

**Espectrometría alfa de fuentes
radiactivas gruesas . II posibilidades
de aplicación al estudio de equilibrios
radiactivos en minerales uraníferos .**

por

M. L. Aceña Barrenechea

M. J. Tormo Ferrero

JUNTA DE ENERGIA NUCLEAR

MADRID, 1977

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES

B11

ALPHA SPECTROSCOPY

RADIOACTIVITY

URANIUM 234

URANIUM 238

URANIUM MINERALS

RADIOACTIVE MATERIALS

EQUILIBRIUM

SAMPLE PREPARATION

RADIATION SOURCES

ELECTRODEPOSITION

SEMICONDUCTOR DETECTORS

ION EXCHANGE

Toda correspondencia en relación con este trabajo debe dirigirse al Servicio de Documentación Biblioteca y Publicaciones, Junta de Energía Nuclear, Ciudad Universitaria, Madrid-3, ESPAÑA.

Las solicitudes de ejemplares deben dirigirse a este mismo Servicio.

Los descriptores se han seleccionado del Thesaurus del INIS para describir las materias que contiene este informe con vistas a su recuperación. Para más detalles consúltese el informe IAEA-INIS-12 (INIS: Manual de Indización) y IAEA-INIS-13 (INIS: Thesaurus) publicado por el Organismo Internacional de Energía Atómica.

Se autoriza la reproducción de los resúmenes analíticos que aparecen en esta publicación.

Este trabajo se ha recibido para su impresión en Junio de 1977.

INDICE

1.- INTRODUCCION	1
1.1 Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas.....	4
2.- PARTE EXPERIMENTAL	6
2.1. Equipo empleado.	6
2.2. Preparación de fuentes.....	6
2.3. Espectros realizados.	7
3.- DISCUSION	12
3.1. Aplicación del método.....	14
3.2. Resultados.	18
3.3 Anomalías.....	19
4.- BIBLIOGRAFIA	31
AGRADECIMIENTO.....	32

ESPECTROMETRIA ALFA DE FUENTES RADIATIVAS GRUESAS. II. POSIBILIDADES DE APLICACION AL ESTUDIO DE EQUILIBRIOS RADIATIVOS EN MINERALES URANIFEROS.

MIGUEL L. ACEÑA BARRENECHEA (*)

MANUEL J. TORMO FERRERO (*)

1.- INTRODUCCION

El estudio del equilibrio radiactivo de los radioelementos en filiación de la serie natural $4n + 2$ del Uranio, tiene en la actualidad extraordinaria importancia, principalmente en la prospección de minerales uraníferos de origen sedimentario (1).

El equilibrio radiactivo es un estado límite en condiciones físicas ideales, raramente encontrado en la naturaleza; en particular, lleva consigo el concepto de un sistema cerrado durante lapsos de tiempo geológicamente no despreciables (del orden de 10^{10} a 10^{11} años).

Como indican Coulomb y colaboradores (2), el problema general equilibrio-desequilibrio de los minerales uraníferos es relativamente complejo, pero puede simplificarse grandemente mediante aproximaciones acertadas en numerosos casos particulares encontrados concretamente sobre el terreno. Sin embargo ellos -- subrayan que las ecuaciones simplificadas sólo son válidas en dominios precisos de aplicación, en los que hay que conocer bien los límites de los que uno no puede apartarse sin riesgo de cometer errores groseros, no solamente en el plano de interpretación geoquímico sino también en el plano práctico de la estimación cualitativa y cuantitativa de una zona radiactiva.

En el caso concreto de la serie $4n + 2$, representada en la figura 1, se pueden observar las diferencias de magnitud de los períodos de semidesintegración de los nucleidos que la componen. Ahora bien, considerando las expresiones

(*) UNIDAD DE METROLOGIA

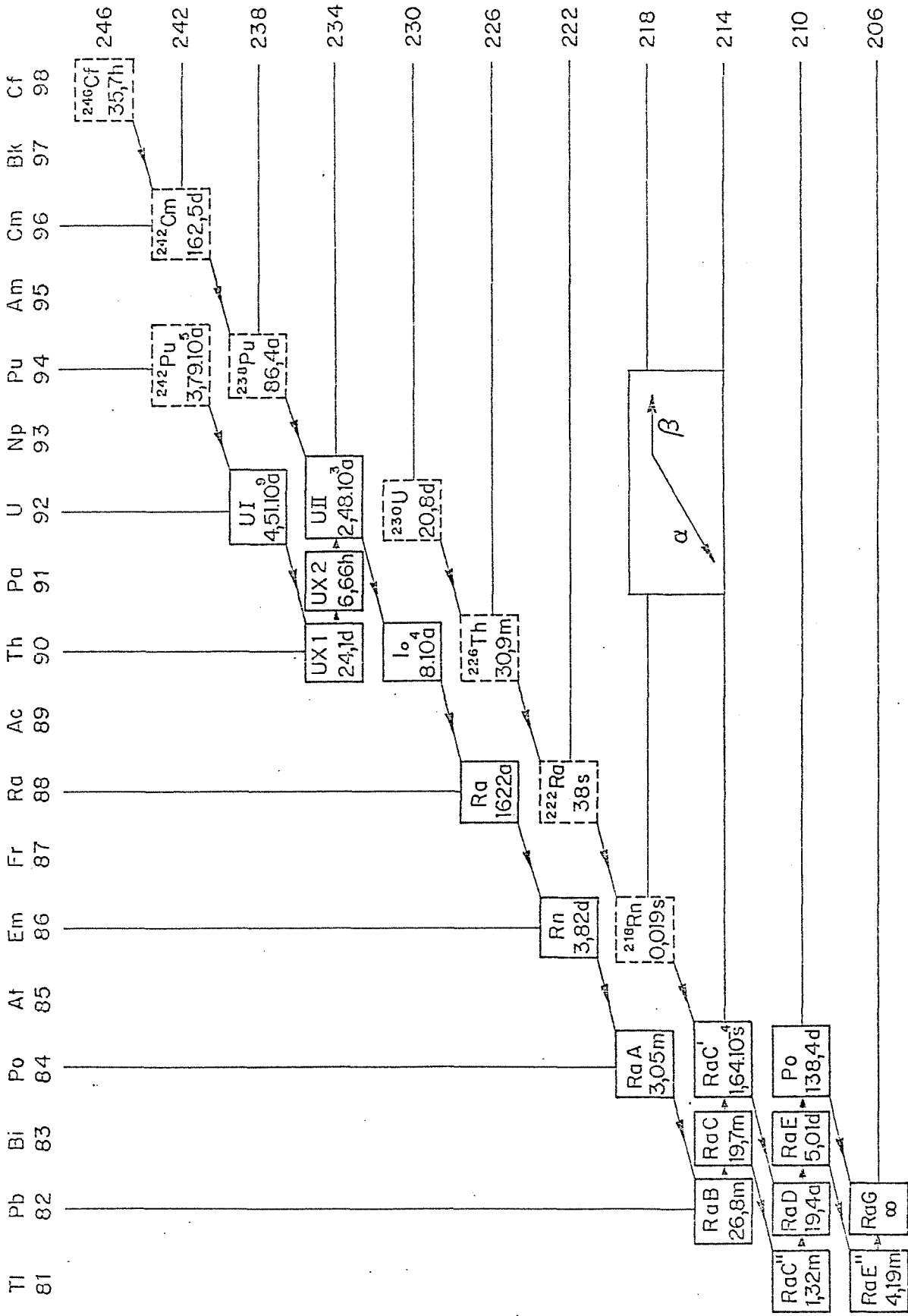
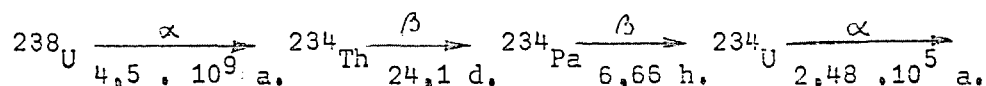


FIG. 1.- SERIE DEL URANIO 4n+2

de la desintegración radiactiva de una cadena en filiación, desarrolladas por Bateman (3), se pueden hacer distintos grupos de ella, atendiendo a los períodos de semidesintegración del nucleido cabeza de serie de cada grupo, que -- impondrá el período del grupo, y el período de semidesintegración más largo de los descendientes de éste que reflejará el tiempo necesario para alcanzar el equilibrio, que se puede fijar en unos diez períodos.

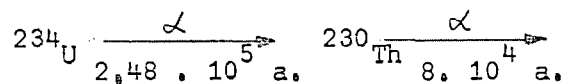
Así, se tendrá:

grupo 1°



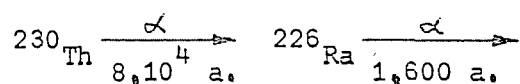
Considerando que en un principio no existe ningún átomo de los descendientes, para alcanzar el equilibrio se necesitarían aproximadamente $2,48 \cdot 10^6$ años. El período de semidesintegración de la serie, sería $4,5 \cdot 10^9$ años.

grupo 2°



donde el equilibrio se alcanzaría en $8 \cdot 10^5$ años.

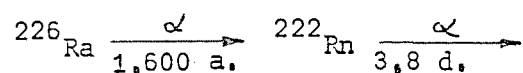
grupo 3°



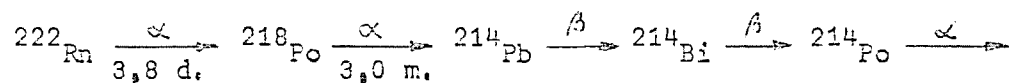
necesitándose un tiempo, para alcanzar el equilibrio de 16.000 años.

