

J. E. N. 442

Sp ISSN 0081-3397

DETERMINACION DE ISOTOPOS DE
URANIO POR ESPECTROMETRIA ALFA

por

Aceña Berrenechea, Miguel L.
García-Toraño, Eduardo.

JUNTA DE ENERGIA NUCLEAR

MADRID, 1979

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES

B11

URANIUM ISOTOPES
ALPHA SPECTROSCOPY
MEASURING METHODS

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 LAEA-INIS-12 (INIS: Manual de Indización) y LAEA-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 Enero de 1979.

DETERMINACION DE ISOTOPOS DE URANIO POR ESPECTROMETRIA ALFA.

1.- INTRODUCCION

La determinación del contenido isotópico en uranio se realiza, generalmente, por espectrometría de masas. Se ha utilizado también la espectrometría alfa, aunque con resultados menos satisfactorios (1, 2). Sin embargo este último procedimiento puede resultar interesante cuando no se requiera una precisión muy alta, dado que el equipo necesario para su realización es más económico y, hoy en día, forma parte de cualquier laboratorio de radiometría.

Los isótopos de uranio que normalmente se encuentran en la reelaboración de elementos combustibles son: ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U que con la excepción del ^{236}U , existen también en el uranio natural (minerales uraníferos, aguas fluviales y marinas, corales, etc.). Todos estos isótopos son emisores de partículas alfa, por lo que la determinación de las intensidades de las líneas alfa en el espectro de una fuente de uranio permitirá conocer la concentración de cada uno de ellos en la misma, dado que

$$\frac{P_i}{T_i - \sum A_i} = K \quad (1.1)$$

donde P_i es la fracción de átomos de cada isótopo en la muestra, T_i su respectivo período de semidesintegración y $\sum A_i$ la suma de todas las intensidades de las líneas alfa de estructura fina del isótopo i . K es una constante de proporcionalidad que depende de la geometría del sistema de recuento, retrodispersión, etc. y que se puede considerar igual para los cuatro isótopos, al ser medidos conjunta y simultáneamente. Con estas relaciones y la condición $\sum P_i = 100$ se tiene un sistema de ecuaciones determinado, que permite el cálculo de los porcentajes buscados.

El problema, por tanto, se reduce a la medida, lo más precisa posible

de las intensidades de las líneas en el espectro. Sin embargo esta medida presenta tantas más dificultades cuanto más próximas estén las líneas; es decir, cuando sus respectivas energías sean valores más parecidos; dado que la resolución de un espectro realizado con detectores de semiconductor es limitada y ello hace que las líneas se interfieran, en mayor o menor grado.

La resolución en energías de una línea alfa, definida como la anchura de la misma a la mitad de su altura y expresada, bien en unidades de energía bien como porcentaje con respecto a la energía de la línea, se debe a diferentes causas que se superponen cuadráticamente (3):

$$\Delta^2 = (\Delta v)^2 + (\Delta n)^2 + (\Delta g)^2 + (\Delta s)^2 + (\Delta A)^2$$

en donde

Δ = anchura de la línea a la mitad de su altura

Δv = anchura debida a la dispersión en el número de colisiones nucleares

Δn = anchura debida a las fluctuaciones en el número de pares electrón-hueco formados

Δg = anchura debida al ruido electrónico

Δs = anchura debida al espesor de la fuente

ΔA = anchura debida a la zona muerta o ventana del detector.

Los tres últimos parámetros son los únicos sobre los que se puede actuar, buscando una optimización de la resolución, pues tanto Δv como Δn son dispersiones inherentes al fenómeno de interacción de las partículas alfa con la materia.

Por otra parte, Δv , Δn y Δg hacen que las líneas se ensanchen de una forma simétrica (gaussiana) a ambos lados del máximo o energía media de la partícula, no ocurriendo lo mismo con Δs y ΔA que, aparte de un ensanchamiento, proporcionan un desplazamiento del máximo hacia zonas de energía más bajas y una cola de baja energía que se prolonga hasta $E = 0$. A esta cola también contribuyen otras causas; mencionadas por Chetham-Strode (4); intrínsecas del propio detector, tales como captura

de electrones en los bordes de dislocación durante tiempos largos comparados con las constantes de tiempo del amplificador, recombinación de portadores, defectos en la zona muerta e, incluso, apilamiento de impulsos si las fuentes son excesivamente activas. Por todo ello, la forma de una línea alfa obtenida con un espectrómetro de semiconductor es la de una campana asimétrica que no es fácil aproximar a ninguna curva sencilla, dada la diversidad de parámetros que en ella intervienen, lo que impide calcular analíticamente la intensidad (área encerrada bajo la curva) por integraciones sucesivas de todas las líneas que componen el espectro total.

Según G. Ammsel (5), la dispersión estadística de la amplitud de los impulsos debidos a una partícula alfa monocinética que pierda toda su energía en la barrera libre de portadores de un detector de semiconductor, es independiente de la energía de la partícula. Aunque Siffert y Coche (3) concluyen que esto no es rigurosamente cierto, sino que la anchura de las líneas aumenta con la energía; porque tanto v como n aumentan con ella: lo cierto es que este aumento es pequeño y menor aún, por lo tanto, el de Δv y Δn , y puede comprobarse que, salvo en espectros realizados con muy buena resolución ($\Delta < 12$ keV), en intervalos entre líneas de no gran diferencia de energías, las variaciones que pudiera haber entre las formas de las mismas, quedan enmascaradas por las fluctuaciones estadísticas y de deriva. Por ello se puede considerar, sin cometer un error apreciable, que las líneas alfa de un espectro realizado con un detector de tal tipo tienen todas la misma forma.

Patigny y col. (6) han estudiado experimentalmente la forma de línea de espectros obtenidos con diferentes fuentes radiactivas y llegan a la conclusión de que, si bien la resolución Δ varía según el método utilizado para prepararlas con un espesor determinado, la cola de baja energía, a partir de $E/E_0 = 0,8$ hasta $E/E_0 = 0$ se puede suponer estadísticamente constante e igual para todas, siendo el número de impulsos que contiene entre estos límites de un 10 % del total de los registrados (E/E_0 es la relación entre la energía del punto considerado en el espectro y la energía correspondiente al máximo de la línea).

