

C. N. E. A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1985

UN METODO PARA LA DETERMINACION DE ABUNDANCIA ISOTOPICA Y MASA DE ^{235}U EN PLAQUETAS DESTINADAS A LA PRODUCCION DE ^{99}Mo POR FISION.

I. M. COHEN, C. MAGNAVACCA, G. B. BARO.

Comisión Nacional de Energía Atómica. Dirección de Radioisótopos y Radiaciones.

Resumen

Se ha desarrollado un método no destructivo para el control de masas de uranio y determinación de abundancia isotópica de ^{235}U en plaquetas de aleación U-Al destinadas a la producción de $^{99\text{m}}\text{Tc}$, basado en la medición, por espectrometría gamma, de las radiaciones naturales. La precisión alcanzada en el control de las masas es del 2%, mientras que en la determinación de la abundancia isotópica de ^{235}U oscila entre 0,62% y 0,65%, para uranio enriquecido nominalmente al 89%.

Este método permite la determinación de abundancia isotópica, o bien el control de la masa de uranio, en 5 y 20 plaquetas, respectivamente, por día de trabajo.

Introducción

La producción de ^{99}Mo por fisión del ^{235}U permite la obtención de generadores de alta actividad, siendo en este sentido un método, a pesar de su mayor complejidad, más conveniente que el que emplea la irradiación de óxido de molibdeno.

La Dirección de Radioisótopos y Radiaciones de la Comisión Nacional de Energía Atómica ha encarado el proyecto de producción de ^{99}Mo por fisión de ^{235}U , encontrándose éste en su fase final, que culminará con la irradiación en el reactor RA-3 y el procesado en la Planta de Producción de Radioisótopos, de las plaquetas conteniendo el uranio enriquecido. Este material está sometido a la existencia de salvaguardias, por cuya razón reviste importancia el control de la masa de uranio y su enriquecimiento. Los autores han desarrollado, con este fin, un método no destructivo para el control rutinario, basado en la espectrometría gamma de las radiaciones naturales.

Parte experimental

Las plaquetas para el estudio fueron provistas por el Departamento de Combustibles Nucleares de la CNEA. Sus dimensiones medias eran: 130 mm x 35 mm x 1,4 mm y estaban constituidas por un núcleo de aleación U-Al, de 117 mm x 30 mm x 0,54 mm, recubiertas por una placa de aluminio. La masa nominal de uranio en cada plaqueta era del orden de 1 g, sobre una masa total de 18 g, en promedio. Fueron provistas plaquetas con núcleos conteniendo uranio natural y enriquecido nominalmente al 89%.

Las mediciones se efectuaron con un detector Princeton Gamma Tech, de 70 cm³ y resolución de 2,4 keV para el pico de 1332,5 keV de ⁶⁰Co, acoplado a un preamplificador Princeton Gamma Tech RG 11A. La señal fue procesada en un analizador multicanal Canberra Serie 80, de 4096 canales, con amplificador modelo 8623 incluido y salida a teletipo. Para la realización de los cálculos fue empleada una calculadora programable Hewlett-Packard 9810 A.

El control de las masas fue efectuado diseñando un dispositivo que permitió el posicionamiento de las plaquetas en forma vertical, reproducible, con respecto al detector. En todos los casos, y con el objeto de compensar eventuales irregularidades en la distribución del uranio en el interior de las plaquetas, éstas fueron medidas en la mitad del tiempo programado en una posición determinada, completando la medición con otra posición, resultante de invertir y rotar con respecto a la primera. La radiación medida fue el pico de 185,7 keV de ²³⁵U. Para su adaptación a un control rutinario, se tomaron como estándares dos plaquetas de uranio natural; se determinó con precisión el contenido de uranio de una de ellas, reservada luego como estándar secundario para la comparación con las restantes plaquetas, con respecto a la otra, tomada como estándar primario. Este fue a su vez dosado por métodos destructivos: se disolvió la plaqueta en agua regia, y se preparó un patrón de similares características. Diferentes alícuotas de ambas soluciones fueron medidas por radiometría directa, nuevamente tomando la radiación de 185,7 keV de ²³⁵U, mientras que otras fueron irradiadas en el reactor RA-3 a un flujo térmico de $1,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ durante 15 minutos, con el fin de efectuar el análisis por activación a partir de la reacción: $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U} \xrightarrow{\beta^-} ^{239}\text{Np}$. Las radiaciones medidas de ²³⁹Np fueron: 209,8; 228,2; 277,6; 315,9; y 334,3 keV.

El control del enriquecimiento ofreció otro tipo de dificultades: si bien tanto el ²³⁵U como el ²³⁴Th y el ^{234m}Pa, hijas del ²³⁸U, son emisores