Los períodos de semidesintegración de todos los descendientes del ${}^{226}\text{Ra}$ son muy inferiores al de éste (22 años para el ${}^{210}\text{Pb}$, mayor de todos) y se podría pensar que siempre se encontrarán en equilibrio; sin embargo al ser el ${}^{222}\text{Rn}$ un gas, puede escaparse parcialmente del mineral, creando así un déficit permanente de sus descendientes. Por ello, se deben considerar los grupos:

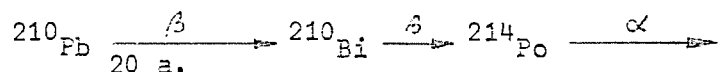
grupo 4°



grupo 5°



grupo 6°



Los cortes de equilibrio por causas geoquímicas en el curso de la Historia del mineral son frecuentes entre los nucleidos ^{238}U / ^{234}U / ^{230}Th ^{226}Ra , debido a sus propiedades físico-químicas diferentes (4) (5) (6) (7), y su estudio permitirá en cierto modo conocer esta historia.

La determinación de los diversos nucleidos que integran una serie radiactiva presenta enormes dificultades si se realiza por métodos convencionales, sin embargo, la espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas (8) puede ser de gran utilidad.

En el presente trabajo se ha desarrollado un método de medida directa de la actividad alfa de minerales de Uranio, sin previa alteración química alguna que puede facilitar datos esenciales en el estudio de los mencionados equilibrios radiactivos.

1.1 Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas

La espectrometría alfa clásica se realiza con fuentes extraordinariamente finas (9) con objeto de deformar lo menos posible el espectro energético. Sin embargo, aumentando el espesor de estas fuentes, las líneas alfa se ensanchan y solapan unas sobre otras, transformándose los picos característicos en una serie de escalones, cuyas caídas verticales coinciden con la energía de los máximos correspondientes, cuando se ha llegado a un espesor superior al recorrido de las partículas alfa en la sustancia que forma el depósito radiactivo de la fuente.

Guery (8) ha hecho un estudio muy completo de este tipo de espectrometría alfa, analizando sus ventajas e inconvenientes. Una de estas ventajas, es el poder realizar medidas no destructivas de sustancias alfa-activas y por lo tanto es aplicable al caso de un mineral en el que se pueden efectuar los

espectros sin alterar el equilibrio radiactivo.

2. PARTE EXPERIMENTAL

2.1. Equipo empleado

Se ha utilizado una prensa metalográfica "METALOGRAF" con posibilidad de trabajar a una presión máxima de 39,2 MPa y a una temperatura de 200°C., para la preparación de la mayor parte de las fuentes medidas. E igualmente una -- prensa semiautomática ARL para la obtención de fuentes en frío, con presiones superiores a los 196 MPa.

El espectrómetro usado, está compuesto por una cadena ORTEC de:

- Preamplificador sensible a carga mod. 109A.
- Amplificador de bajo nivel de ruido mod. 410.
- Fuente de tensión mod. 428.
- Generador de impulsos para calibración mod. 480.

Los impulsos, se han clasificado en un analizador de impulsos SPECTROZOOM de SEIN con 200 canales de memoria y 4.000 en convertidor, siendo extraída la información en forma digital por medio de un teletipo TELEPRINT, con posibilidad de hacerlo también en cinta perforada.

Se han utilizado diferentes tipos de detectores de barrera de silicio, - todos de la firma ORTEC.

2.2 Preparación de fuentes

Han sido preparadas una serie de fuentes radiactivas gruesas por prensado del mineral, previamente molido y tamizado a 200 mallas, utilizando como aglomerante almidón, para las obtenidas en frío y resina termoplástica "LUMIGRAF" para las realizadas en caliente a 130°C.

En todos los casos, la proporción elegida mineral-aglomerante, ha sido

1:1. Ya que proporciones superiores hacen que las fuentes resulten poco compactas, e inferiores, redundan en una disminución de la actividad de las mismas.

2.3. Espectros realizados

Las figuras 2, 3 y 4 representan los espectros obtenidos de una sal de Uranio (F_5NH_4U) prensada con almidón a 196 MPa, prensada en caliente con baquelita a 120°C. y 19,6 MPa y un espectro de una fuente de Uranio natural preparada por sublimación en vacío cuyo espesor es de unos 60 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Todos los espectros han sido realizados en las mismas condiciones (detector, vacío, polarización, etc.). Puede observarse claramente en estos tres espectros características la diferencia de forma que depende no solamente del espesor de la fuente radiactiva sino también de la presión utilizada y método seguido para la preparación de la fuente gruesa.

La figura 5 muestra un espectro de una fuente gruesa de Peblenda, preparada por compresión a 19,6 MPa y 140°C., de una mezcla del mineral a 200 mallas y resina termoplástica en proporción 1:1 en peso.