Las experiencias de Patigny han sido repetidas con detectores más modernos de la firma ORTEC y, como se verá más adelante, el porcentaje de cola obtenido entre las energías relativas de 0,8 y 0 ha resultado inferior al encontrado por él; dependiendo, además, del tipo de detector utilizado. Por otra parte, se ha comprobado experimentalmente que en el intervalo de energías relativas 0,98 - 0, la forma de cola de baja energía se ajusta con bastante aproximación a una curva del tipo

$$Y = A + B \cdot e^{Cx}$$

donde A, B y C son constantes empíricas, Y es el contenido de cada canal del analizador de impulsos donde se ha almacenado el espectro y x el número del canal respectivo de la cola de baja energía en el citado intervalo.

En la figura 1 se ha representado el espectro del ^{210}Po realizado con una resolución de 56 keV, en escala semilogarítmica, y en él puede comprobarse que la zona de energías inferiores a 5,225 MeV se puede ajustar a la ecuación

$$Y = 6 + 2,76 \cdot e^{0,046 x}$$

Basándose en estos resultados experimentales puede descomponerse un espectro alfa de varias líneas interferidas unas con otras, con tal de disponer de una línea monoenergética no interferida, en las zonas correspondientes a su energía relativa de 0,97 - 1,015. Esta línea monoenergética puede ser perteneciente al espectro alfa o, si no la hubiera, perteneciente a un nucleido agregado previamente a la fuente que se va a medir (p.e. ^{210}Po).

En trabajos anteriores (2, 7) se ha deducido que las intensidades de las líneas que integran un espectro complejo, si una de ellas se conoce sin interferencias, se obtienen haciendo mínima la expresión

$$\sum_x W_x (R_1 Y_{x-a} + R_2 Y_{x-b} + R_3 Y_{x-c} + \dots - Y_x)^2$$

(1. 2)

Expresión en la que las R_i son las razones entre las intensidades de cada línea interferida y la de la línea patrón sin interferir; a, b, c, \dots son las distancias, contadas en canales, entre cada línea y la patrón, Y_{x-i} es el contenido de impulsos acumulados en los correspondientes canales de la línea patrón e Y_x es el contenido del canal x correspondiente al espectro; W_x es el peso estadístico asignado al contenido de cada canal, al que se da el valor aproximado

$$W_x = 1/2 Y_x$$

Admitiendo que la distribución de los impulsos en cada canal obedece a la ley de Poisson (o de Gauss) y que dicho peso estadístico es inverso a la varianza.

El sistema de ecuaciones que resulta derivando la expresión (1. 2) respecto a cada una de las R_i e igualando a cero las derivadas obtenidas, puede resolverse matricialmente, obteniéndose:

$$\begin{pmatrix} R_1 \\ R_2 \\ R_3 \\ \cdot \\ \cdot \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sum W_x Y_{x-a}^2 & \sum W_x Y_{x-b} Y_{x-a} & \sum W_x Y_{x-c} Y_{x-a} \\ \sum W_x Y_{x-a} Y_{x-b} & \sum W_x Y_{x-b}^2 & \sum W_x Y_{x-c} Y_{x-b} \\ \sum W_x Y_{x-a} Y_{x-c} & \sum W_x Y_{x-b} Y_{x-c} & \sum W_x Y_{x-c}^2 \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} \sum W_x Y_x Y_{x-a} \\ \sum W_x Y_x Y_{x-b} \\ \sum W_x Y_x Y_{x-c} \\ \cdot \\ \cdot \end{pmatrix} \quad (1. 3)$$

Conocidas las R_i y la intensidad de la línea patrón A_{p0} , por suma del contenido de los canales que la integran, se determinan las intensidades de todas las demás líneas, A_{pi} , simplemente teniendo en cuenta que

$$A_{pi} = R_i \cdot A_{p0}$$

Este método de determinación de intensidades de línea tiene el inconveniente de que al trabajar con histogramas en lugar de con curvas conti-

nuas, los máximos de las líneas no están situados todos en la misma posición relativa con relación al canal respectivo, pudiendo diferir en una fracción de él y, por ello, diferir ligeramente la forma de cada línea con respecto a la del patrón.

Aunque se han descrito anteriormente procedimientos para subsanar este inconveniente (2, 7), si se realizan los espectros alfa con suficiente definición, es decir, repartiendo el espectro en el mayor número de canales posible, los errores cometidos son prácticamente despreciables, considerando la precisión del método en general; por eso, en el desarrollo de las medidas aquí descritas, tal problema no se ha tenido en cuenta.

1. 2.- Aplicación al caso de los isótopos de uranio

En el caso de la determinación de intensidades de las líneas alfa en un espectro de isótopos de uranio, el método que se acaba de describir es de muy difícil aplicación, a causa de la enorme complejidad de la estructura fina del ^{235}U , de núcleo impar. En la tabla I se han representado las líneas principales y su intensidad relativa, juntamente con los períodos de semidesintegración, de los isótopos ^{238}U , ^{236}U , ^{235}U y ^{234}U que, como ya se indicó, son los que se pretende determinar en el trabajo presente.

Puede comprobarse a la vista de esta tabla, que el elevado número de líneas correspondientes al ^{235}U harían que el método de ajuste por mínimos cuadrados resultara inadecuado para el cálculo de sus respectivas intensidades, al mismo tiempo que se necesitaría trabajar con un espectrómetro de una resolución difícil de alcanzar con detectores de semiconductor para poder resolver todas las líneas de estructura fina del ^{235}U .

Sin embargo, se observa en la estructura de este nucleido que si se acota un intervalo de energías alrededor de la línea más intensa, α_{198} , de

unos 100 keV por debajo de esta línea hasta unos 50 keV de energía superior y se suman las intensidades en él comprendidas, se obtiene, aproximadamente, un 84,5 % del espectro total; pero, además, suponiendo que las líneas α_{224} y α_{230} , separadas solamente por 6 keV de energía, no se pueden resolver con los espectrómetros de este tipo y se presentan como una sola línea, ligeramente deformada, se tendrá que la razón de las intensidades $\alpha_{198} / \alpha_{(224 + 230)}$ es muy próxima a las razones de las intensidades de línea $\alpha_0 / \alpha_{50 \pm 2}$ de los otros isótopos ^{238}U , ^{236}U y ^{234}U ; lo que significa que en este intervalo de 150 keV, los espectros alfa de los cuatro isótopos tendrán una forma muy parecida, sobre todo si están obtenidos con un espectrómetro que proporcione una resolución no demasiado alta.

