

CNEA 383

Determinación de Uranio-235 por Espectrometría Gamma Diferencial

A. A. Suñer

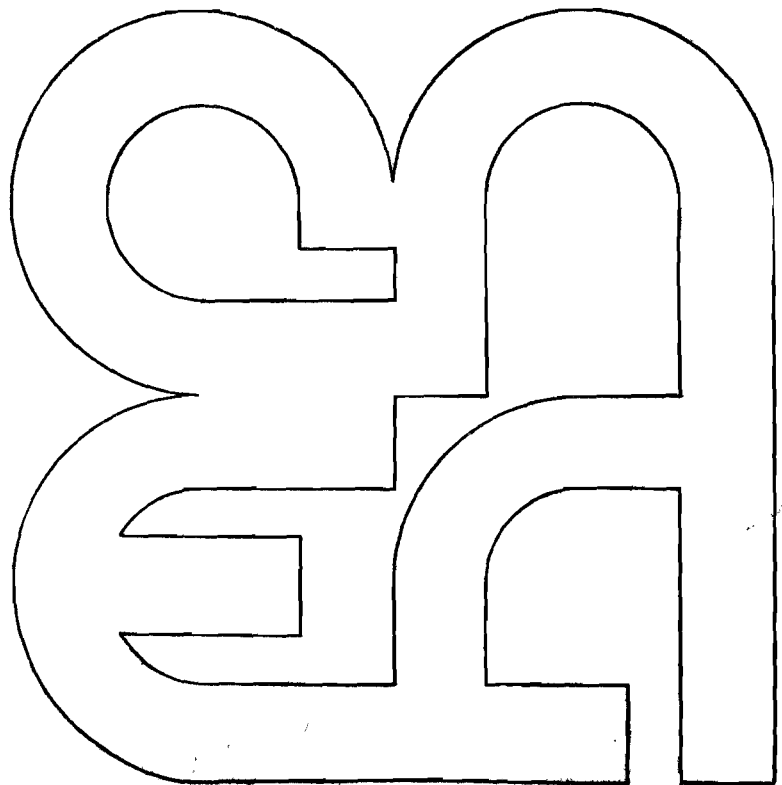
J. Botbol

La Gamma
de Batistoni, A. M. G.

Comisión
Nacional
de Energía
Atómica

República Argentina

Buenos Aires, 1974



INIS CLASSIFICATION AND KEYWORDS

B11

URANIUM 235
GAMMA SPECTROSCOPY
RADIATION DETECTION
LI-DRIFTED GE DETECTORS
ISOTOPE RATIO
MEASURING METHODS

**DETERMINACION DE URANIO-235 POR ESPECTROMETRIA
GAMMA DIFERENCIAL**

A.A. Suñer, A.M.L.G. de Batistoni y J. Botbol

RESUMEN

Se describe una técnica para medir el contenido de U-235 en soluciones de sales de uranio por espectrometría gamma con detector de Ge(Li). Se elimina el Ra-226 por coprecipitación en SO_4Ba . Se mide la actividad del pico de 186 keV, restándole a los valores obtenidos los correspondientes a un patrón análogo en un equipo multicanal. El límite de medición es del 1% de incremento de U-235 sobre el patrón.

SUMMARY

Determination of uranium-235 by differential gamma spectrometry.

A method for the determination of U-235 contained in solutions of uranium, by gamma spectrometry with Ge(Li) detector is described. Ra-226 is coprecipitated in BaSO_4 . The activity at 186 keV is measured, subtracted by the corresponding of a standard. The detection limit is 1% of increment of U-235 over the standard.

INTRODUCCION

La medición de uranio 235 por espectrometría gamma ha sido estudiada en minerales (1) con detectores de baja y alta resolución. El problema es comple-

jo pues no se encuentran picos específicos de este nucleido. Solamente cuando el mineral no contiene la familia del Th-232, puede medirse el uranio-235 por medio del pico de 144 keV.

En el caso de las soluciones que contienen uranio en las cuales no hay miembros de la familia del Th-232, el problema es análogo y puede ser determinado el contenido de U-235, midiendo la actividad de la solución a 144 keV.

Se comenzaron ensayos con el fin de determinar una modificación del contenido isotópico mayor del 5% en estas soluciones. Se empleó detector de Ge (Li) y los resultados indicaron que si bien se obtenía buena resolución, la eficiencia era baja, lo que no permitiría llegar a una buena sensibilidad.

