyo valor lo más próximo a 1 nos indica la bondad del ajuste entre los datos experimentales y la ecuación obtenida (de una recta en este caso).

TABLA 1: Comparación de la Precisión en las Curvas de Calibración

Origen de los Datos	% de U-235	Coeficiente Variación en % de Cada punto	Parámetros de la Curva de Calibración		
			Pendiente	Intersección	Coefic. Correl.
CURVA 1: Datos teóricos corregidos	0.71	4.5	0.0582	-0.0111	0.99994
	1.80	2.9			
	3.32	2.2			
	19.8	1.2			
CURVA 2: Fuentes $d = 10\text{mm}$ $T = 30\text{min}$	0.71	3.5	0.0605	-0.0077	0.99987
	1.80	3.2			
	3.32	2.9			
	19.8	2.9			
CURVA 3: Fuentes $d = 10\text{mm}$ $t = 120\text{min}$	0.71	1.4	0.0606	-0.0072	0.99995
	1.80	1.1			
	3.32	0.8			
	19.8	1.0			
CURVA 4: Fuentes $d=10\text{mm}$ $t=120, 90, 60\text{m}$	0.71	1.4	0.0612	-0.0096	0.99990
	1.80	1.1			
	3.32	0.7			
	19.8	0.8			
CURVA 5: Fuentes $d = 20\text{mm}$ $t = 120\text{min}$	0.71	2.9	0.0606	-0.0057	0.99993
	1.80	4.4			
	3.32	5.1			
	19.8	1.6			

La CURVA 1 corresponde a una curva teórica, dado que es posible calcular los valores teóricos de las relaciones entre los isótopos del uranio. Partiendo de las actividades específicas y considerando las respectivas relaciones de ramificación de dichos nucleidos, se calcularon la cantidad de cuentas acumuladas y luego las respectivas relaciones teóricas corregidas, para el caso de un depósito de $500 \mu\text{g}$ de uranio, con una eficiencia de medición del 30% y un tiempo de medición de 120 minutos. Esta curva permite hacer comparaciones con los datos experimentales para detectar eventuales errores sistemáticos que afectan la exactitud de las mediciones.

En la CURVA 4 los tiempos de conteo son menores en las fuentes con mayor contenido de U-235 para que el total de cuentas acumuladas no sea tan diferente.

Comparando las cuatro curvas experimentales entre sí, puede concluirse que son prácticamente idénticas. Quizás pueda elegirse la CURVA 3 como la mejor y usar esas condiciones de medición cuando se pretenda la máxima precisión del método.

Aunque usando las condiciones de la CURVA 2 se ahorra bastante tiempo sin perder demasiada calidad en los resultados. Esta gran concordancia entre las distintas curvas, realizadas en distintas condiciones, nos indica la muy buena reproducibilidad del método y nos habilita, en caso de necesidad, a utilizar una curva de calibración que no se haya realizado en idénticas condiciones que una muestra dada.

La tercer columna de la TABLA 1 muestra los coeficientes de variación (desviación standard relativa) de cada punto de las respectivas curvas, medidos 4 veces. Este valor nos indica la repetibilidad de las mediciones, y como incluye, por supuesto, la fluctuación estadística de las desintegraciones nucleares, nos está indicando un límite para la precisión dependiente del número de cuentas acumuladas. Estos valores de los coeficientes de variación son menores que los esperados, mostrando que la repetibilidad es buena, pero siempre es recomendable realizar más de una medición y luego promediar los datos.

La similitud entre la CURVA 1, con los datos teóricos, y las curvas experimentales indica la ausencia de errores sistemáticos importantes, como era lógico esperar en un método que se basa en mediciones relativas.