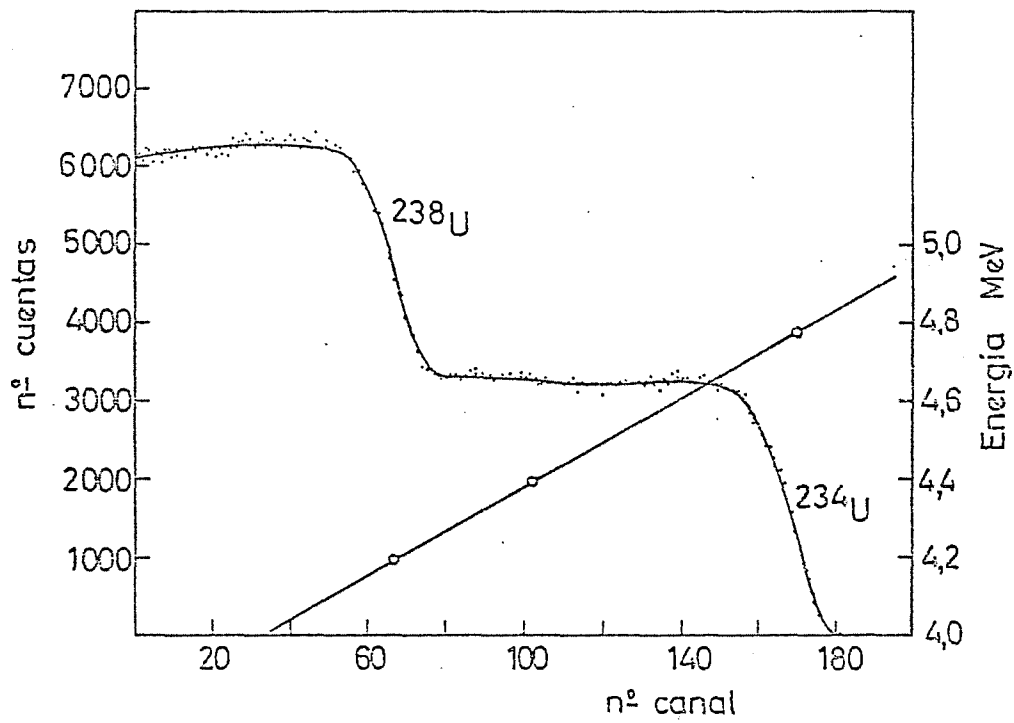


FIG. 2.- MUESTRA DE SAL DE URANIO PRENSADA CON ALMIDON

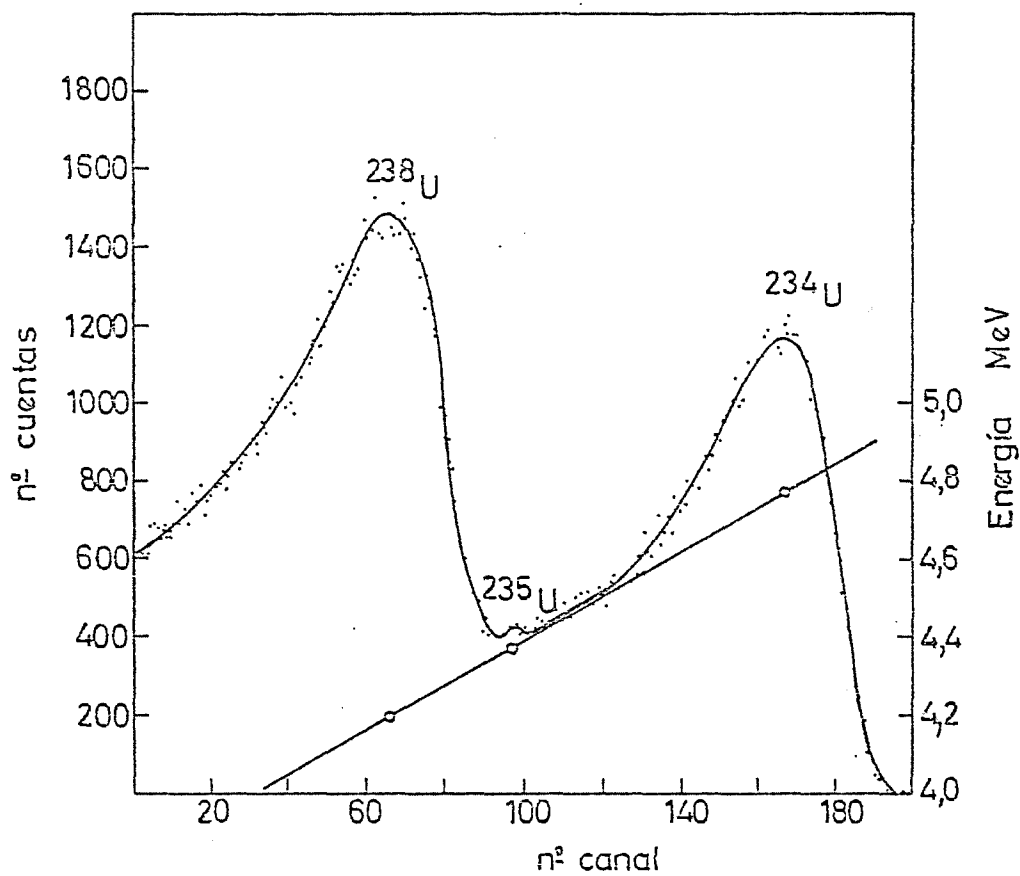


FIG. 3

MUESTRA DE SAL DE URANIO PRENSADA EN CALIENTE CON BAQUELITA

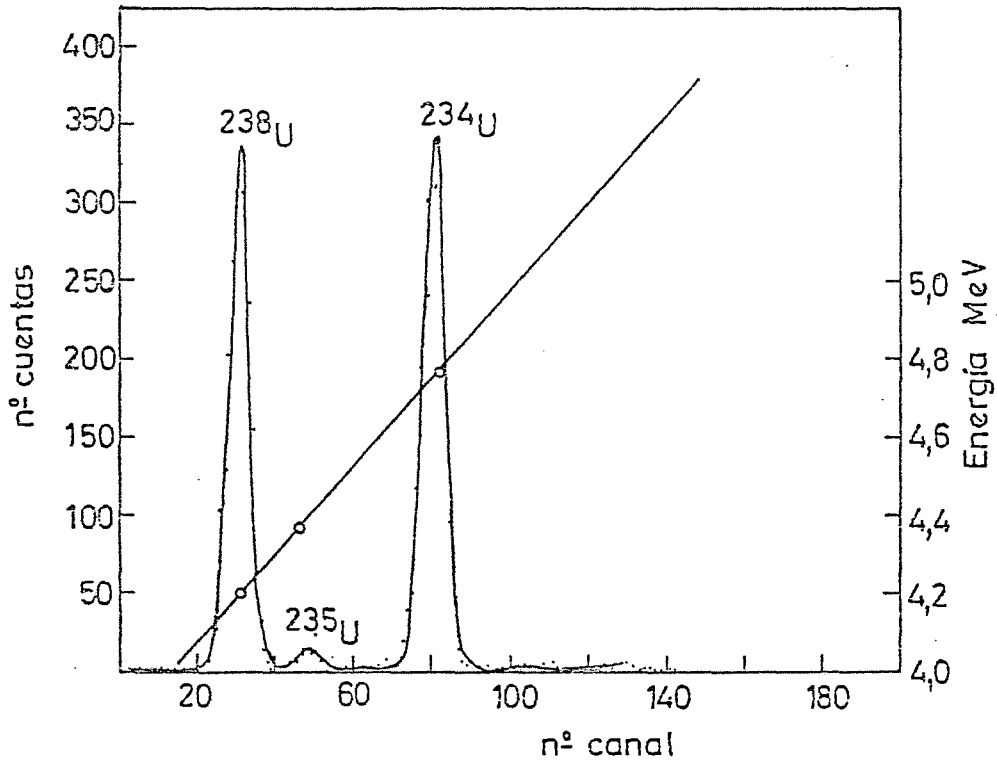


FIG. 4.- MUESTRA FINA DE URANIO NATURAL

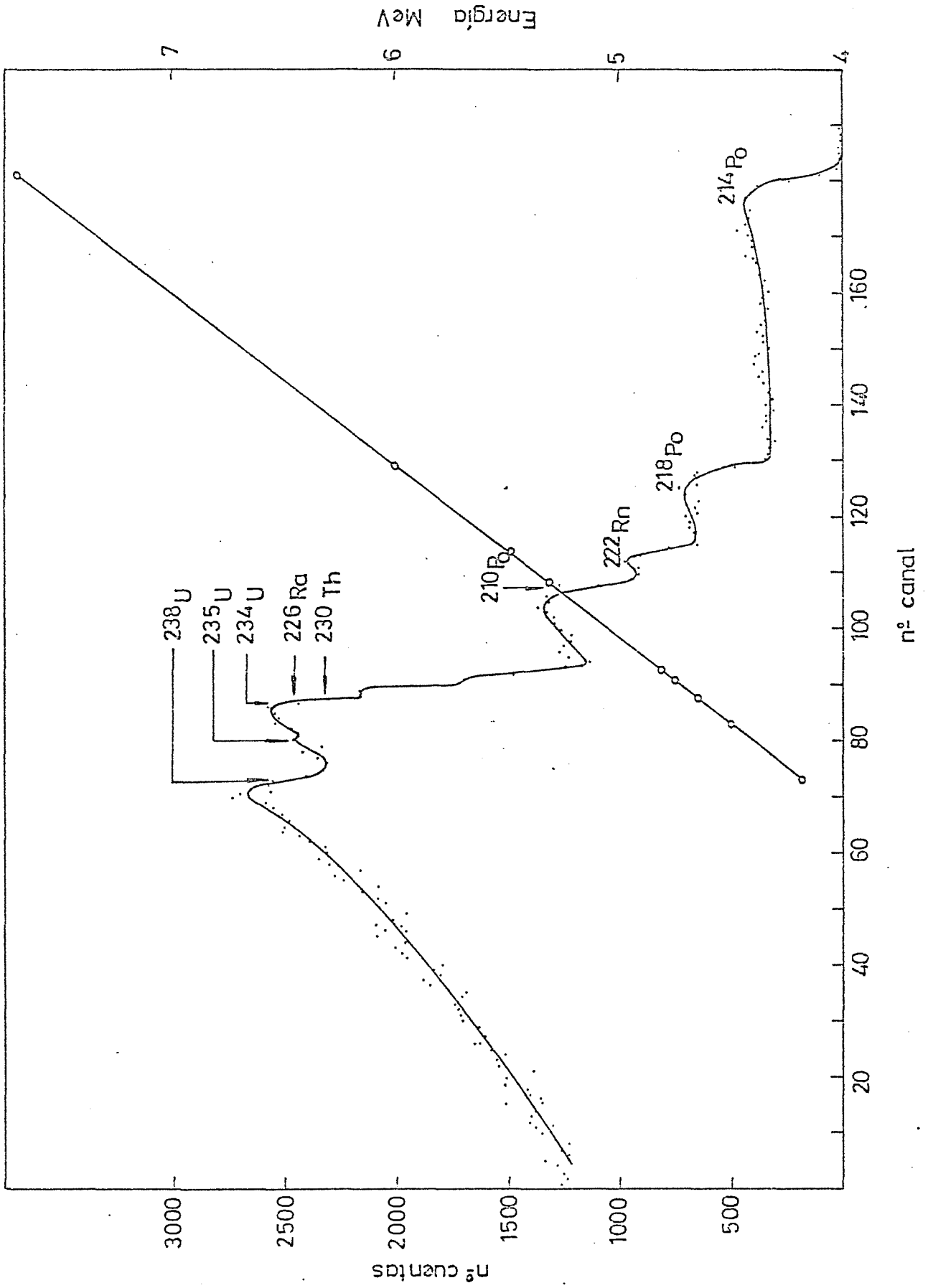


FIG. 5.- FUENTE GRUESA DE PECELENDIA FUNDIDA CON BAQUELITA

3. DISCUSION

En la tabla I se han listado todos los nucleidos emisores alfa de la serie $4n + 2$ juntamente con sus períodos de semidesintegración, energías de las partículas alfa e intensidades relativas de sus líneas de estructura fina más importantes.

TABLA I

NUCLEIDOS EMISORES ALFA DE LA SERIE RADIATIVA $4n + 2$

Nucleido	Energía (MeV)	Intensidad (%)	Período de Semidesint.
^{238}U	4,195	77	$4,5 \cdot 10^9$ a.
	4,147	23	
^{234}U	4,774	72,5	$2,5 \cdot 10^5$ a.
	4,722	27,5	
^{230}Th	4,684	76,3	$7,5 \cdot 10^4$ a.
	4,617	23,4	
^{226}Ra	4,781	94,5	1.602 a.
	4,598	5,5	
^{222}Rn	5,486	100	3,82 d.
^{218}Po	6,000	100	3,0 m.
^{214}Po	7,688	100	0,16 m.
^{210}Po	5,304	100	138,4 d.

Si las energías reseñadas en esta tabla se representan en función del canal correspondiente a la posición de los puntos de inflexión del espectro de la figura 5, puede observarse que se obtiene una línea recta, lo que es lógico, dadas las propiedades de los detectores de semiconductor (10); y es precisamente esta linealidad la que permite la caracterización de los diferentes nucleidos emisores alfa, si previamente son conocidas sus energías. Por otra parte, el área encerrada bajo cada escalón del espectro, extrapolando la curva superior hasta energía cero, será proporcional a la actividad del nucleido al que corresponde la línea alfa y por tanto, a su concentración en la fuente; por lo que, si se dispone de algún método para descomponer el espectro complejo, en sus líneas correspondientes, podrá realizarse su análisis cuantitativo.

Estos métodos han sido desarrollados en un trabajo anterior (11) y han sido aplicados en el presente para la determinación de los nucleidos emisores alfa de los minerales estudiados.

En la serie radiactiva $4n + 2$, como puede verse en la tabla I, aparecen los isótopos ^{234}U , ^{230}Th y ^{226}Ra cuyas partículas alfa poseen unas energías que difieren sus líneas más intensas en menos de 100 keV, lo que difícilmente puede ser resuelto en un espectro realizado con fuentes gruesas, y este conjunto de líneas integrará un solo escalón. El área calculada de este escalón proporcionará, por tanto, la actividad de los tres nucleidos conjuntamente y, en un mineral en estado de equilibrio secular, deberá ser, lógicamente, de una magnitud triple que la de cualquier otro escalón del espectro; por ejemplo el correspondiente al ^{238}U o al ^{210}Po .

Ahora bien, los nucleidos ^{234}U , ^{230}Th y ^{226}Ra , son de períodos muy largos, y en el caso que el área de su escalón no fuera la indicada (caso de no equilibrio) es necesario realizar una separación selectiva para conocer en -- cual de los tres el equilibrio ha quedado alterado. Afortunadamente y debido precisamente a que los tres nucleidos son de vida larga en comparación con el tiempo necesario para realizar su separación, ésta no supondrá ninguna alteración en el estado de equilibrio, y se podrá disponer de los datos suficientes para el estudio completo del mismo.

No obstante, esta separación puede limitarse solamente al Uranio, teniendo en cuenta que, por una parte, un espectro de una fuente fina de este elemento

permite calcular la relación de actividades de los isótopos del mismo, $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ (12) (13) y por otra, dado que el ^{222}Rn es de período corto (3,8 días) y solo necesita un mes para encontrarse en equilibrio con el ^{226}Ra , en principio, si no existen fugas del Radón, cosa que se ha comprobado en las fuentes preparadas por compresión en caliente con resina termoplástica, la medida del área del escalón correspondiente a éste último o mejor la media de las áreas de -- todos los escalones de los nucleidos descendientes, siempre en equilibrio dados sus cortos períodos de semidesintegración, será equivalente a la actividad del ^{226}Ra .