Esta hipótesis puede comprobarse comparando los espectros que están representados en las figuras 2 y 3. El primero pertenece a una muestra de uranio enriquecido, de composición; en átomos por ciento; de 94,539 de ^{238}U ; 0,015 de ^{236}U ; 5,383 de ^{235}U y 0,0592 de ^{234}U , obtenido con un detector de 25 mm² de superficie activa, con una resolución de unos 25 keV, mientras que el otro, perteneciente a la misma muestra, lo ha sido con un detector de 450 mm² de superficie y resolución de unos 70 keV. Se comprueba que cuando es peor la resolución, la forma de las líneas correspondientes a los isótopos ^{238}U , ^{236}U , ^{235}U y ^{234}U resulta ser prácticamente análoga.

Esto hace pensar que trabajando con detectores que proporcionen una resolución del orden de los 80 keV se podría, en principio, aplicar el método de determinación de intensidades descrito más arriba, pudiéndose utilizar como línea patrón la correspondiente al conjunto del espectro del ^{234}U , normalmente la más intensa.

En el presente trabajo se describen los resultados obtenidos desarrollando estas hipótesis y el método de descomposición de espectros alfa por mínimos cuadrados descrito, aplicándolo a una serie de muestras de uranio con diferente riqueza isotópica.

Tabla I

Energía, intensidades de las líneas alfa y períodos de semidesintegración de los isótopos ^{238}U , ^{236}U , ^{235}U y ^{234}U .

Nucleído nivel	Energía MeV	Intensidad %	Referencia	Período años
^{238}U			(8)	$4,51 \cdot 10^9$
0	4,195	77		
48	4,147	23		
160	4,035	0,2		
^{236}U			(9)	$2,39 \cdot 10^7$
0	4,493	74		
50	4,443	26		
160	4,333	0,3		
^{235}U			(10)	$7,1 \cdot 10^8$
0	4,592	< 1		
14	4,578	1,5		
42	4,550	3		
70	4,522	< 1		
96	4,496	1		
154	4,438	3		
166	4,426?	1,5		
180	4,412	2		
198	4,394	62		
224	4,368	6		
230	4,362	11		
272	4,320	3		
378	4,214	5,5		
^{234}U			(10)	$2,47 \cdot 10^5$
0	4,774	72,5		
51	4,722	27,5		
172	4,601	0,37		

2.- PARTE EXPERIMENTAL

2. 1.- Equipo empleado

Se ha utilizado un espectrómetro integrado por los elementos siguientes:

Fuente de alimentación ORTEC: 401-A/402-A

Fuente de alta tensión ORTEC: 428

Preamplificador sensible a carga ORTEC. 109-A

Amplificador ORTEC: 410

Analizador de impulsos SPECTRO-ZOOM de la firma SEIN, de 200 canales de memoria, seleccionables en cuatro grupos de 50 y 4000 canales en convertidor.

Los resultados son extraídos por medio de un teletipo, TELEPRINT, provisto de cinta perforada.

El detector empleado para las determinaciones de riqueza isotópica en uranio ha sido ORTEC, de la serie R, de 450 mm² de superficie activa.

La realización de los diferentes cálculos necesarios ha sido llevada a cabo por medio de un calculador PDP-11/45 de DIGITAL, que admite programas en lenguaje BASIC-PLUS.

2. 2.- Preparación de fuentes radiactivas

Las fuentes radiactivas de uranio, con diferentes contenidos isotópicos y de un espesor másico aproximado de 60 µg de U₃O₈/cm² han sido todas preparadas por electrodeposición sobre discos de acero inoxidable pulido de 2,5 cm de diámetro. Se ha seguido un método de electrolisis con cátodo giratorio en medio NaF y pH 10 (11).

Para obtener los distintos porcentajes isotópicos para cada fuente, se prepararon los electrolitos a partir de tres patrones de U₃O₈ N.B.S. cuya composición, en átomos por ciento, se da en la tabla II, según los datos sacados de los respectivos certificados.

En una micro balanza se pesaron las cantidades siguientes:

47,22 \pm 0,012 mg del patrón U-005
47,59 \pm 0,011 mg " " U-900
50,01 \pm 0,015 mg " " U-930

Tabla II

Composición de los patrones N.B.S.

Patrón	^{234}U , %	^{235}U , %	^{236}U , %	^{238}U , %
U-005	0,0023 \pm 0,0002	0,489 \pm 0,0025	0,0046 \pm 0,0004	99,50 \pm 0,06
U-900	0,78 \pm 0,015	90,20 \pm 0,10	0,33 \pm 0,007	8,69 \pm 0,05
U-930	1,0812 \pm 0,002	93,336 \pm 0,01	0,2027 \pm 0,0006	5,38 \pm 0,005

las cuales se disolvieron posteriormente en cápsulas de platino con HNO_3 1:1, evaporándose a sequedad bajo lámpara de infrarrojo y disolviéndose los respectivos residuos en agua destilada hasta un volumen de 100 ml.

Mezclando estas tres soluciones en diferentes proporciones se obtuvieron los electrolitos que sirvieron para preparar la serie de muestras radiactivas que se reseñan en la tabla III, cuyas composiciones isotópicas allí indicadas han sido obtenidas por cálculo, a partir de los valores dados en la tabla II.

Tabla III

Composición isotópica, en átomos por ciento, de las fuentes

Fuente	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
URA-1	0,0284	3,497	0,0155	96,455
URA-2	0,0592	5,383	0,0150	94,539
URA-3	0,0969	8,629	0,0220	91,248
URA-4	0,0805	9,509	0,0373	90,369
URA-5	0,1456	17,017	0,0645	82,769
URA-6	0,2278	19,898	0,0460	79,825
URA-7	0,2236	26,017	0,0972	73,659

2. 3.- Análisis de espectros

De todas las muestras preparadas y reseñadas en la tabla III, así como de otras dos más, la SM-1 y la SM-79 analizadas previamente por espectrometría de masas, se hicieron espectros por quintuplicado, en las mismas condiciones y durante diez horas de recuento. En la figura 4 se ha representado uno de ellos, correspondiente a la muestra URA-2. La anchura de todos los picos, a la mitad de su altura, es de 77 keV aproximadamente y, por término medio, ha sido igual para todos los espectros realizados. Esta anchura no corresponde a la resolución teórica del espectrómetro porque los picos no son de partículas alfa monocenergéticas, pues su estructura fina no está resuelta, y aparece un pico único donde, en realidad, hay un pico múltiple.

Representando el número del canal correspondiente a cada uno de los tres máximos principales, de energías: 4,195; 4,394 y 4,774 MeV en función de estas energías, puede comprobarse que se obtiene una línea

recta (también representada en la figura 4); recta de calibración en energías.