gamma, y permitirían en principio la determinación por espectrometría gamma, las intensidades de la radiación emitida por los dos últimos nucleidos es baja, representando un serio inconveniente para el desarrollo del método con precisión adecuada. En la Tabla I se indican las energías gamma más importantes de las familias de ^{238}U y de ^{235}U . Se observó en las mediciones de las plaquetas con uranio enriquecido que el pico de 93,0 keV aparecía interferido por los rayos X del Th y distorsionado por otros picos, de 95,7 keV y 96,1 keV de energía, provenientes del ^{235}U , mientras que el de 63,3 keV no era detectable y los de 766,6 keV y 1001,2 keV registraban muy baja velocidad de conteo. En un intento por mejorar las condiciones de detección de estos dos últimos picos, se emplearon absorbedores de plomo, interpuestos entre el detector y las muestras, para posibilitar, por medio de una geometría más favorable, mejorar en eficiencia de detección, atenuando la contribución de los picos de baja energía que impedían mayor aproximación de la muestra. Se realizaron varios ensayos, encontrándose que para un espesor de plomo de 1,2 mm la eficiencia de detección absoluta mejoraba, para los picos mencionados, en factores cercanos a 8, sin introducir modificaciones apreciables en el conteo del pico de 185,7 keV del ^{235}U . En estas condiciones, tomadas como definitivas para la experiencia, se efectuaron las determinaciones de abundancia isotópica, tomando como estándar una plaqueta de uranio natural, al que se atribuyó la composición isotópica de tablas. La fórmula empleada fue:

$$\theta_{^{235}\text{U}} = \frac{xa}{xa + yb}$$

siendo:

$\theta_{^{235}\text{U}}$: abundancia isotópica de ^{235}U

x : relación de actividades de ^{235}U entre muestra y estándar. (Promedio pesado de las relaciones según los picos de 143,7 y 185,7 keV).

y : relación de actividades de la familia del ^{238}U entre muestra y estándar. (Promedio pesado de las relaciones según los picos de 766,6 y 1001,2 keV).

a : abundancia de ^{235}U en el estándar: 0,0072

b : abundancia de ^{238}U en el estándar: 0,99275.

Se realizaron pruebas acerca de la precisión del método para enrique-

cimientos menores, ya que los sucesivos ciclos de irradiación producen el quemado del material, que eventualmente es utilizado nuevamente en la producción de ^{99}Mo . Se efectuó para tal fin la composición de espectros simples, con distintos tiempos de medición, de plaquetas con uranio enriquecido al 89% y con uranio natural, simulando así los espectros que se obtendrían para otros grados de enriquecimiento, realizando como siempre la comparación con una plaqueta estándar conteniendo uranio natural.

Tabla I

Datos de las radiaciones más importantes de las familias radiactivas. (1)

Nucleido	E. de la radiación (keV)	Int. absoluta de la radiación
^{235}U	143,7	10,5%
	185,7	54 %
^{234}Th	93,0	5,4%
	63,3	3,8%
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	766,6	0,21%
	1001,2	0,59%

Resultados y discusión

La Fig. 1 muestra la variación del error porcentual relativo en función de la abundancia isotópica del ^{235}U en las plaquetas. Algunas desviaciones con respecto a estos valores pueden esperarse en el control rutinario, teniendo en cuenta que las masas nominales de uranio presentan diferencias que llegan hasta el 5% con respecto a su valor medio. Se ha comprobado que, para el mismo grado de enriquecimiento nominal (89%) la precisión varía entre 0,62% y 0,66%, según las masas de uranio involucradas.

Tal como podía esperarse, se advierte que la precisión en la determinación de la abundancia isotópica del ^{235}U es función del grado de enriquecimiento, desmejorando cuando la composición se aproxima a la del uranio natural, llegando el error relativo hasta 2,7% para este caso.

La precisión alcanzada en el control de las masas es del 2%.

El método desarrollado permite la determinación de abundancia isotópica, o bien el control de la masa de uranio, en 5 y 20 plaquetas, respectivamente, por día de trabajo.

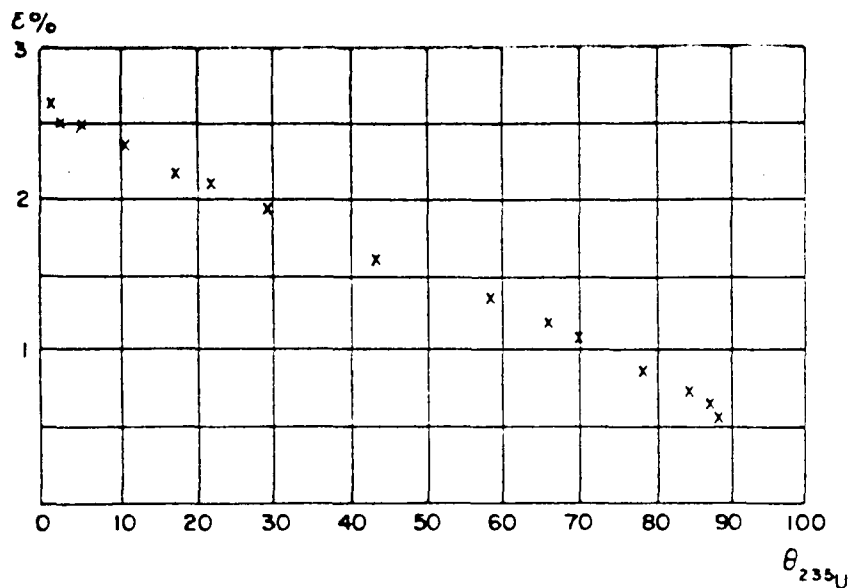


Fig. 1 Variación del error relativo en función de la abundancia isotópica de ^{235}U

Agradecimientos

Los autores desean agradecer al señor Jorge Guillermo GRAÍÑO su colaboración en el armado de los dispositivos empleados para efectuar las mediciones.

Referencias

- (1) C. M. LEDERER, V. S. SHIRLEY. Table of Isotopes, 7th ed., Wiley, New York, Chichester, Brisbane, Toronto (1978).