Así, haciendo:

$$R = \frac{\text{Actividad } ^{234}\text{U}}{\text{Actividad } ^{238}\text{U}}$$

$$\text{y Ac Ra} = \frac{\sum_4 E_i}{\text{Número de nucleidos descendientes}} = \frac{\text{Suma de actividades de nucleidos descendientes del } ^{226}\text{Ra}}{\text{Número de nucleidos descendientes}}$$

se tendrá que la actividad del ^{230}Th en el mineral, si el área del escalón correspondiente a los tres nucleidos se la representa por E, será

$$\text{Ac Th} = E - \left(R + \frac{\sum_4 E_i}{4} \right)$$

El método analítico utilizado para separar el Uranio de los demás nucleidos de la serie, es el que se esquematiza en la figura 6.

3.1 Aplicación del método

De distintos minerales secundarios españoles y también pecblenda pura, que de antemano se puede suponer en equilibrio, se han realizado sendas muestras gruesas, mezclando una parte del mineral molido y tamizado a 200 mallas con una parte de resina termoplástica LUMIGRAF, como se indicó en 2.2, prensándose a 19,6 MPa y 130°C. Realizados sus respectivos espectros alfa y analizados se obtuvieron los resultados que se indican en la tabla II.

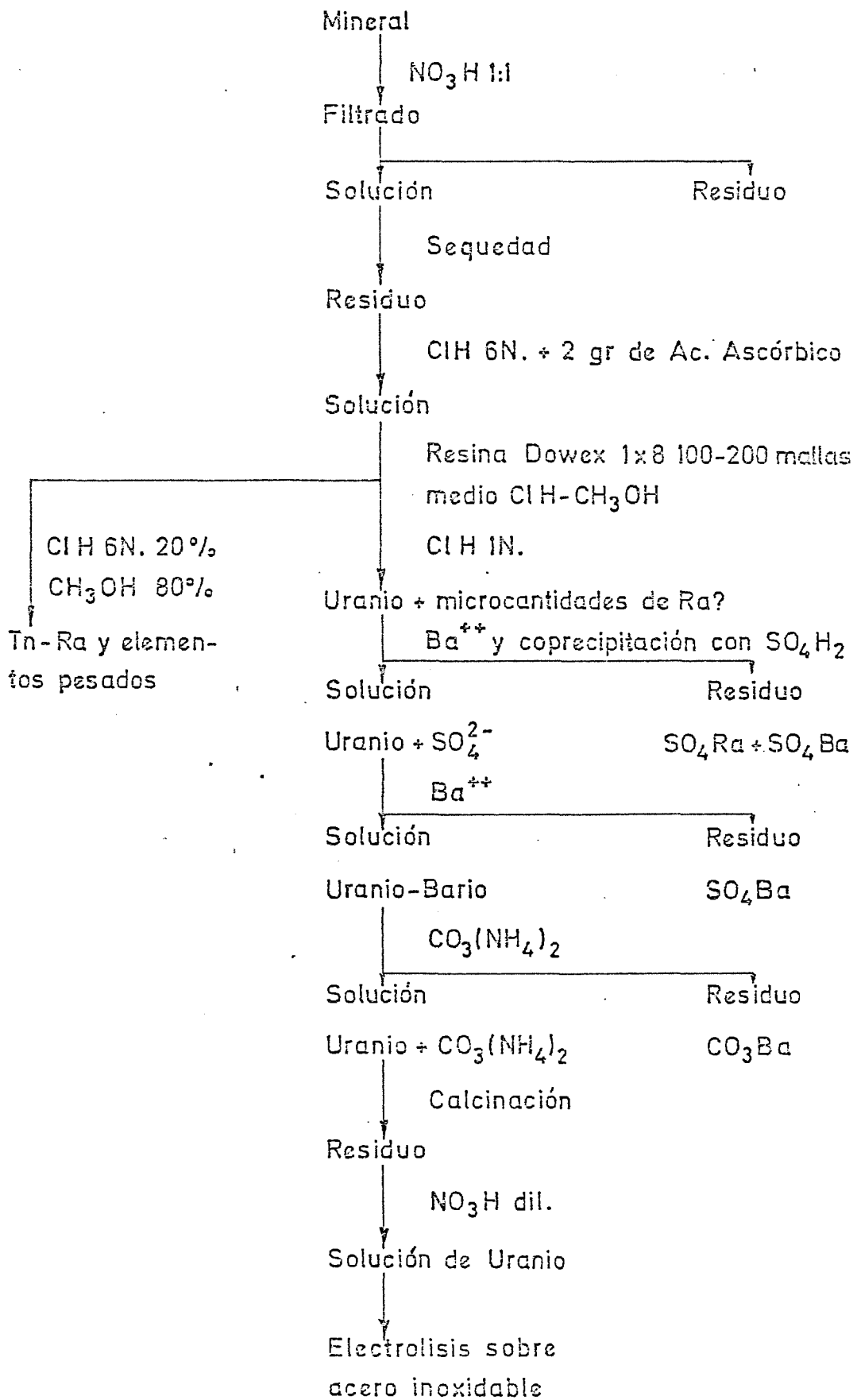


Fig. 6 - Esquema de separación selectiva del Uranio.

TABLA II

Relación de actividades entre cada nucleido emisor alfa de la serie $4n + 2$ y el ^{238}U , cabeza de la serie.

MUESTRA	$^{234}\text{U} + ^{230}\text{Th} + ^{226}\text{Ra}$	^{222}Rn	^{218}Po	^{214}Po	^{210}Po
SU - 1 (*)	2,96	1,04	0,96	0,91	0,94
SU - 2	2,60	0,88	0,93	0,97	0,90
SU - 3	2,65	0,98	0,92	0,80	0,87
SU - 4	2,52	0,89	0,82	0,90	0,84
SU - 5	3,16	1,18	1,11	1,17	1,13

* Pecblenda

De los resultados reflejados en la tabla y dado los errores que implica este método (aproximadamente el 10%), sólo se puede afirmar que está en equilibrio el SU - 1, que efectivamente, se suponía, por ser una pecblenda. Del SU - 5, en principio, y por la actividad de la suma de los nucleidos $^{234}\text{U} + ^{230}\text{Th} + ^{226}\text{Ra}$ podría decirse lo mismo, sin embargo resulta demasiado grande la actividad de los demás descendientes de la serie, incluso, teniendo en cuenta el error de medida. Es por ello que se hace necesaria una separación química, como se indicó en 3.2, siguiendo el esquema de la figura 6, para lo que se pesaron 5,00 g. de los minerales SU - 2 a SU - 5 atacándose con NO_3H (1:1) durante cuatro horas a reflujo. Con las soluciones filtradas se siguió el siguiente proceso:

- Evaporación a sequedad.
- Disolución del residuo, en ClH 6 N. (20%) y CH_3OH . (80%), una vez añadidos 4 g. de ácido ascórbico por cada 100 ml de solución. Paso de la solución por el seno de una columna de cambio iónico con resina DOWEX 1X8 (100 - 200 mallas) previamente acondicionada con el mismo medio. En estas condiciones el Uranio es cuantitativamente retenido en la resina. (14)
- Lavado de la resina para arrastrar las impurezas presentes, con la misma solución.

- Elución del Uranio con ClH 1N., acompañado de microcantidades de Ra e hijos.
- Adición al eluido de unos miligramos de Ba²⁺ y coprecipitación con SO₄H₂ diluido.
- Filtrado de la solución y tratamiento de la misma con (NO₃)₂Ba en exceso para precipitar el del SO₄H₂, filtrando nuevamente la solución y tratando el filtrado con CO₃(NH₄)₂ para eliminar el sobrante de Ba²⁺.
- La solución filtrada se llevó a sequedad, eliminando por calefacción el exceso de Carbonato Amónico.
- El residuo obtenido se trató con NO₃H y se depositó por electrolysis con cátodo giratorio, en medio FNa 0,06 N., sobre discos de acero inoxidable pulidos a espejo. (15)

De las muestras de Uranio así preparadas se realizaron espectros alfa en las mismas condiciones que con las fuentes gruesas.

El área de los picos correspondientes al ²³⁸U y ²³⁴U fué determinada por integración simple de los impulsos acumulados en el mismo número de canales para ambos, descontándose de la suma del primero los correspondientes a la fracción de cola de baja energía del segundo y del correspondiente al ²³⁵U, calculadas a partir de patrones de riqueza isotópica conocida y medidos en las mismas condiciones. (12)

Los resultados obtenidos se dan en la tabla III.

TABLA III

Relación de actividades ²³⁴U/²³⁸U y riqueza isotópica.

MUESTRA	²³⁴ U/ ²³⁸ U	²³⁸ U	²³⁵ U	²³⁴ U
SU - 2	0,83 ± 0,02	99,2 ± 1,5	0,71 ± 0,07	0,0045 ± 0,0001
SU - 3	1,00 ± 0,013	99,2 ± 0,9	0,79 ± 0,05	0,0055 ± 0,0001
SU - 4	0,936 ± 0,015	99,2 ± 1,2	0,77 ± 0,05	0,0051 ± 0,0001
SU - 5	1,08 ± 0,05	99,15 ± 2,5	0,84 ± 0,01	0,0059 ± 0,0001

A partir de estos datos y de los reseñados en la Tabla II se han calculado las actividades relativas correspondientes a los nucleidos ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , como se indicó en 3.

La tabla IV contiene estos resultados.

TABLA IV

Relación de actividades de los nucleidos ^{234}U , ^{230}Th y ^{226}Ra con respecto al ^{238}U .