Las áreas de los picos que se han tenido en cuenta para el análisis de los espectros han sido, en todos ellos, las comprendidas entre 100 keV a la izquierda del máximo y 50 keV a la derecha. En estas condiciones, como puede deducirse de la observación de la tabla I, y sin tener en cuenta las interferencias entre picos debidas a las colas de baja energía y la resolución obtenida, el pico correspondiente al ^{235}U sólo debe contener un 84,5 % de los impulsos que, debidos a él, integran todo su espectro; estando los restantes repartidos bajo los picos correspondientes al ^{238}U y al ^{236}U , a razón de un 5,5 % y un 10 % respectivamente; lo que debe tenerse en cuenta una vez calculadas las intensidades de las líneas para obtener las proporciones isotópicas correctas.

3.- DISCUSION DE RESULTADOS

3. 1.- Determinación de la fracción de cola de baja energía

Como se vió en la introducción de este informe, es necesario conocer la fracción que corresponde a la cola de baja energía para tener completamente determinada la forma de la línea patrón. Utilizando el 10 % de los impulsos acumulados en el total de la línea como porcentaje de cola desde 0 a 0,8 de energías relativas, se obtuvieron valores por defecto en el cálculo de las intensidades de las líneas correspondientes a los isótopos ^{238}U , ^{235}U y ^{236}U por lo que cabía deducir que el número dado por Patigny era demasiado grande. En efecto, se realizaron experiencias con objeto de determinar esta cola, para lo que se utilizaron dos fuentes: una de ^{210}Po depositado sobre plata pulida por autoelectrolisis y otra de ^{238}Pu depositado sobre platino por un procedimiento electrostático. De estas fuentes se hicieron espectros que abarcaban desde energía relativa 0 hasta 1,1 entre cuyos límites se supuso que se encontraban el 100 % de los impulsos. Se utilizaron diferentes detectores, todos de la firma ORTEC, e, igualmente se varió la

distancia muestra-detector en las medidas. El porcentaje de cola de baja energía entre los límites 0 y 0,8 se da en la tabla IV, para las distintas condiciones que también se indican.

Tabla IV

Porcentaje de cola de baja energía

Detector Serie	Superficie mm ²	Distancia mm	Nucleido	% cola	<u>Distancia</u> Radio
A	450	8	²¹⁰ Po	2,2	0,67
A	450	12	²¹⁰ Po	2,2	1,0
A	450	16	²¹⁰ Po	2,5	1,33
A	450	27	²¹⁰ Po	3,0	2,25
A	200	16	²¹⁰ Po	2,7	2,0
A	200	27	²¹⁰ Po	3,1	3,38
E	25	8	²¹⁰ Po	3,5	3,56
E	25	16	²¹⁰ Po	3,8	5,71
E	25	40	²¹⁰ Po	5,9	14,29
E	200	16	²³⁸ Pu	2,71	2,0
R	450	8	²¹⁰ Po	1,8	0,67
R	450	12	²¹⁰ Po	2,1	1,0
R	450	16	²¹⁰ Po	2,2	1,33
R	450	27	²¹⁰ Po	2,7	2,25
R	150	5	²¹⁰ Po	1,4	0,71
R	50	8	²¹⁰ Po	1,8	2,0
R	50	40	²¹⁰ Po	3,2	10,0
R	450	5	²³⁸ Pu	1,2	0,42
R	150	8	²³⁸ Pu	1,36	0,71
R	50	5	²³⁸ Pu	1,9	1,25

Como puede comprobarse a la vista de esta tabla, la fracción de cola parece depender poco del tipo de muestra y bastante de la distancia, o mejor aún, de la relación distancia/radio del detector. Las series A y E de detectores ORTEC proporcionan porcentajes ligeramente más altos que la serie R de la misma firma. Por lo que, para los cálculos que aquí se han realizado, se tomó como valor medio un porcentaje del 3 % de cola de baja energía, trabajando con detectores de cualquiera de las series de ORTEC, ya que se suelen emplear a distancias entre 1 y 1,5 veces el diámetro del mismo, y se utiliza un porcentaje medio de cola del 2 % solamente cuando se emplea la serie R.

De todas formas estas experiencias han proporcionado valores bastante inferiores a los obtenidos por Patigny (6) con detectores más antiguos.

3. 2.- Resultados obtenidos

La información numérica de todos los espectros, extraída del analizador de impulsos por medio de cinta perforada, fue tratada en el computador PDP-11/45 para resolver la ecuación (1. 3). Los resultados obtenidos para las diversas R_i , es decir, las razones entre las intensidades de cada una de las líneas complejas de los isótopos ^{238}U , ^{235}U y ^{236}U frente a la del ^{234}U , tomada como patrón, se dan en la tabla V, como la media de cinco espectros de cada muestra.

Tabla V

Razones obtenidas para las intensidades

Muestra	$R_3=A-238/A-234$	$R_5=A-235/A-234$	$R_6=A-236/A-234$
URA-1	0,1856	0,0370	0,0107
URA-2	0,0890	0,0288	0,0058
URA-3	0,0537	0,0275	0,0070
URA-4	0,0633	0,0361	0,0104
URA-5	0,0324	0,0346	0,0091
URA-6	0,0209	0,0262	0,0059
URA-7	0,0201	0,0334	0,0075

Con estas razones entre intensidades se obtienen las razones entre las respectivas proporciones isotópicas con sólo aplicar las expresiones siguientes, fácilmente deducibles a partir de las ecuaciones (1. 1)

$$\frac{P_{-235U}}{P_{-234U}} = \frac{T_{-235U}}{T_{-234U}} \cdot \frac{R5}{M5}$$

$$\frac{P_{-236U}}{P_{-234U}} = \frac{T_{-236U}}{T_{-234U}} \cdot \left(R6 - \frac{M6}{M5} R5 \right)$$

$$\frac{P_{-238U}}{P_{-234U}} = \frac{T_{-238U}}{T_{-234U}} \cdot \left(R8 - \frac{M8}{M5} R5 \right)$$

En las que $T_{-i}U$ son los respectivos períodos de semidesintegración y $M5 = 0,845$, $M6 = 0,10$ y $M8 = 0,055$, las relaciones de repartición de los impulsos del espectro de ^{235}U .

Las razones entre los porcentajes y la condición $\sum P_i = 100$ permiten deducir éstos, que han sido reseñados en la tabla VI, juntamente con las diferencias porcentuales, calculadas según la expresión:

$100 (P_{i,obt.} - P_{i,cal.}) / P_{i,cal.}$, con los valores obtenidos por cálculo.

