

CONTROLES DE INVENTARIO POR ESPECTROMETRIA GAMMA EN EL LABORATORIO DE URANIO ENRIQUECIDO.

H. VICENS, R. KOROB, A. GOLDSCHMIDT.
Comisión Nacional de Energía Atómica.

1. INTRODUCCION.

El proceso de conversión química del Laboratorio de Uranio Enriquecido comprende las etapas necesarias para la transformación de soluciones de $(\text{NO}_3)_2 \text{UO}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ a Uranio metálico vía precipitación de peróxido (UO_4).

Dicho proceso está distribuido en dos líneas de producción identificadas como vía húmeda (conversión de $(\text{NO}_3)_2 \text{UO}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ a UO_3) y vía seca (conversión de UO_3 a metal) según se procesen soluciones líquidas o polvos.

En la campaña 86/87 se procesaron compuestos de uranio con distintos enriquecimientos (90 y 20%). A fin de cumplir con los plazos de entrega comprometidos se tuvo que diagramar un programa de operación en el cual la línea húmeda se usó exclusivamente con material al 90% y la vía seca procesó alternadamente ambos enriquecimientos.

Para ésta operatoria se evitó la dilución isotópica mediante controles administrativos (no se permitió la carga de la vía seca con ambos enriquecimientos simultáneamente) y se procedió a la decontaminación de los equipos en cada oportunidad que se alternaba enriquecimiento. La composición isotópica de los lotes ha sido certificada por espectrometría de masa, la que demostró la ausencia de errores dentro de los límites de una buena decontaminación química de equipos.

Sin embargo este procedimiento incrementó apreciablemente el volumen de residuos asociados a la operación de la vía seca. Estos residuos para ser recuperados deben necesariamente ser procesados en la línea húmeda en la que existen equipos más difíciles de decontaminar (macracas, placas filtrantes metálicas, agitadores, etc.), y además cuando se procesan lotes de soluciones líquidas de distinto enriquecimiento, se dificultan los controles administrativos (errores por recambio de personal, deterioro de etiquetas de identificación, etc.). A fin de reforzar esos controles administrativos se pensó en implementar un método analítico de respuesta rápida, accesible, que requiera una preparación sencilla de muestras y lógi

camente de una precisión razonable.

Debido a las características exigidas se optó por la espectrometría gamma dado que la puesta a punto del mismo presenta una ventaja adicional como es la determinación de la concentración de soluciones de enriquecimiento conocido lo que simplifica el control del inventario físico real (masa de U235) en la línea húmeda.

2. PARTE EXPERIMENTAL.

2.1. Preparación de las muestras.

En su preparación se utilizó material purificado por doble precipitación del peróxido de uranio y posterior calcinación a U_3O_8 en horno tubular durante ocho horas a $720^\circ C$ en crisol de platino. Se usaron duplicados de muestras de enriquecimiento certificado por espectrometría de masa (90% campaña 1983, 20% campaña 1986).

El detalle de las mismas se presentó en la Tabla N°1. Todas las muestras de U_3O_8 se disolvieron en HNO_3 7 M y el volumen destinado a la medición fue de 1,5 ml.

La geometría de las mismas debían cumplir los siguientes requisitos:

- a) Permitir el manipuleo seguro de las fuentes.
- b) Permitir la recuperación del material destinado a la medición.
- c) Ser una geometría definida y repetitiva (standardizada).
- d) Requerir una técnica de preparación sencilla y rápida.
- e) Disponibilidad de contenedores.

En la Fig. N°1 se presentó un detalle de la geometría adoptada constituida por un tubo interior cónico de polietileno con enrase normalizado y verificado por pesada y un contenedor externo de acrílico.

2.2. Medición.

Del espectro gamma del U235 se seleccionó el fotopico de 185 Kev por ser el de mayor intensidad y estar libre de interferencia.

Se optó por muestras líquidas con disolución total a fin de asegurar la homogeneidad de las mismas evitando de esta forma un error frecuente en muestras sólidas asociadas a densidades no constantes (inhomogeneidad).

El instrumental utilizado consta de un detector

tor de Ge (Hp) planar de 25 mm^2 de área; 5,6 mm de diámetro y 5 mm de profundidad, con ventana de Be de 1,3 mm y una resolución nominal de 145 eV a 5,9 Kev y 475 eV a 122 Kev.