MUESTRA	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra
SU - 2	0,83	0,85	0,92
SU - 3	1,0	0,76	0,89
SU - 4	0,94	0,72	0,86
SU - 5	1,08	0,93	1,15

3.2 Resultados.

En la tabla V se han listado los resultados obtenidos en los cinco minerales estudiados y con ellos a la vista se pueden sacar las conclusiones siguientes:

- El mineral SU - 1 como ya se dijo, se puede considerar en equilibrio secular, y por ello no se realizó la separación del Uranio.
- El mineral SU - 2 contiene un defecto de aproximadamente un 15% en actividad de ^{234}U , estando todos los demás descendientes en equilibrio.
- La muestra de mineral SU - 3 mantiene el equilibrio de los dos isótopos de Uranio, es decir $\text{Ac } ^{238}\text{U} - \text{Ac } ^{234}\text{U}$, mientras que existe un defecto de ^{230}Th , cuyos descendientes, puede decirse que están en equilibrio con él.
- Del mineral SU - 4 se puede deducir lo mismo que del SU - 2, es decir, el equilibrio se ha roto por el ^{234}U .

- Finalmente, el SU - 5, posee un defecto de ^{238}U , estando en equilibrio todos los descendientes con el ^{234}U .

TABLA V

Resumen de resultados

NUCLEIDO	MUESTRA: ACTIVIDADES RELATIVAS					TEORICO
	SU - 1	SU - 2	SU - 3	SU - 4	SU - 5	
^{238}U	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1
^{234}U	1	0,83	1,00	0,94	1,08	1
^{230}Th	1	0,85	0,76	0,72	0,93	1
^{226}Ra	1	0,92	0,89	0,86	1,15	1
^{222}Rn	1,04	0,88	0,98	0,89	1,18	1
^{218}Po	0,96	0,93	0,92	0,82	1,11	1
^{214}Po	0,91	0,97	0,80	0,90	1,17	1
^{210}Po	0,94	0,90	0,87	0,84	1,13	1

De todas formas, la actividad calculada para el ^{230}Th lleva consigo un error considerable, ya que al ser determinada por diferencia, éste resultará ser la suma de los errores cometidos en la determinación de las actividades del ^{234}U y del ^{226}Ra , por lo que sería más adecuado medir independientemente su actividad, una vez separado del Uranio como se indicó en el esquema de la figura 6, teniendo la precaución de añadir a la muestra un trazador de ^{228}Th , de actividad perfectamente conocida, que permitirá calcular el rendimiento de la separación directamente en un espectro alfa de fuente fina.

3.3 Anomalías

Se ha observado, en espectros realizados con fuentes preparadas por compresión en frío de una mezcla del mineral y almidón como aglomerante, que aparecen, a determinadas energías, picos análogos a los que se obtienen en espectrometría clásica de fuentes finas. Dada la mayor porosidad de estas fuentes,

con relación a las preparadas utilizando una resina termoplástica, es lógico pensar que parte del ^{222}Rn se escapa de la fuente, sobre todo si se tiene en cuenta que la cámara del espectrómetro, donde se encuentra la fuente y el detector, se halla en vacío. Sin embargo, estos picos no corresponden a la energía de éste ni de sus descendientes, sino a la de los nucleidos ^{219}Rn , ^{215}Po y ^{211}Bi , todos ellos pertenecientes a la serie $4n + 3$, de la que es cabeza el ^{235}U (figura 7), siempre presente en los minerales de Uranio y en una proporción, con respecto del ^{238}U del 0,72% aproximadamente.

En la figura 8 se ha representado el espectro de una fuente gruesa de Peblenda preparada como se acaba de indicar, por prensado en frío con almidón. En este espectro se puede observar, como se indicó en 2.3 que la forma de las líneas alfa es diferente que la de los espectros realizados con fuentes gruesas de resina termoplástica, ya que tienen una caída hacia la zona de bajas energías que puede ajustarse a una curva exponencial como se comprobó en un trabajo anterior (11), en lugar de aproximarse a una línea recta pero, igualmente pueden observarse tres pequeños picos sobre la caída de la línea correspondiente al ^{214}Po . Las energías medidas de estos tres picos son 6,617; 6,813 y 7,36 MeV, que como puede comprobarse coinciden con las líneas más intensas de los nucleidos citados ^{211}Bi , ^{219}Rn y ^{215}Po , respectivamente.

La explicación de que aparezcan estas líneas características de fuentes finas podría hallarse en el desprendimiento del ^{219}Rn , que por ser de período muy corto (3,92 segundos) su actividad es varios órdenes de magnitud mayor que la del ^{222}Rn (3,82 días de período de semidesintegración), con lo que, a pesar de encontrarse en menor proporción en el gas desprendido del mineral, su efecto se hace mucho más apreciable que el de este último, al desintegrarse según se va desprendiendo.

El hijo inmediato del ^{219}Rn es el ^{215}Po , de período aún menor ($1,83 \cdot 10^{-3}$ segundos) se desintegra igualmente con emisión de partículas alfa prácticamente en el mismo instante de su formación y por lo tanto el área del pico que aparece en el espectro deberá ser igual que la correspondiente al ^{219}Rn , que es lo que ocurre en efecto.

No pasa lo mismo con el ^{211}Bi , que por poseer un período mayor (2,16 minutos), se desintegra con una actividad aparente menor y no alcanzará el equi-

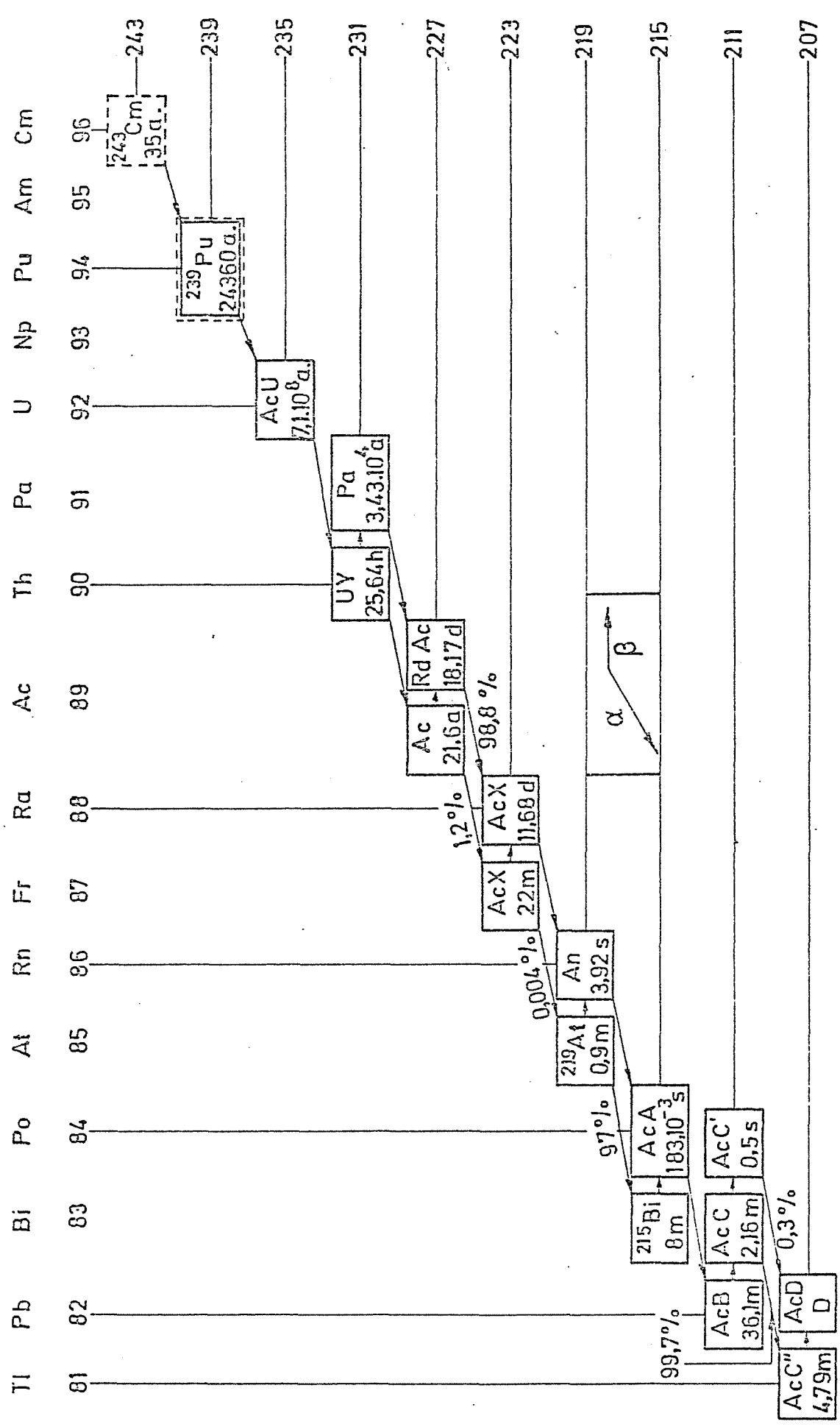


FIG. 7 - SERIE DEL ACTINIO $4n+3$.