Los promedios de desviación se han calculado, siguiendo el criterio de Davis (12) de promediar las desviaciones, sin tener en cuenta el signo, siendo esto suficiente para una simple comparación de resultados.

El error que acompaña a cada porcentaje es la desviación típica de cinco determinaciones:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{4}}$$

A la vista de la tabla VI pueden sacarse algunas conclusiones:

En primer lugar, los resultados obtenidos para el ^{234}U pueden considerarse como buenos, dentro de la precisión del método, puesto que las

Tabla VI

Porcentajes isotópicos obtenidos y desviación porcentual con los calculados

Muestra	% ^{234}U	desv. %	% ^{235}U	desv. %	% ^{236}U	desv. %	% ^{238}U	desv. %
URA-1	0,029 [±] 0,001	+2,86	3,62 [±] 0,04	+3,43	0,017 [±] 0,005	+13,33	96,33 [±] 0,04	-0,22
URA-2	0,059 [±] 0,002	0	5,79 [±] 0,01	+7,62	0,014 [±] 0,002	- 6,67	94,14 [±] 0,01	-0,43
URA-3	0,096 [±] 0,006	-1,03	8,97 [±] 0,09	+3,94	0,035 [±] 0,003	+59,1	90,90 [±] 0,09	-0,38
URA-4	0,081 [±] 0,005	+1,25	9,93 [±] 0,09	+4,44	0,048 [±] 0,002	+29,73	89,93 [±] 0,09	-0,48
URA-5	0,150 [±] 0,002	0	17,5 [±] 0,18	+3,17	0,073 [±] 0,003	+12,31	82,22 [±] 0,20	-0,66
URA-6	0,230 [±] 0,002	0	20,2 [±] 0,1	+1,51	0,084 [±] 0,002	+82,6	79,48 [±] 0,10	-0,43
URA-7	0,226 [±] 0,002	+0,89	25,7 [±] 0,17	-1,27	0,081 [±] 0,006	-16,5	74,0 [±] 0,17	+0,40
Promedio desviación		0,86%		3,62%		31,46%		0,43%

desviaciones son indistintamente de cualquier signo. Bajo las líneas del espectro del ^{234}U no se superpone, prácticamente, ninguna línea de estructura fina de los espectros de los otros isótopos.

Los porcentajes obtenidos de los isótopos ^{235}U y ^{238}U son igualmente aceptables, sin embargo las respectivas desviaciones son, con la excepción de la muestra con mayor contenido en ^{235}U , respectivamente de signo positivo para el primero y negativo para el ^{238}U . Esto se puede atribuir a que las razones de ramificación del esquema de desintegración del ^{235}U elegidas de la bibliografía, no son lo suficientemente exactas, lo que origina un error sistemático. Igualmente ocurre con la determinación del isótopo ^{236}U , altamente influenciado por diversas líneas del ^{235}U , pero además, dado que el contenido de aquél es normalmente muy pequeño, la precisión estadística no es buena y esto influye grandemente en los valores hallados.

Por otra parte, el cambio de signo en las desviaciones de los resultados obtenidos para la muestra URA-7 hace suponer que al ser el contenido en ^{235}U bastante alto, la línea de este isótopo correspondiente a la energía de 4,214 MeV y 5,5% de intensidad deforman grandemente al doblete perteneciente al ^{238}U , dejando de ser válida la hipótesis su- puesta de práctica igualdad de forma entre los conjuntos de líneas principales de los cuatro isótopos.

Efectivamente, cuando se realiza el análisis isotópico de muestras cuyo contenido en ^{235}U es superior al 25%, los resultados obtenidos con el método propuesto empeoran progresivamente. Así, se han prepara- do dos fuentes, cuyas composiciones isotópicas, determinadas previa- mente por espectrometría de masas, eran las indicadas en la tabla VII.

Tabla VII

Composición isotópica obtenida por espectrometría de masas

Muestra	% ^{234}U	% ^{235}U	% ^{236}U	% ^{238}U
SM-1	0,182-0,002	46,90-0,09	0,365-0,002	52,5-0,2
SM-79	0,818-0,004	79,37-0,04	8,87 -0,04	10,95-0,04

Los resultados obtenidos en los análisis de estas dos muestras con el método espectrométrico descrito, y utilizando las mismas razones de ramificación que con la serie URA, se dan en la tabla VIII.

Tabla VIII

Porcentajes isotópicos obtenidos y desviación porcentual

Muestra	% ²³⁴ U	desv. %	% ²³⁵ U	desv. %	% ²³⁶ U	desv. %	% ²³⁸ U	desv. %
SM-1	0,168	-7,69	42,44	-9,79	0,311	-14,79	57,1	+8,72
SM-79	1,29	+57,7	38,12	+11,0	14,53	+63,8	-3,94	-136

Efectivamente, para contenidos muy altos en ²³⁵U los resultados son completamente incorrectos. Sin embargo, los resultados de la muestra SM-79 se pueden mejorar, o bien suponiendo la energía de la línea fundamental del ²³⁸U con 4,214 MeV, o sea, la correspondiente a la línea de esta energía del ²³⁵U, o bien, suponiendo que el espectro está compuesto por una línea más: la correspondiente al ²³⁵U, de 5,5% de intensidad y 4,214 MeV de energía. Los resultados para la muestra SM-79, con ambas suposiciones, han sido:

$$^{234}\text{U} = 0,95\%, \quad ^{235}\text{U} = 79,2\%, \quad ^{236}\text{U} = 10,4\% \quad \text{y} \quad ^{238}\text{U} = 9,4\%$$

y con el aumento de una línea:

$$^{234}\text{U} = 0,71\%, \quad ^{235}\text{U} = 80,04\%, \quad ^{236}\text{U} = 6,7\% \quad \text{y} \quad ^{238}\text{U} = 12,56\%.$$

Como puede verse, los resultados son simplemente semicuantitativos, ya que en ambos casos no se puede dar como válida la hipótesis de igualdad de forma de las líneas del espectro.

El método, por lo tanto, se puede considerar como bueno para contenidos en ²³⁵U hasta un 25%, por encima del cual la descomposición de líneas debe hacerse más completa, teniendo en cuenta su forma individual y las líneas fundamentales de estructura fina del espectro.

4.- BIBLIOGRAFIA.