El preamplificador es de acoplamiento óptico; el amplificador es un modelo 2020 de Camberra del Laboratorio Facilidad Radioquímica.

El multicanal (Camberra Serie 80) está asociado a una computadora PDP 11/04 con lo que se corrió el código de cálculo SPECTRAN F. para análisis de espectros gamma de alta resolución.

3. RESULTADOS.

3.1. Curva de enriquecimiento.

Para su determinación se utilizaron muestras de $\bar{m} = 159 \text{ mg U}$. Como nitrato de Uranilo en la geometría detallada previamente.

Los resultados obtenidos se pueden apreciar en el gráfico N°I y el detalle de los datos en la tabla N°I.

En este gráfico se observó que el comportamiento en todo el intervalo de enriquecimiento fue el esperado; o sea una relación funcional lineal entre el área del fotópico y el grado de enriquecimiento con una correlación razonable.

La linealidad obtenida mejora sensiblemente cuando se correlacionan solamente las muestras certificadas por espectrometría de masa.

Esta metodología no se aplicó inicialmente por ser pocos los puntos disponibles para un intervalo de interés tan amplio.

El gráfico N°II muestra este efecto y es nuestra curva Área Específica Vs Enriquecimiento de referencia.

3.2. Curva de concentración.

A partir de la muestra de $C = 108 \text{ mU/mg}$ se prepararon las diluciones 1/2, 1/4 y 1/8 para obtener la curva correspondiente a un enriquecimiento 19,81% en U235. Estos datos se pueden apreciar en el gráfico III con un excelente grado de correlación.

Para la curva de enriquecimiento al 89,39% en U235 se usaron 2 muestras independientes. La primera de ellas coincidente con la usada en la curva de enri-

quecimiento y una nueva preparada por pesada ($C=51,28$ mg/ml) de lo que se hicieron diluciones $1/2$ y $1/4$ de tal forma que en el gráfico N°III hay 3 muestras independientes.

La correlación obtenida con la curva $89,39\%$ es buena pero inferior a la del $19,81\%$, ello indica que una de las 2 muestras independientes tiene un pequeño error. Analizando las relaciones de áreas específicas, áreas y enriquecimientos entre las muestras de $89,93\%$ y $19,81\%$ a igual concentración se infiere que la disminución del coeficiente de correlación es debido a la muestra a $C=51$ mg U/ml; pero de todas formas es una buena correlación.

3.3. Nomograma de Area Vs Concentración para distintos enriquecimientos.

Combinando los datos de los gráficos II y III se construye el gráfico N°IV que el sumario de todas las experiencias realizadas.

4. ERRORES DEL METODO.

Los errores del método en este caso resultan de una combinación de los errores asociados a la preparación de las muestras (volumétrico y error de pesada) y los asociados a la medición del área del fotopico.

A fin de cuantificarlo, se preparó una muestra incógnita que por espectrometría γ resultó del $20,78\%$ en U235 (según gráfico II) y por espectrometría de masas $21,30\%$. Por lo tanto asumiendo el valor de espectrometría de masas como verdadero el error relativo es del $2,4\%$.