Rango de Aplicación del Método: El método había sido probado, hasta acá, midiendo muestras y fuentes patrones en el rango entre 0,7 y 20 % de enriquecimiento en U-235, por ser la zona de mayor interés analítico para salvaguardias. Para intentar ampliar el rango de aplicación del método, fuentes con 0,5% hasta 90% de U-235, fueron preparadas por electrodeposición utilizando patrones NIST. Por un error en la preparación, las fuentes tenían una densidad superficial de U entre 80-120 $\mu\text{g U/cm}^2$. Estas densidades por ser tan altas, no son recomendables dado que aumentan la autoabsorción en el depósito, como fue demostrado en informes anteriores [4]. Aún así, las fuentes fueron medidas a una distancia fuente-detector de 10 mm, durante 120 minutos, para obtener una curva de calibración ampliada, que se muestra en la Figura 2.

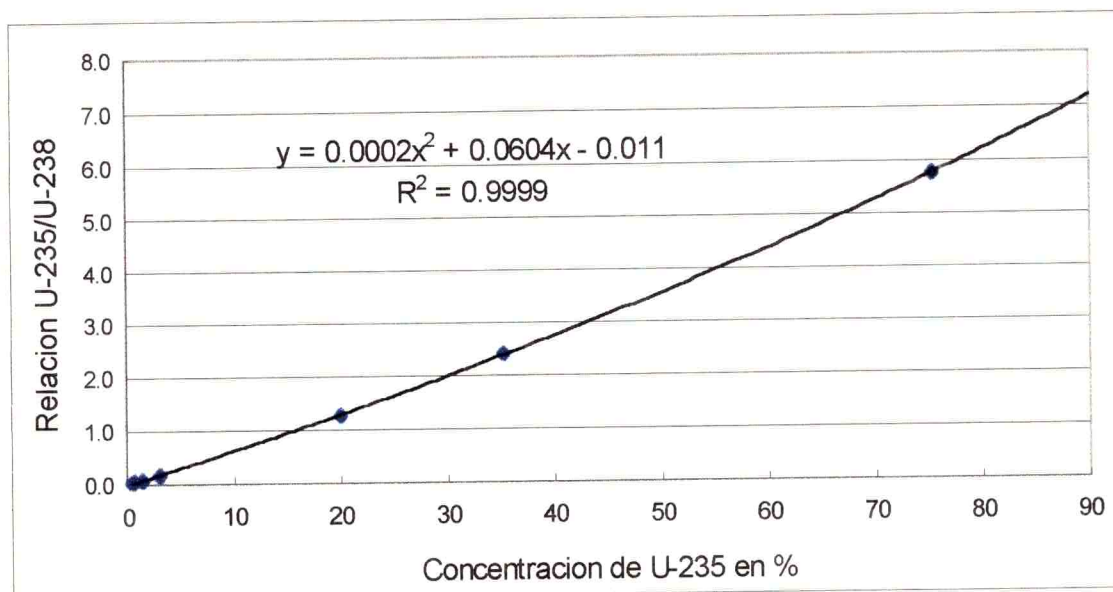


Figura 2: Curva de Calibración Ampliada con Patrones NIST

Al aumentar el rango de concentraciones de U-235, los puntos experimentales de la curva se apartan levemente de la recta y por eso, se ajustan mejor con un polinomio de segundo grado. Ocurre algo similar si se usan datos teóricos para definir una curva de calibración, como se había calculado la CURVA 1 en la TABLA 1.

ANEXO INFORME ABACC-BA 11-4

APLICACION DE LA ESPECTROMETRIA ALFA PARA LA DETERMINACION DE ENRIQUECIMIENTO EN U-235

En este informe final se usaron varios patrones isotópicos del NIST, con contenidos certificados de cada isótopo, para realizar una curva de calibración ampliada entre 0,5-90 % de enriquecimiento. Estos patrones contenían pequeños porcentajes de U-236, porque provenían de material reprocesado.

En todos los espectros alfa colectados se alcanza a observar el pico del U-236, aún en aquellos con apenas 0,01%. Este hecho demuestra la capacidad del método para establecer la presencia de U-236, que está directamente relacionado con su procedencia.