- (1).- R.J. JONES, "Selected Measurements Methods for Plutonium and Uranium in the Nuclear Fuel Cycle", U.S.A.E.C., Division of Technical Information, pp. 207-305, 1963.
- (2).- M.L. ACEÑA, "Determinaciones analíticas de ..." Tesis presentada en la Universidad Complutense de Madrid, 1975.
- (3).- P.SIFFERT y A. COCHE, IEE. Trans. Nuclear Sci. NB-13, pp. 225-230, Junio 1966.
- (4).- A. CHETHAM-STRODE, J.R. TARRANT y R.J. SILVA, IRE Trans. Nuclear Sci. NS-8, N-1, pp. 59-63, Enero 1961.
- (5).- G. AMNSEL, P. BARUCH y O. SMULKOWSKI, Nuclear Instr. and Methods, 8, pp. 92-105, 1960.
- (6).- PETIGNY y otros, "Etude des possibilités d'utilisation de la spectrométrie alpha par diodes a jonction", Note Technique H/P/L N° 8 C.E.A., 1963.
- (7).- M.L. ACEÑA, Energía Nuclear, 22, n°111, Enero-Febrero 1978.
- (8).- G.E. COCHAROV, A.P. KOMAR y G.A. COROLEV, Zhur. Eksptl. i Teoret. Fiz., 36, pp. 68-75, 1959.
- (9).- A.P. KOMAR, G.A. COROLEV y G.E. COCHAROV, Zhur. Eksptl. i Teoret. Fiz., 38, pp. 1436-1438, 1960.
- (10).- S.A. BARANOV, A.G. ZALENKOV y V.M. KULAKOV, Izvest. Akad. Nauk. SSSR, Ser. Fiz., 24, pp. 1035-1040, 1960.
- (11).- M.L. ACEÑA, "Procedimiento de preparación de muestras para espectrometría alfa ...", Compte rendu du 1^{er} Colloque Franco-Espagnol sur le traitement des combustibles irradiés, C.E.A. CEN/FAR 11-14 de Noviembre 1967, pp. 83-92.
- (12).- D.S. DAVIS, "Nomography and Empirical Equations", Reinhold Publishing Corporation, 430 Park Ave. N.Y. 22, USA, pg. 6, 1965.

AGRADECIMIENTO

Los autores quieren agradecer a D. Hermógenes Sanz García y a D. Francisco Sanchez Moreno la realización de los análisis isotópicos por espectrometría de masas de algunas de las muestras utilizadas, así como a D. Santiago Peñalba Delgado su ayuda en el trabajo experimental.