5. CONCLUSIONES.

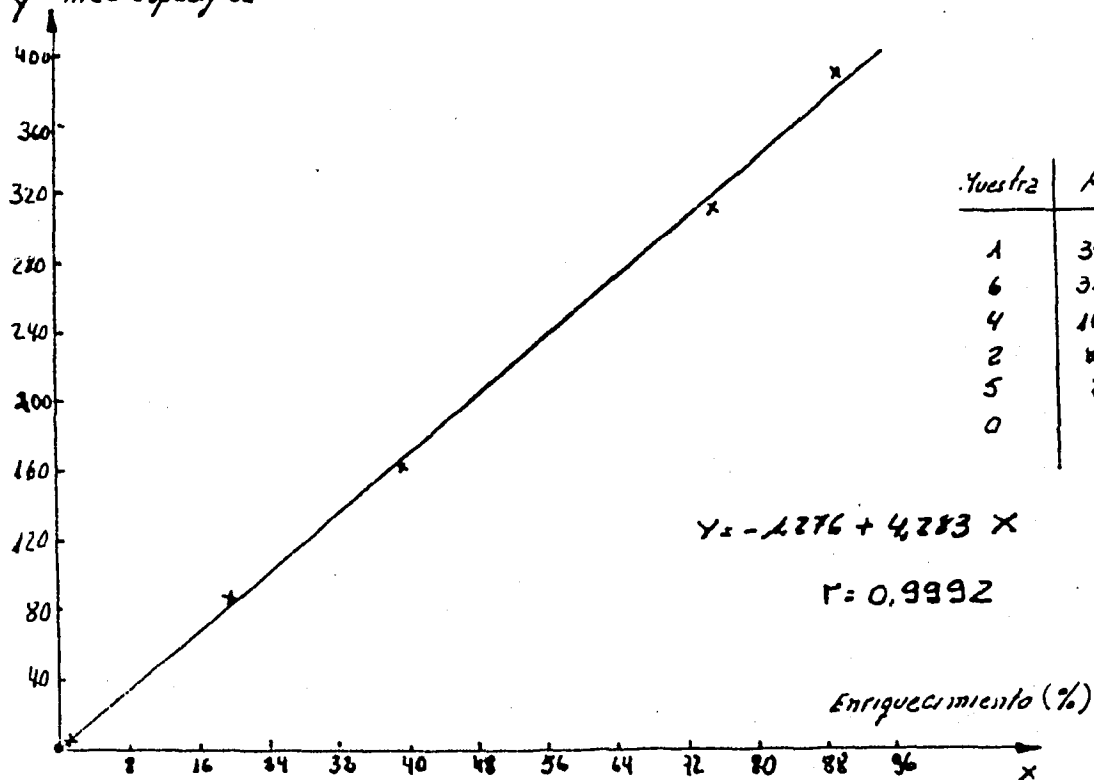
- a) De los resultados obtenidos se infiere que la espectrometría gamma es un método apto para el control rápido del enriquecimiento y del inventario físico provisorio de material fisible pero las certificaciones se efectúan siempre por espectrometría de masas.
- b) Los tiempos de medición para la geometría axial han sido de 60.000 seg. Este tiempo se puede optimizar usando un detector de mayor eficiencia. La razón por la que se seleccionó un detector de Ge (Hp) es su excelente resolución a fin de verificar la ausencia de interferencias en el pico de 185 Kev. Usando un detector de Ge (Li) o aún uno de $INa(Tl)$ los tiempos de medición disminuyen en un factor 10 aproximadamente.
Con el mismo detector usado se está intentando una geometría planar. Los primeros resultados demuestran que como era de esperar el contaje aumenta considerablemente disminuyendo el tiempo de medición, pero se

presenta un inconveniente de considerable importancia la preparación de esta fuente de geometría planar para que reúna las condiciones de hermeticidad y homogeneidad de la que se logra en la axial es delicada e insume tanto tiempo que las ventajas logradas se desvanecen.

Por lo tanto por practicidad, rapidez y sencillez se recomienda la geometría axial con un detector de mayor eficiencia.