Estudiando los espectros de estas soluciones se comprobó que el pico de 186 keV se medía con mayor eficiencia. El Ra-226 también emite fotones de esta energía y como este nucleido es de la familia del U-238, es una interferencia en esta medición. Por lo tanto se iniciaron ensayos para poder eliminarlo de las soluciones conteniendo uranio, de modo de poder medir solamente el U-235 empleando el pico de 186 keV, sin interferencia.

Como el fin que se perseguía era medir la diferencia entre la cantidad de U-235 antes y después de un dado proceso, se pensó usar una técnica que midiera directamente esa diferencia. Para ello debía contarse con patrones de composición no solamente radioquímica, sino química también (por razones de autoabsorción) análoga a las muestras problema. De modo que haciendo el espectro de la muestra problema y luego acumulando en negativo en el multicanal el espectro del patrón se obtendría la diferencia de espectros. La diferencia de actividad de cada pico es proporcional al incremento de la cantidad del nucleido emisor (en el pico de 186 keV y sin Ra-226, es el U-235).

TRABAJOS REALIZADOS

Equipo empleado:

Detector de Ge(Li) de 50 cc asociado a multicanal de 1600 canales, con salida por registrador y máquina de escribir.

Preparación de las soluciones standard:

Se empleó $(\text{NO}_3)_2\text{UO}_2$ al que se eliminó el Ra-226 por precipitación con Cl_2Ba y SO_4H_2 y filtración. Se controló la eliminación por la técnica de Kirby (2).

El grado de eliminación del Ra, coprecipitado en el SO_4Ba , se comprobó midiendo la actividad del pico de 186 keV antes, y después de la precipitación. Se comprobó que en el filtrado la actividad del Ra-226 es menor de 0,5% respecto a la original.

Celdas empleadas.

Con el doble fin de incrementar la eficiencia y tener geometría constante en las mediciones, se hicieron construir celdas en forma de doble camisa (ver figura N° 1) que se llenaban con la solución a medir. Se construyeron dos celdas y se controló la igualdad, midiendo varias veces la actividad de una misma solución en ambas. La diferencia encontrada (7%) fue usada en los cálculos cuando se empleaban las dos celdas.

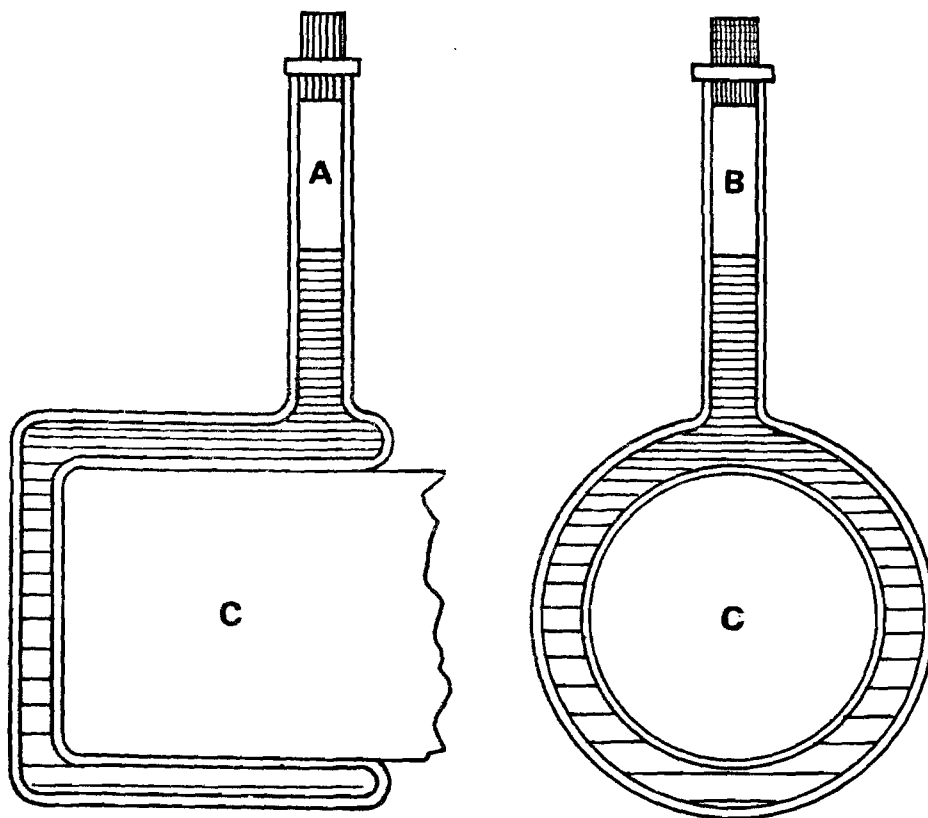


FIGURA N° 1

Esquema de la celda de medición

- A: vista corte perfil.
- B: vista corte transversal.
- C: detector.