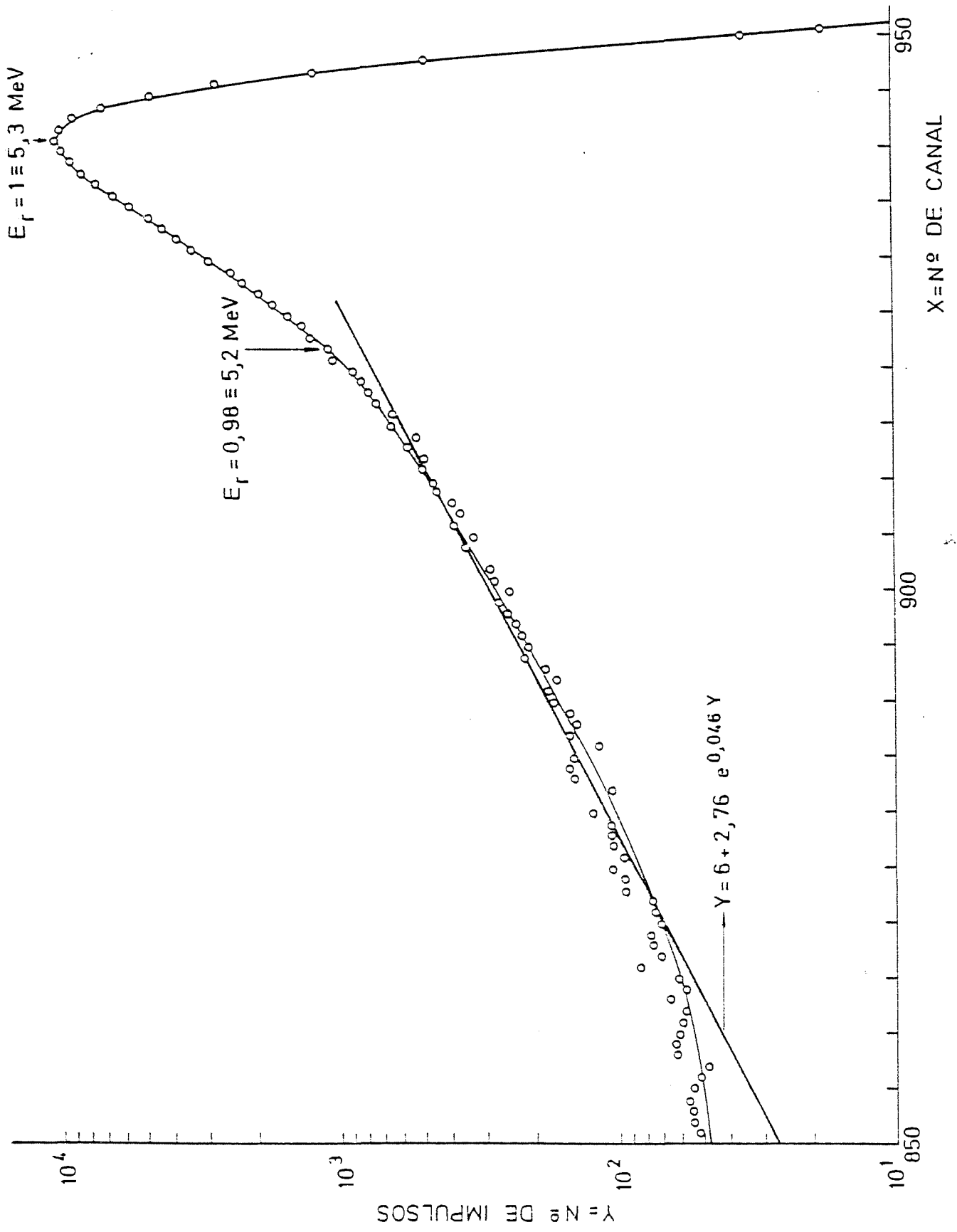


FIG. 1.- Espectro α del ^{210}Po

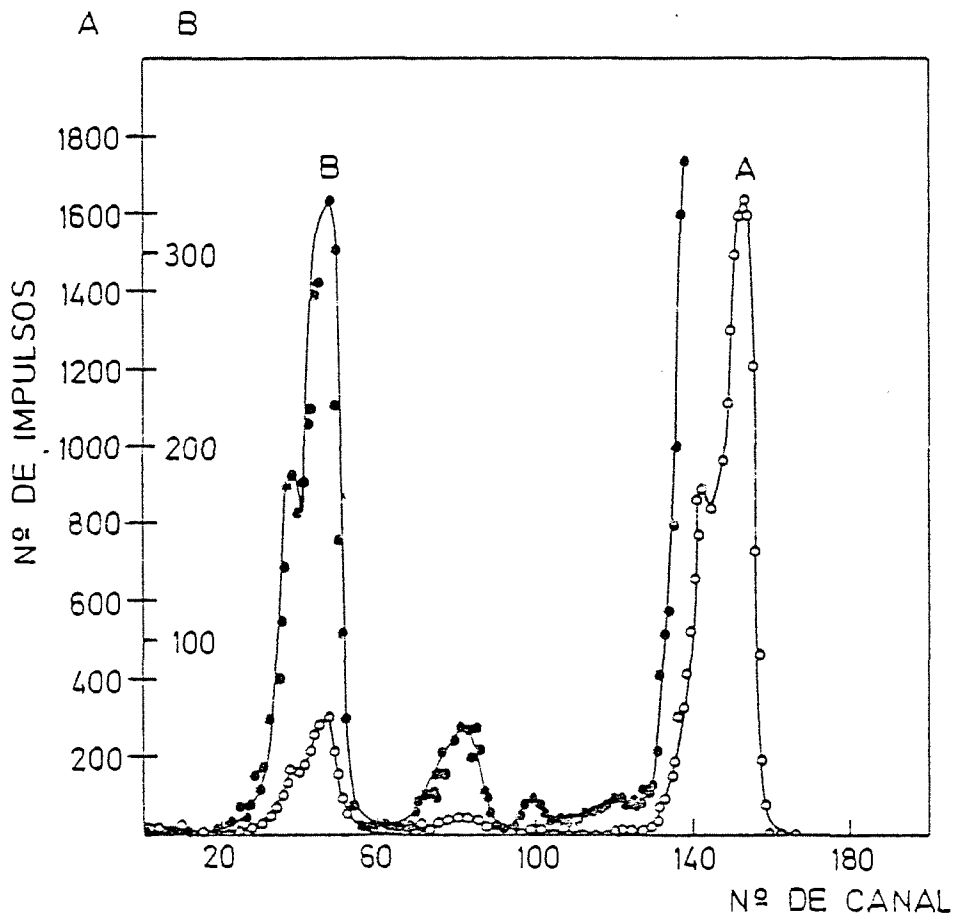


FIG. 2.- Detector 25 mm²

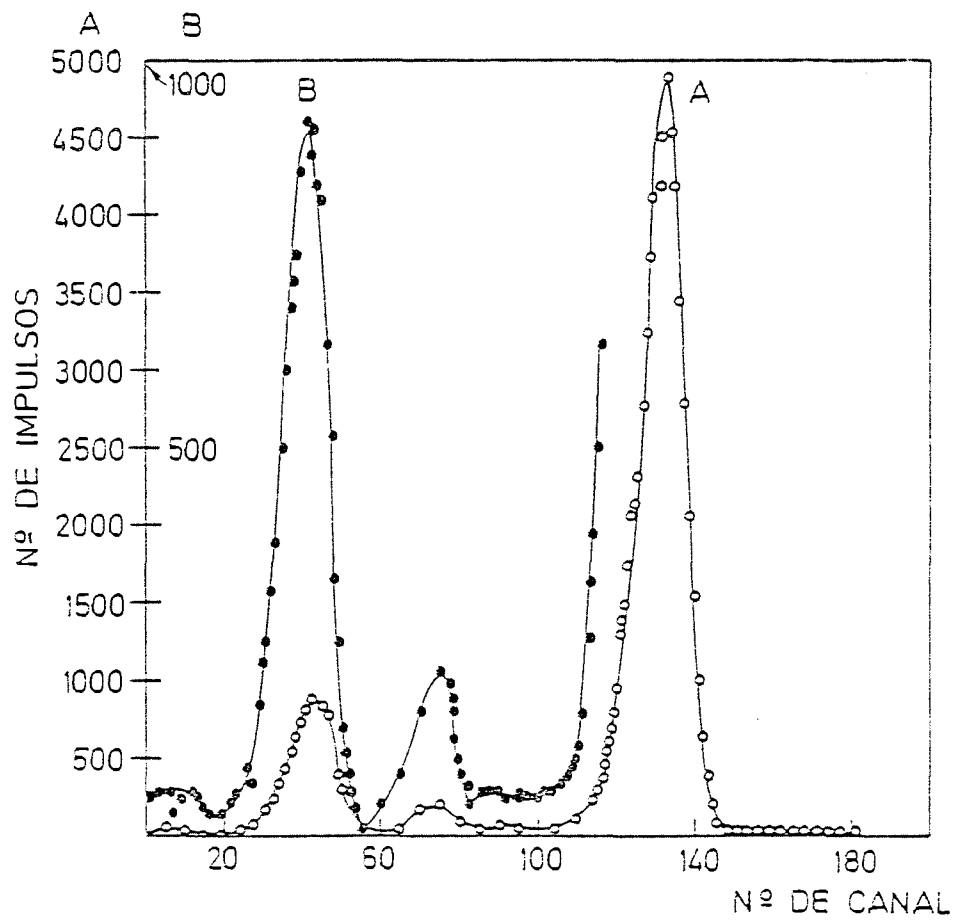


FIG. 3.- Detector 450 mm²

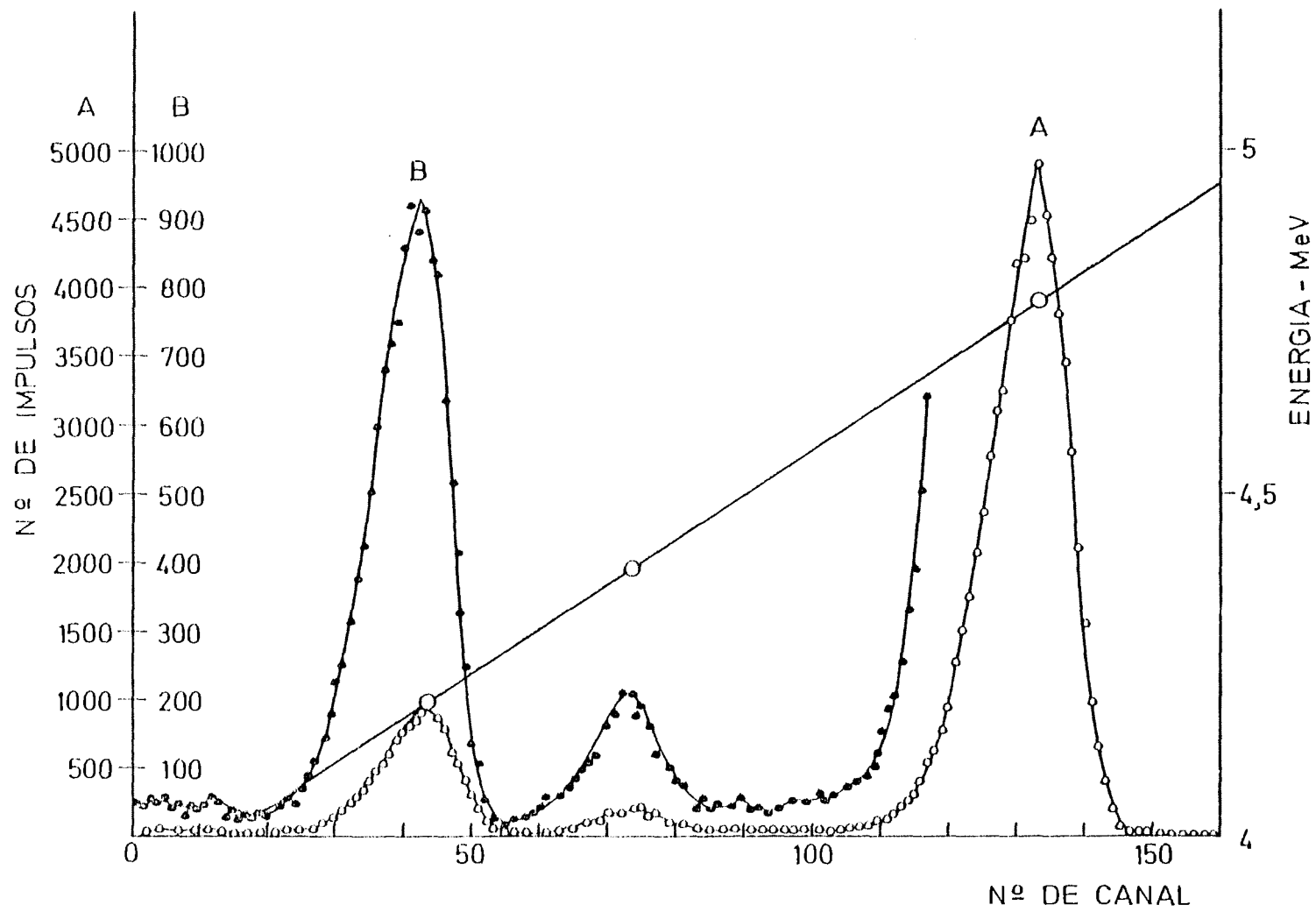


FIG. 4.- Espectro de la fuente URA - 2

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Uranium Isotopic Determination by Alpha Spectroscopy".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

A method for alpha-spectrometry determinations of uranium isotopes, using surface barrier detectors, is described. This method is based in the shape similarity of the most intense line groups for the nuclides ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U and ^{238}U .

The method yields analytical results sufficiently accurate in samples with ^{235}U contents lower than 25% in atoms.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Uranium Isotopic Determination by Alpha Spectroscopy".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

A method for alpha-spectrometry determinations of uranium isotopes, using surface barrier detectors, is described. This method is based in the shape similarity of the most intense line groups for the nuclides ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

The method yields analytical results sufficiently accurate in samples with ^{235}U contents lower than 25% in atoms.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Uranium Isotopic Determination by Alpha Spectroscopy".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

A method for alpha-spectrometry determination of uranium isotopes, using surface barrier detectors, is described. This method is based in the shape similarity of the most intense line groups for the nuclides ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U and ^{238}U .

The method yields analytical results sufficiently accurate in samples with ^{235}U contents lower than 25% in atoms.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Uranium Isotopic Determination by Alpha Spectroscopy".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

A method for alpha-spectrometry determinations of uranium isotopes, using surface barrier detectors, is described. This method is based in the shape similarity of the most intense line groups for the nuclides ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

The method yields analytical results sufficiently accurate in samples with ^{235}U contents lower than 25% in atoms.