Gráfica N° 1

Y Area Especifica



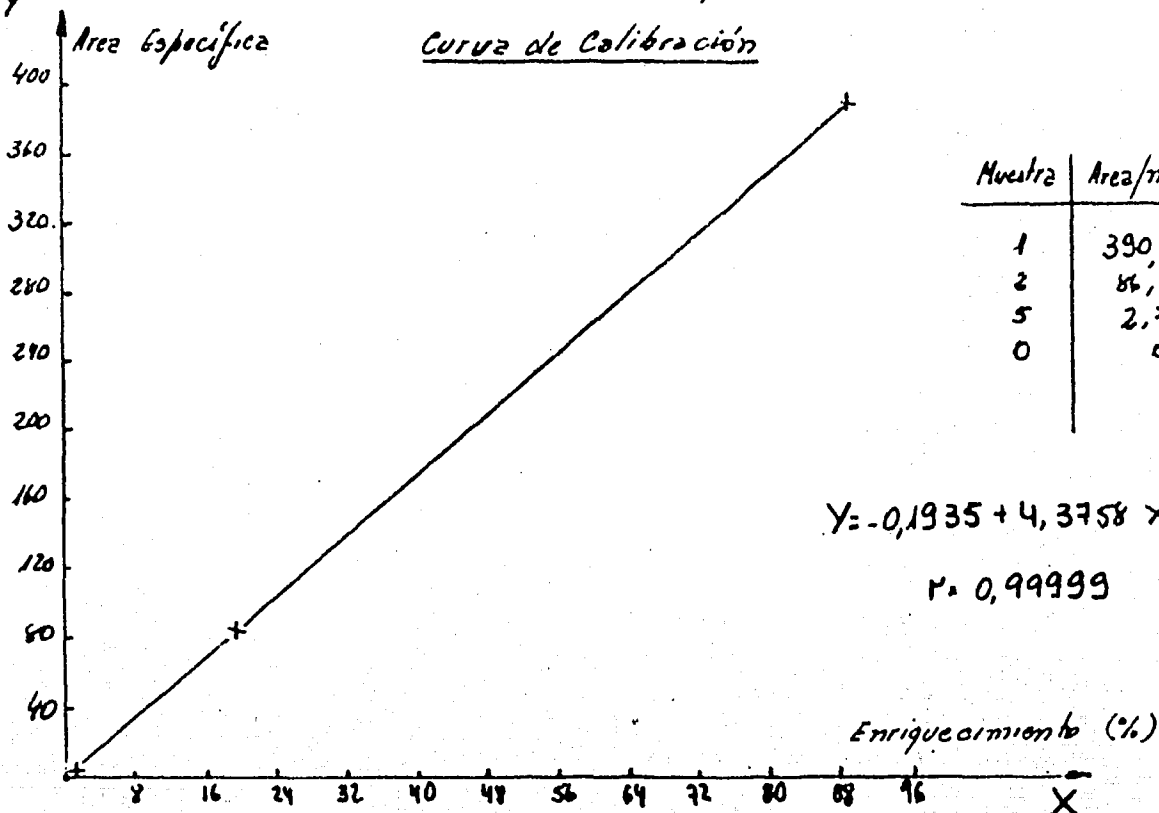
Muestra	Area/masa	Enriq.
1	390,97	89,39
6	313,03	75,19
4	162,93	39,64
2	86,47	19,81
5	2,72	0,72
0	0	0

Gráfico N° 2

Muestras Certificadas por Espectrometría de Masas.