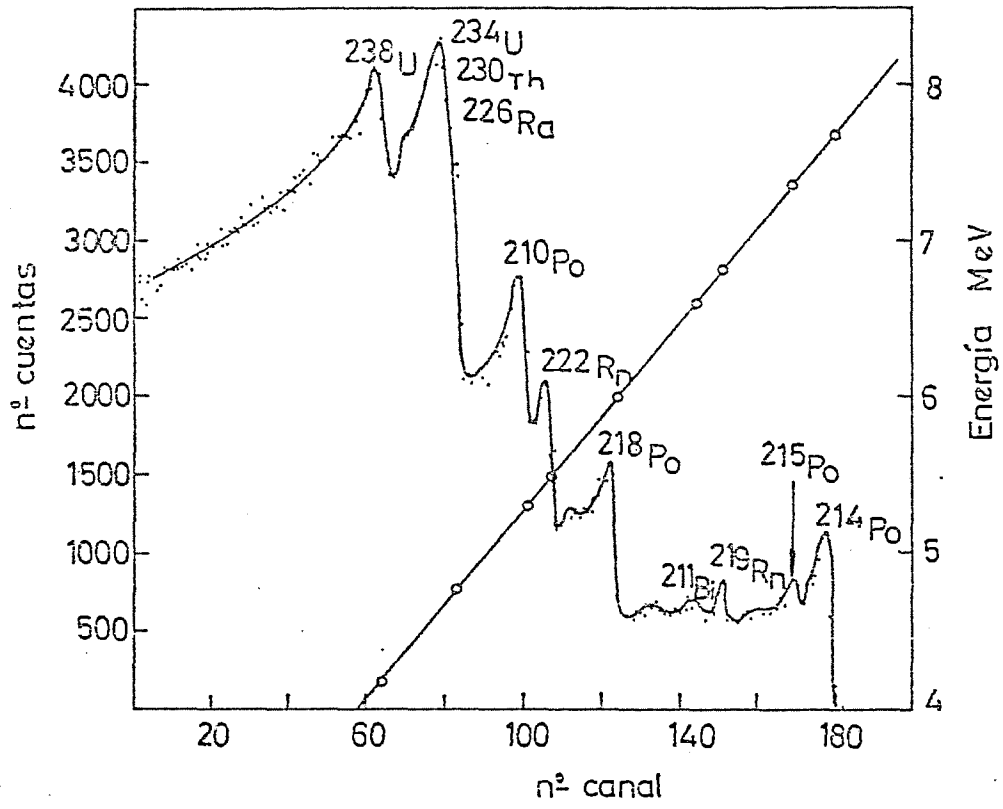


FIG. 8.- MUESTRA GRUESA DE PECBLENDA PENSADA CON ALMIDON

librio radiactivo con el ^{219}Rn y ^{215}Po , por lo que el área de su pico correspondiente deberá ser menor, cosa que igualmente puede comprobarse en el espectro.

Este efecto aquí descrito, resulta mucho más patente en minerales en desequilibrio, con gran defecto de ^{238}U . La figura 9 muestra el espectro alfa realizado con una fuente preparada por electrolisis del Uranio separado de un mineral secundario de este tipo por el procedimiento reseñado en 3.1. El fuerte desequilibrio entre el ^{234}U y el ^{238}U puede verse claramente. La relación de actividades de ambos isótopos, calculada a partir de la integración de las dos respectivas áreas de pico es de 4,12. Con este mineral se preparó una fuente gruesa, por compresión en frío a 196 MPa de una mezcla a partes iguales en peso del mineral molido y tamizado a 200 mallas y almidón en polvo, cuyo espectro alfa es el representado en la figura 10, en el que al mismo tiempo de comprobarse la pequeñez del escalón correspondiente al ^{238}U , puede verse lo aumentados que resultan los picos pertenecientes al ^{219}Rn y sus descendientes.

Los espectros de las figuras 11 y 12 son los realizados con la misma muestra pero después de calentada en vacío a una temperatura de unos 500°C ., durante 5 y 13 horas respectivamente. La relación de alturas de los picos correspondientes al ^{219}Rn e hijos con respecto al máximo del escalón correspondiente al ^{234}U , en el primer espectro se ha reducido prácticamente a la mitad comparado con la misma relación en el espectro de la fuente no calentada. Después de 13 horas de calentamiento en vacío, esta relación sigue siendo prácticamente la misma que después de 5 horas.

Parece ser que con el tratamiento térmico hubiera disminuido el grado de permeabilidad de la fuente para el desprendimiento del gas, y esta disminución se detuviera después de un determinado tiempo de calentamiento, evidentemente inferior a 5 horas.

La comprobación de que efectivamente los picos anómalos que aparecían en estos espectros se debía a la desintegración del ^{219}Rn fuera de la masa de la fuente se realizó recubriendo la superficie de ésta con un papel de celulosa, que dada su porosidad permite el paso de los gases pero impide que sea atravesado por la mayor parte de las partículas alfa. En la figura 13 se ha representado el espectro obtenido con la fuente así dispuesta. Efectivamente se ve que