INIS CLASSIFICATION AND DESCRIPTORS: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Determinación de Isótopos de Uranio por Espectrometría Alfa".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORAÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

Se describe un método para determinar isótopos de uranio por espectrometría alfa con detectores de barrera de silicio basado en la similitud de forma de los conjuntos de líneas más intensas de los nucleidos ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

El método proporciona buenos resultados en los análisis de muestras cuyo contenido en ^{235}U sea inferior a un 25%.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Determinación de Isótopos de Uranio por Espectrometría Alfa".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

Se describe un método para determinar isótopos de uranio por espectrometría alfa con detectores de barrera de silicio basado en la similitud de forma de los conjuntos de líneas más intensas de los nucleidos ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

El método proporciona buenos resultados en los análisis de muestras cuyo contenido en ^{235}U sea inferior a un 25%.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Determinación de Isótopos de Uranio por Espectrometría Alfa".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

Se describe un método para determinar isótopos de uranio por espectrometría alfa con detectores de barrera de silicio basado en la similitud de forma de los conjuntos de líneas más intensas de los nucleidos ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

El método proporciona buenos resultados en los análisis de muestras cuyo contenido en ^{235}U sea inferior a un 25%.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.

J. E. N. 442

Junta de Energía Nuclear. Sección de Metrología. Madrid.

"Determinación de Isótopos de Uranio por Espectrometría Alfa".

ACEÑA, M.L.; GARCIA-TORIÑO, E. (1979) 20 pp. 4 figs. 12 refs.

Se describe un método para determinar isótopos de uranio por espectrometría alfa con detectores de barrera de silicio basado en la similitud de forma de los conjuntos de líneas más intensas de los nucleidos ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U y ^{238}U .

El método proporciona buenos resultados en los análisis de muestras cuyo contenido en ^{235}U sea inferior a un 25%.

CLASIFICACION INIS Y DESCRIPTORES: B11. Uranium isotopes. Alpha spectroscopy. Measuring methods.