Uso de standard interno:

Inicialmente se empleó como standard interno Hg-203 pero luego, al comprobar que la eficiencia del equipo era suficientemente alta, y debido a que el standard aumentaba mucho el fondo Compton en la zona de medición, dejó de usarse.

Técnica diferencial:

Se llena la celda con la solución problema y se enrasa. Luego se hace la medición acumulando el espectro en la memoria del multicanal (es suficiente con registrar el pico de 186 keV y la línea de base del mismo). Se lava la celda, se la descontamina, se la llena con la solución standard y se registra su espectro negativamente en la memoria del multicanal. La diferencia da la actividad que corresponde al incremento de U-235 en la solución problema.

Mediciones realizadas:

Se efectuaron una serie de mediciones de la actividad de soluciones de U-235 puro y de soluciones con U-235 + U natural, con los siguientes resultados (promedio de no menos de 4 mediciones cada una):

TABLA 1

mg U - 235	ACTIVIDAD EN UNIDADES ARBITRARIAS	OBSERVACIONES
1,23	1752	U-235 puro
6,15	8996	U-235 puro
24,6	33108	U-235 puro
62,3	83400	U-235 + U nat.
112,3	141090	U-235 + U nat.

Se observa que hay excelente proporcionalidad entre la cantidad de U-235 y el área del pico de 186 keV.

Se hicieron mediciones para ver la influencia que tiene el aumento de la cantidad de U natural en la actividad de una cantidad constante de U-235. Esto se puede observar usando la técnica diferencial. Se prepararon dos series de soluciones de U-natural con cantidades crecientes de éste. A una de

las series se le agregó U-235. Las mediciones se hicieron por la técnica diferencial. Se obtuvieron los resultados:

TABLA 2

CANTIDAD U NAT. GRAMOS	U-235 AGREGADO mgr	ACTIVIDAD EN UNIDADES ARBITRARIAS
1,18	12,3	17530
5,92	12,3	14860
11,88	12,3	16960

Se midió la precisión de las determinaciones por la técnica diferencial del incremento del 1 % de U-235. Se obtuvieron los siguientes resultados:

TABLA 3

U NATURAL GRAMOS	ACTIVIDAD DIFERENCIAL U-235 UNIDAD ARBITRARIA	δ %
1,18	176	230
11,8	1680	70
35,0	5200	153

DISCUSION DE LOS RESULTADOS

La técnica empleada que mide directamente la diferencia de actividad entre la solución problema y el patrón, es análoga a la usada en la fotometría, denominada espectrofotometría diferencial. Por otra parte no es igual al método de análisis de espectros llamado "stripping", pues este último usa un patrón para borrar picos que no interesan, mientras que en la espectrometría diferencial se borra (no totalmente) el pico de interés.

Los resultados obtenidos indican que se puede medir con la misma precisión un bajo nivel de U-235 cuando está acompañado de alto o bajo contenido de U-238 (Tabla 1). Eso era previsible pues la alta resolución del detector y la disminución del fondo del espectro, que efectúa la técnica diferencial, hacen que influya poco la presencia de otros niveles de radiación, aunque tengan energía cercana a la que se mide.

Se buscó el límite de detección del U-235. Como la medición se realiza por una metodología diferencial, se debe buscar la diferencia en contenido de U-235 entre el patrón y la muestra. Las mediciones hechas con incrementos grandes de U-235 (20 - 100 % sobre el patrón) indicaron que en estas condiciones se tenía buena precisión. Se estimó que esta precisión disminuiría mucho haciendo mediciones de incrementos menores. Los ensayos referidos en la Tabla 3, indican que el 1% de incremento sería el límite de medición de U-235 en estas condiciones pues tienen una desviación standard del orden del 100 %.

AGRADECIMIENTOS

A la señora B.M. Castro de Rodriguez por su colaboración en las mediciones.

BIBLIOGRAFIA

- 1) a) MATHEVON, G.; ROTHE, J.P.; SIFFERT, P. y COCHE, A.: *Comp. Rend. Ser B* 264, 1753 (1967).
- b) CHIBA, R. y EBISAWA, K.: *J. of Nuclear Science and Technology (Tokio)* 6; 45-46 (1969).
- c) COOTE, G.E.; WHITEHEAD, N.E. y COHEN, N.E.: *N.Z. J. of Science* 13, pag. 610 (diciembre 1970).
- 2) KIRBY, H.W. y SALUTSKY, M.L.: *NAS-NS 3057. The Radiochemistry of Radium*, pag. 111 (1964).