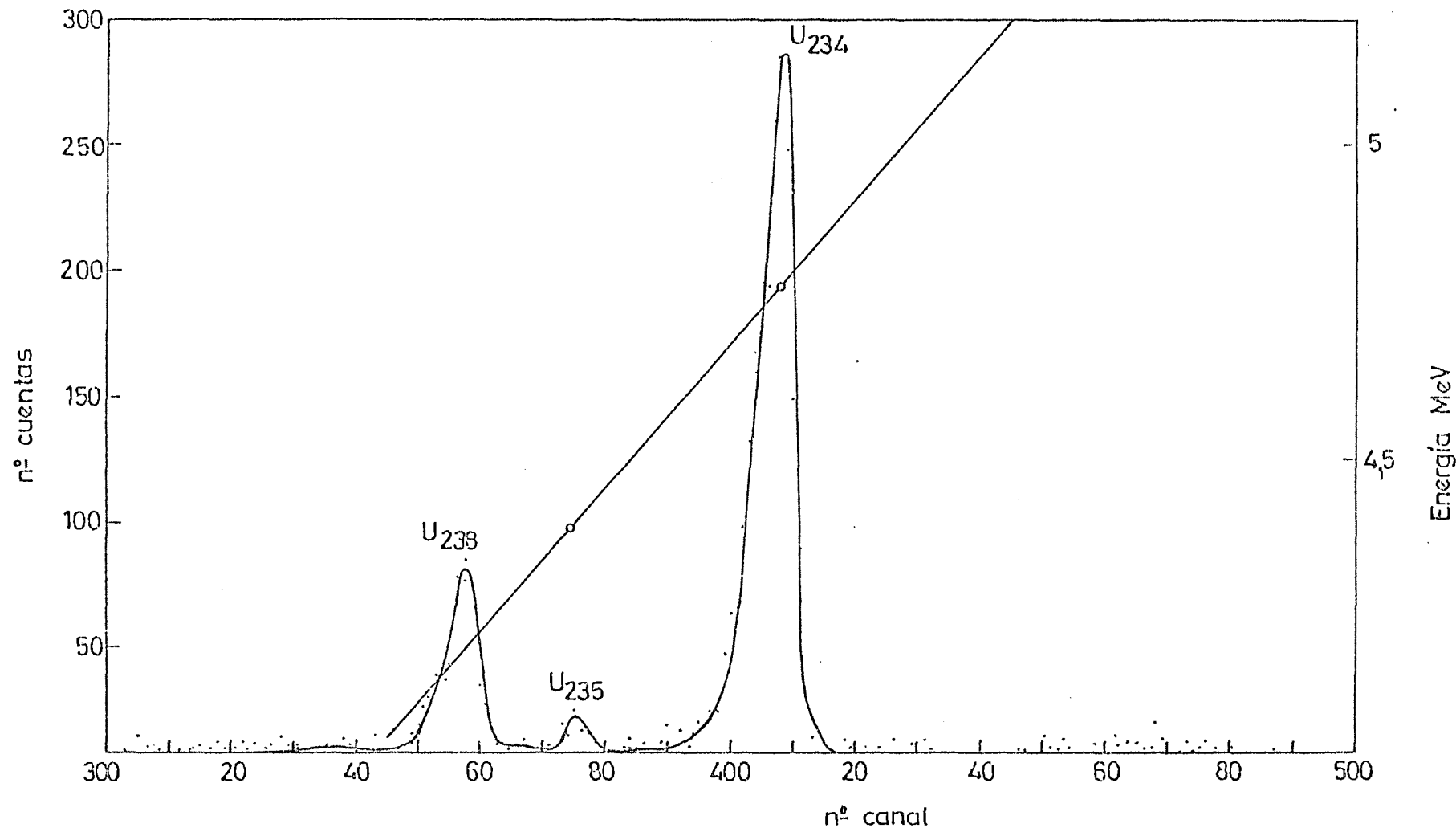


FIG. 9

MUESTRA DE MINERAL SECUNDARIO, PREPARADA POR ELECTROLISIS

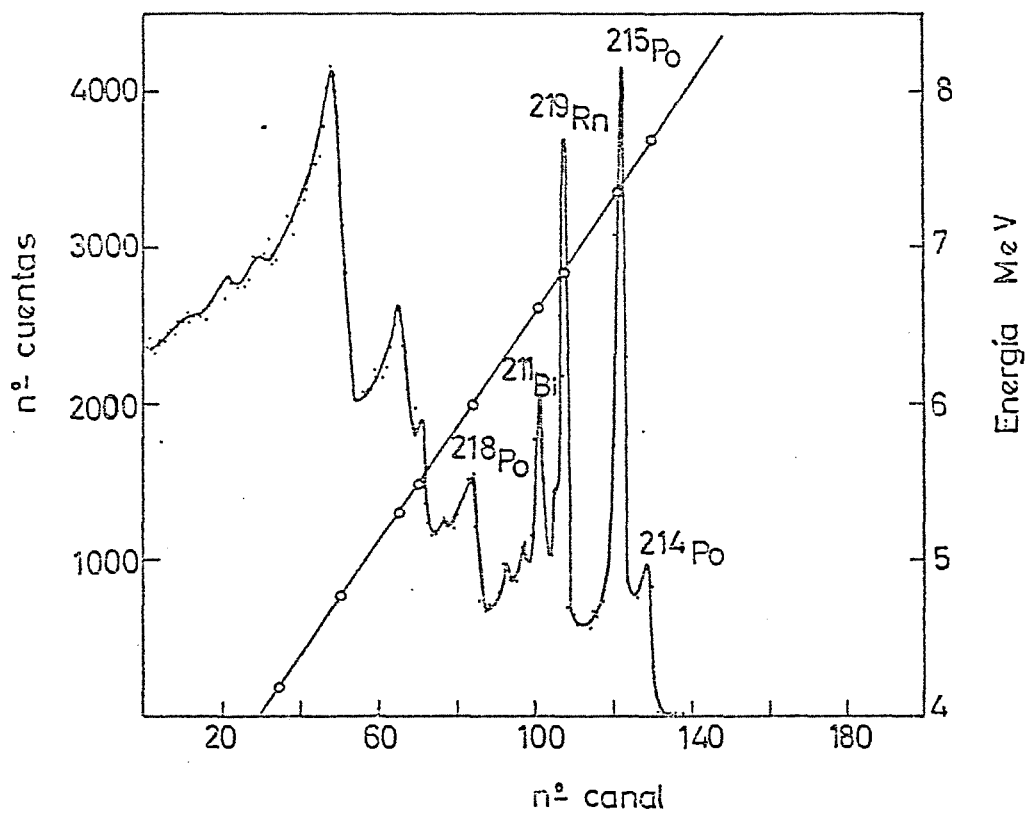


FIG. 10.- MUESTRA GRUESA DE MINERAL SECUNDARIO

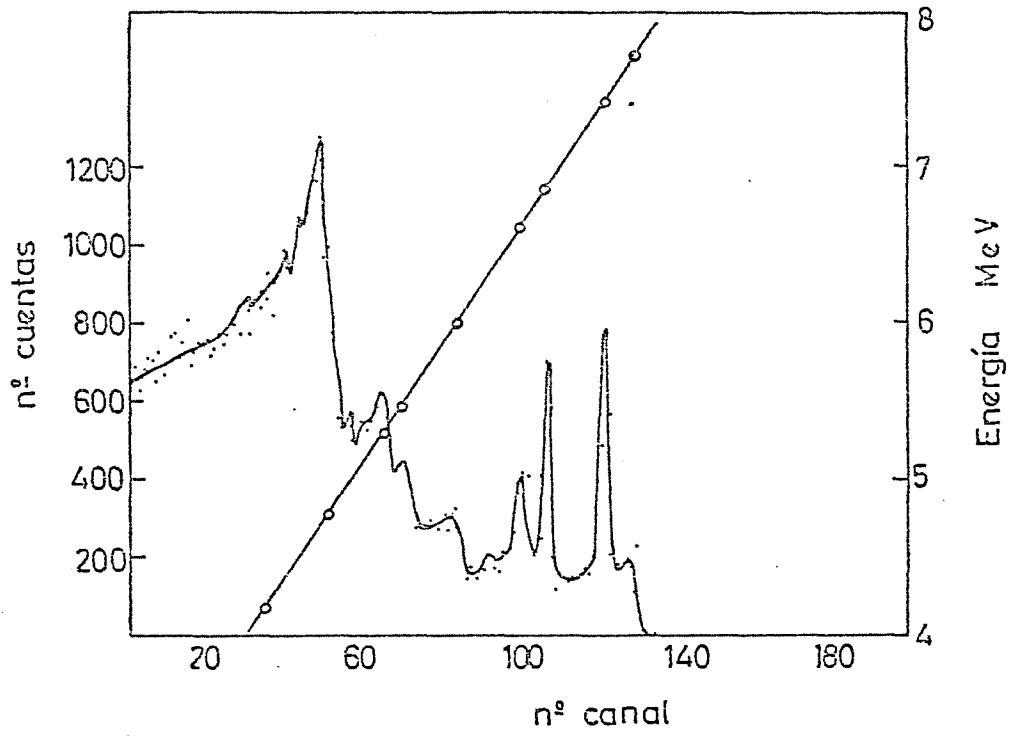


FIG. 11

MUESTRA GRUESA DE MINERAL SECUNDARIO CALENTADA DURANTE
5 HORAS

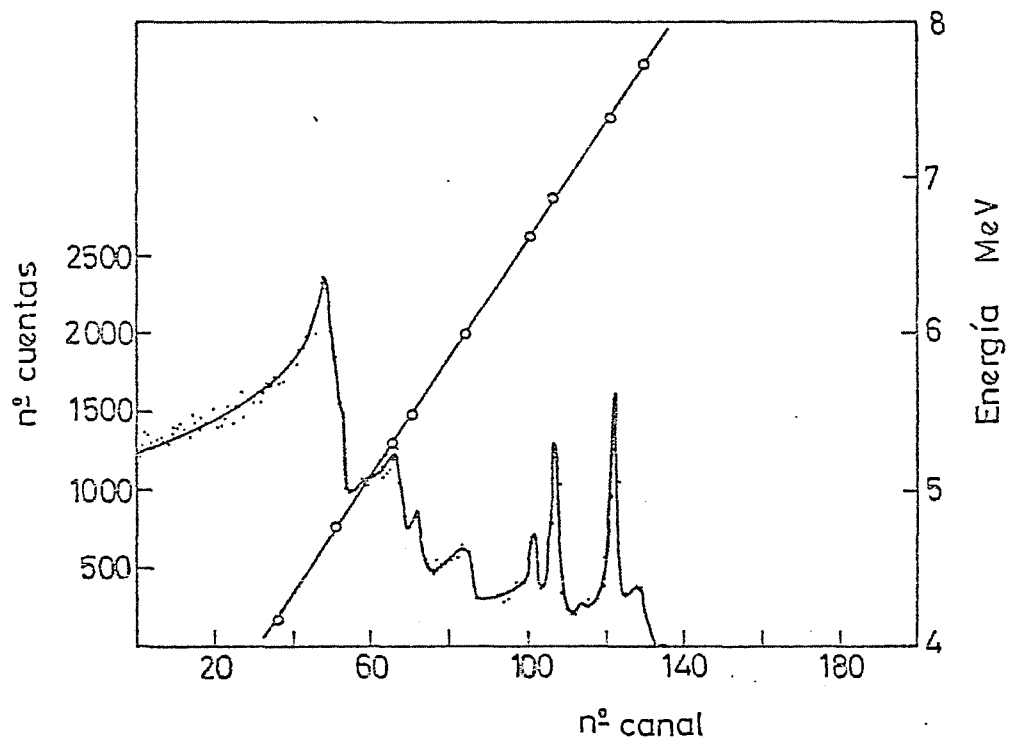


FIG. 12

MUESTRA GRUESA DE MINERAL SECUNDARIO CALENTADA DURANTE
13 HORAS

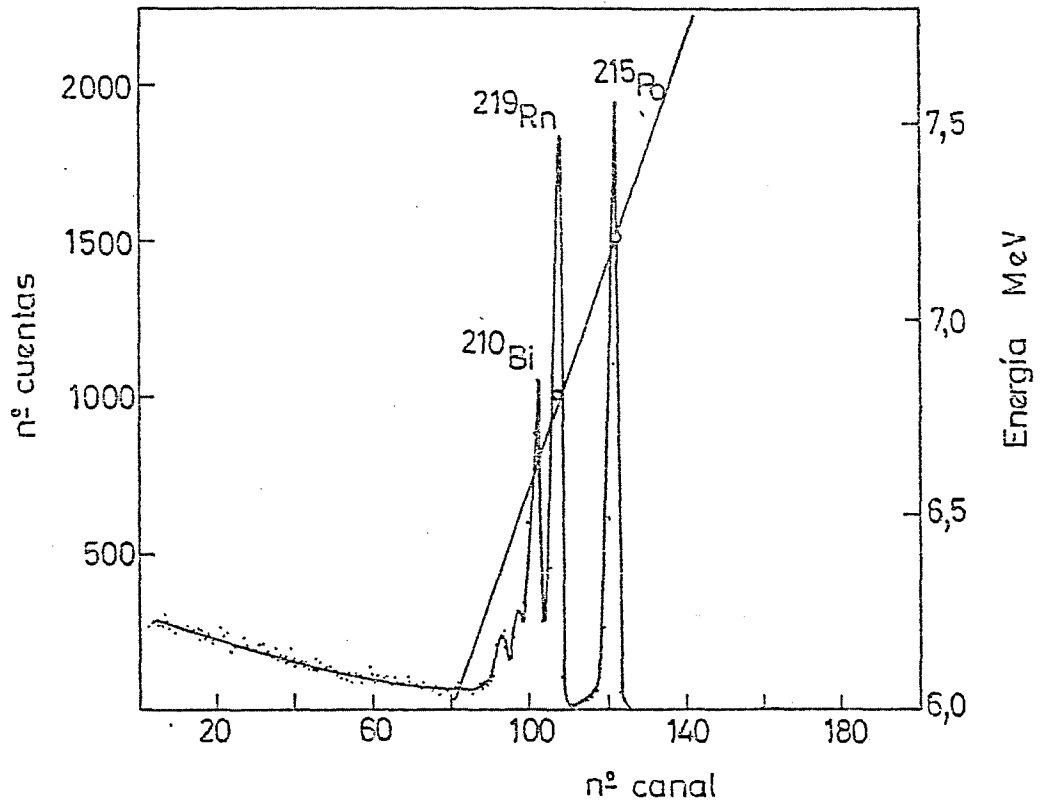


FIG. 13.- MUESTRA GRUESA DE MINERAL SECUNDARIO

la mayor parte del espectro debido a la fuente gruesa ha desaparecido, mientras que los picos correspondientes a la desintegración del ^{219}Rn , ^{215}Po y ^{211}Bi aparecen nítidamente, e incluso se aprecian claramente las líneas de estructura fina del ^{219}Rn y del ^{211}Bi a las energías 6,547; 6,417 y 6,273 MeV.

Por otra parte, se ha realizado un espectro de la misma fuente gruesa, pero esta vez, recubierta con una fina película de "MYLAR", que permite ser atravesada por las partículas alfa, pero es prácticamente impermeable a los gases. La figura 14 muestra este espectro, en el que, a pesar de la deformación y desplazamiento de las diversas líneas hacia zonas de menor energía, debido a la película interpuesta, se comprueba que los picos correspondientes a la desintegración del gas han desaparecido casi por completo.

Evidentemente la aparición de estas líneas clásicas de fuentes espectrométricas finas son un inconveniente para la descomposición de un espectro, por lo que, o bien antes de realizarse deben ser eliminados por un procedimiento gráfico o analítico, o bien no utilizar muestras de este tipo poroso y sí las obtenidas en caliente con resina termoplástica, que dada su impermeabilidad para los gases impiden que aparezcan estas anomalías.

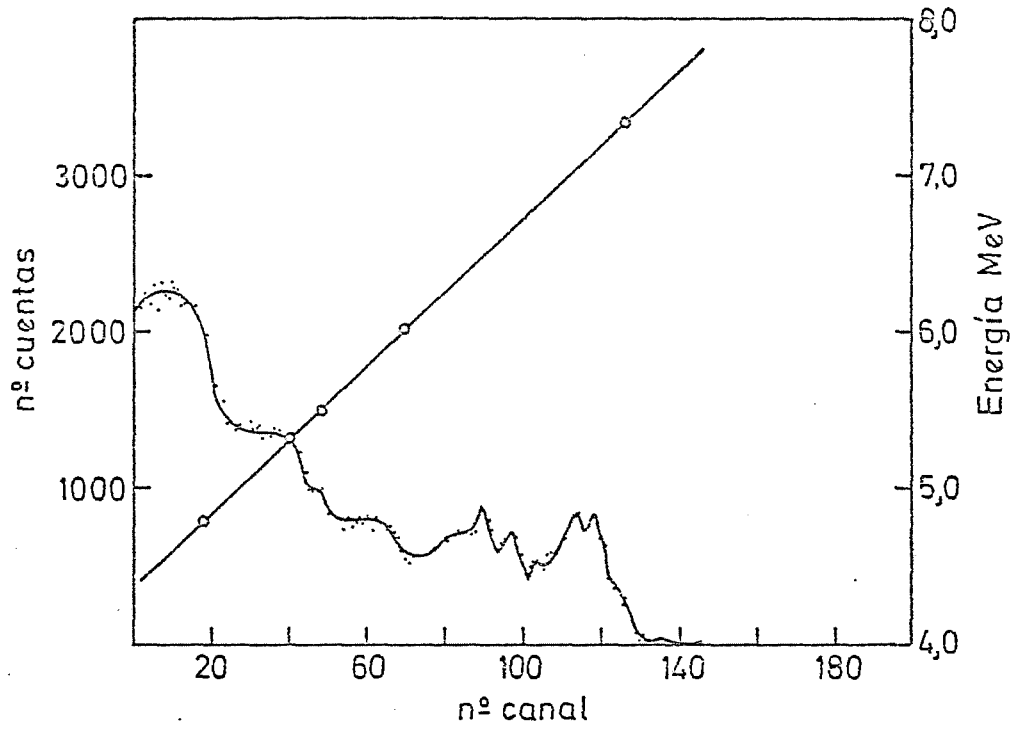


FIG. 14

MUESTRA GRUESA DE MINERAL SECUNDARIO RECUBIERTA CON MYLAR

4.- BIBLIOGRAFIA

- 1.- DE PEDRO HERRERA, F., Química e Industria, Vol 20 nº 3 (1974).
- 2.- COULOMB, R., GUIRARD, Ph. y GOLDSZTEIN, M. Repport CEA-R. 2437 (1964).
- 3.- BATEMAN, H., Proc. Cambridge Phil. Soc., 16,423 (1910).
- 4.- CHERDYNSTEV, V.V. Trans 3rd. Sess. Comm, Moscow (1955).
- 5.- ROSHOLT, J.N, EMILIANI, C., GEISS, J., KOCZKY, F.F. y WANGERSKY, P.J., J. Geol., 69, (1961).
- 6.- THURBER, D.L., J. Geophys. Res. 67, (1962).
- 7.- THURBER, D.L., Conf. on Geochronology of Marine and Fluvial Sediments, Oak Ridge Tenn. (1963).
- 8.- GUERY, M., Note CEA-N. 1145 (1969).
- 9.- GHIORSO, A., JAFFEY, A.H., IV-14 B, part II, I^a ed. G.T., SEABORG, J.J., KATZ y MANNING, W.M., Mc Graw-Hill Company Inc., New York, (1949).
- 10.- MILLER, G.L., GIBSON, W.M., y DONOVAN, P.F, Ann. Rev. of Nuclear Sci., 12, (1962).
- 11.- ACEÑA, M.L., GARCIA TORAÑO, E. y RIVERO, M^a C. "Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas. I. Aplicación a la determinación de emisores alfa" Informe J.E.N. nº 364 Madrid (1977).
- 12.- KHAN, A.H. y ACEÑA, M.L., Radiochem. Acta 18 (1972).
- 13.- TORMO FERRERO, M.J., "Determinación de equilibrios en minerales de Uranio por espectrometría alfa". Informe J.E.N. nº 346.
- 14.- TERA, F. y KORKISCH, J. Anal. Chim. Acta, 25 (1961).
- 15.- ACEÑA, M.L., Procedimiento de preparación de muestras para espectrometría alfa desarrollado en el Grupo de Química del Plutonio de la Dirección de Química e Isotopos. I coloquio Hispano - Francés sobre Tratamiento de Combustibles Irradiados y de la Química del Plutonio. París (1967).

AGRADECIMIENTO

Los autores desean expresar su agradecimiento al Sr. García-Toraño, quién aportó los programas de cálculo que han sido utilizados en la descomposición de los espectros realizados.

Igualmente, agradecen al Sr. Peñalba Delgado la preparación de las numerosas muestras que han sido necesarias en éste estudio.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear, Unidad de Metrología, Madrid.

"Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas. II posibilidades de aplicación al estudio de equilibrios radiactivos en minerales uraníferos".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

Se estudia un método, por espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas, para la determinación de las actividades de los nucleidos en filiación de la serie $4n + 2$ del Uranio.

Este método ha sido aplicado a distintos minerales de Uranio, observándose diferentes estados de equilibrio radiactivo en ellos.

Aparecen ciertas anomalías en los espectros obtenidos con muestras preparadas por compresión en frío, debidas al desprendimiento y posterior desintegración del ^{219}Rn y sus descendientes, que hay que tener en cuenta en el cálculo de las intensidades en las líneas de los espectros.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear, Unidad de Metrología, Madrid.

"Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas. II posibilidades de aplicación al estudio de equilibrios radiactivos en minerales uraníferos".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

Se estudia un método, por espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas, para la determinación de las actividades de los nucleidos en filiación de la serie $4n + 2$ del Uranio.

Este método ha sido aplicado a distintos minerales de Uranio, observándose diferentes estados de equilibrio radiactivo en ellos.

Aparecen ciertas anomalías en los espectros obtenidos con muestras preparadas por compresión en frío, debidas al desprendimiento y posterior desintegración del ^{219}Rn y sus descendientes, que hay que tener en cuenta en el cálculo de las intensidades en las

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear, Unidad de Metrología, Madrid.

"Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas. II posibilidades de aplicación al estudio de equilibrios radiactivos en minerales uraníferos".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

Se estudia un método, por espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas, para la determinación de las actividades de los nucleidos en filiación de la serie $4n + 2$ del Uranio.

Este método ha sido aplicado a distintos minerales de Uranio, observándose diferentes estados de equilibrio radiactivo en ellos.

Aparecen ciertas anomalías en los espectros obtenidos con muestras preparadas por compresión en frío, debidas al desprendimiento y posterior desintegración del ^{219}Rn y sus descendientes, que hay que tener en cuenta en el cálculo de las intensidades en las líneas de los espectros.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear, Unidad de Metrología, Madrid.

"Espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas. II posibilidades de aplicación al estudio de equilibrios radiactivos en minerales uraníferos".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

Se estudia un método, por espectrometría alfa de fuentes radiactivas gruesas, para la determinación de las actividades de los nucleidos en filiación de la serie $4n + 2$ del Uranio.

Este método ha sido aplicado a distintos minerales de Uranio, observándose diferentes estados de equilibrio radiactivo en ellos.

Aparecen ciertas anomalías en los espectros obtenidos con muestras preparadas por compresión en frío, debidas al desprendimiento y posterior desintegración del ^{219}Rn y sus descendientes, que hay que tener en cuenta en el cálculo de las intensidades en las líneas de los espectros.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear. Unidad de Metrología, Madrid.

"Alpha spectrometry of thick sources. II application to the study of radioactive equilibria in uranium ores".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

A method for determining nuclide activities in $4n + 2$ uranium series using alpha spectrometry of thick sources is described.

This method has been applied to several uranium ores, showing different states of radioactive equilibria.

The spectra from samples prepared by cold compression show some anomalies, due to the evolution and later decay of ^{219}Rn and daughters. This phenomenon must be taken in consideration when computing spectra line intensities.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear. Unidad de Metrología, Madrid.

"Alpha spectrometry of thick sources. II application to the study of radioactive equilibria in uranium ores".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

A method for determining nuclide activities in $4n + 2$ uranium series using alpha spectrometry of thick sources is described.

This method has been applied to several uranium ores, showing different states of radioactive equilibria.

The spectra from samples prepared by cold compression show some anomalies, due to the evolution and later decay of ^{219}Rn and daughters. This phenomenon must be taken in consideration when computing spectra line intensities.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear. Unidad de Metrología, Madrid.

"Alpha spectrometry of thick sources. II application to the study of radioactive equilibria in uranium ores".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

A method for determining nuclide activities in $4n + 2$ uranium series using alpha spectrometry of thick sources is described.

This method has been applied to several uranium ores, showing different states of radioactive equilibria.

The spectra from samples prepared by cold compression show some anomalies, due to the evolution and later decay of ^{219}Rn and daughters. This phenomenon must be taken in consideration when computing spectra line intensities.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.

J. E. N. 393

Junta de Energía Nuclear. Unidad de Metrología, Madrid.

"Alpha spectrometry of thick sources. II application to the study of radioactive equilibria in uranium ores".

ACEÑA, M.L.; TORMO, M.J. (1977) 32 pp. 14 figs. 15 refs.

A method for determining nuclide activities in $4n + 2$ uranium series using alpha spectrometry of thick sources is described.

This method has been applied to several uranium ores, showing different states of radioactive equilibria.

The spectra from samples prepared by cold compression show some anomalies, due to the evolution and later decay of ^{219}Rn and daughters. This phenomenon must be taken in consideration when computing spectra line intensities.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Alpha spectroscopy. Radioactivity. Uranium 234. Uranium 238. Uranium minerals. Radioactive materials. Equilibrium. Sample preparation. Radiation sources. Electrodeposition. Semiconductor detectors. Ion exchange.