Curva de Calibración

Y Area Especifica

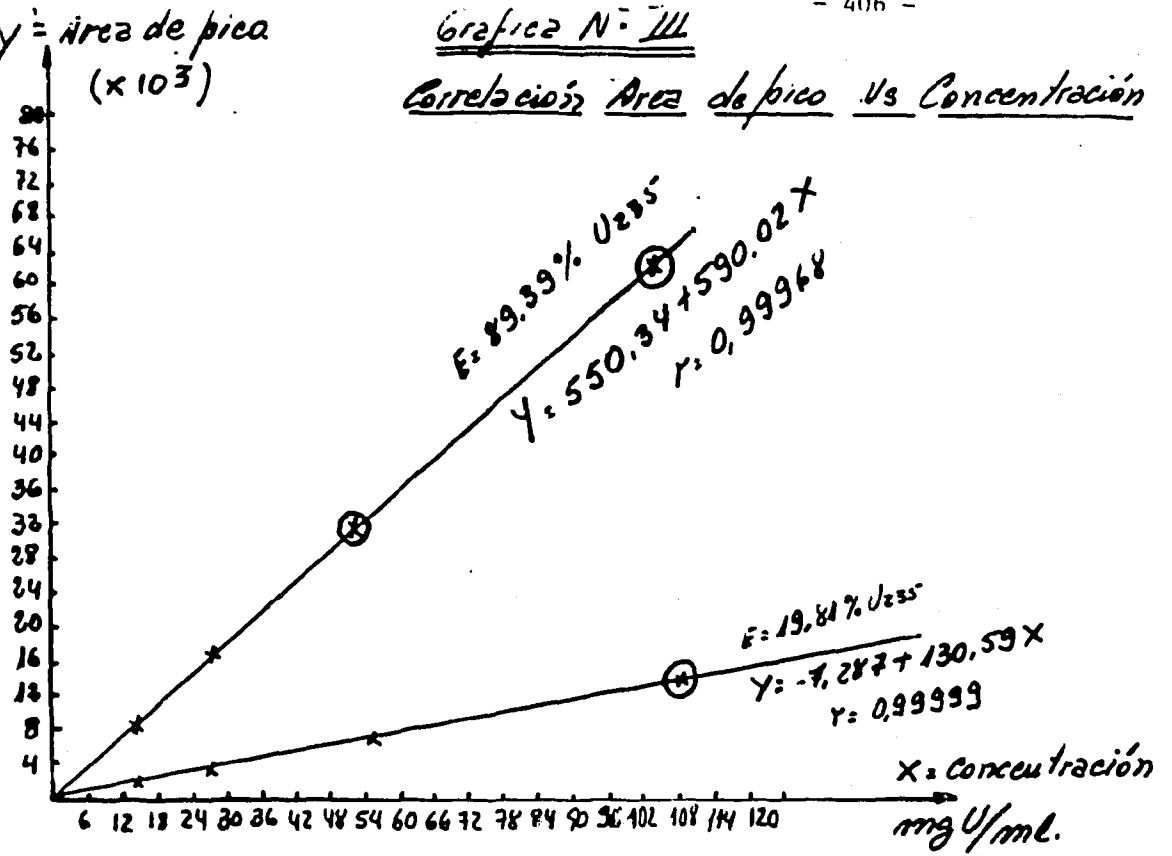


Muestra	Area/masa	Enriq.
1	390,97	89,39
2	86,47	19,81
5	2,72	0,72
0	0	0

Gráfica N: III
Correlación Área de pico vs Concentración

$\theta = 19.81\%$

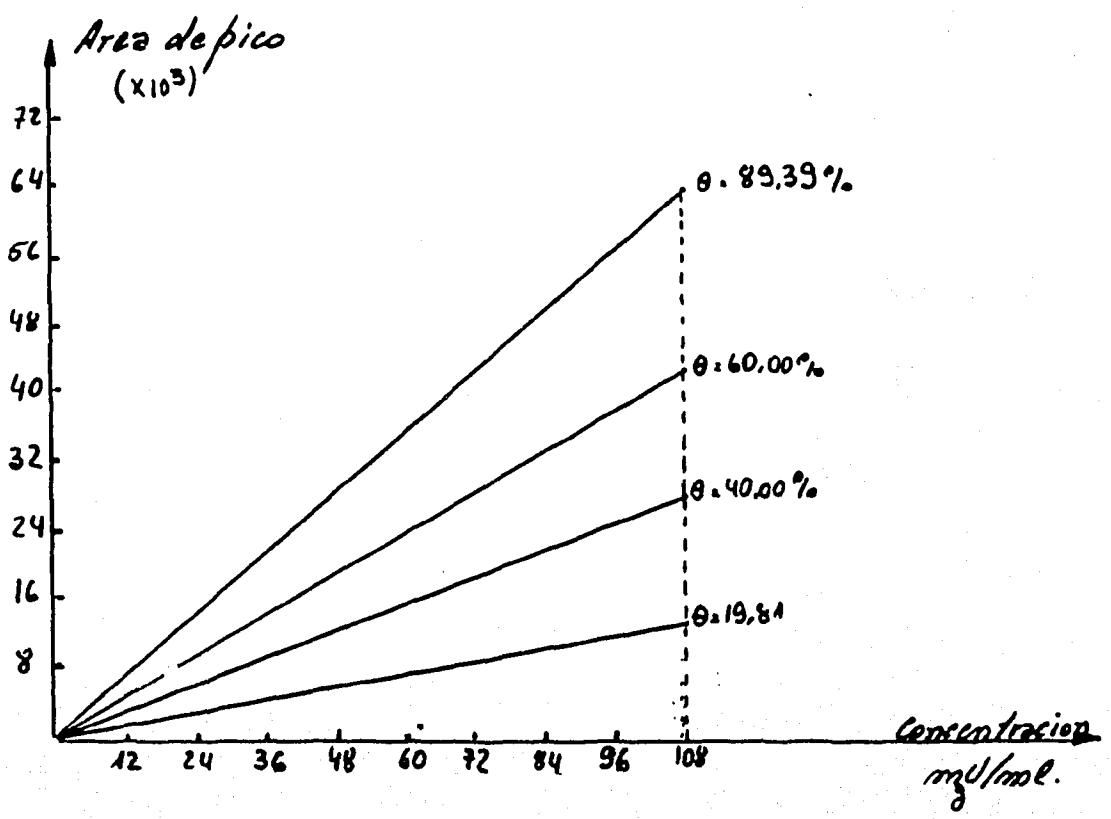
mgU/ml	Area
108.28	14138
54.14	7058
27.07	3515
14.67	1914

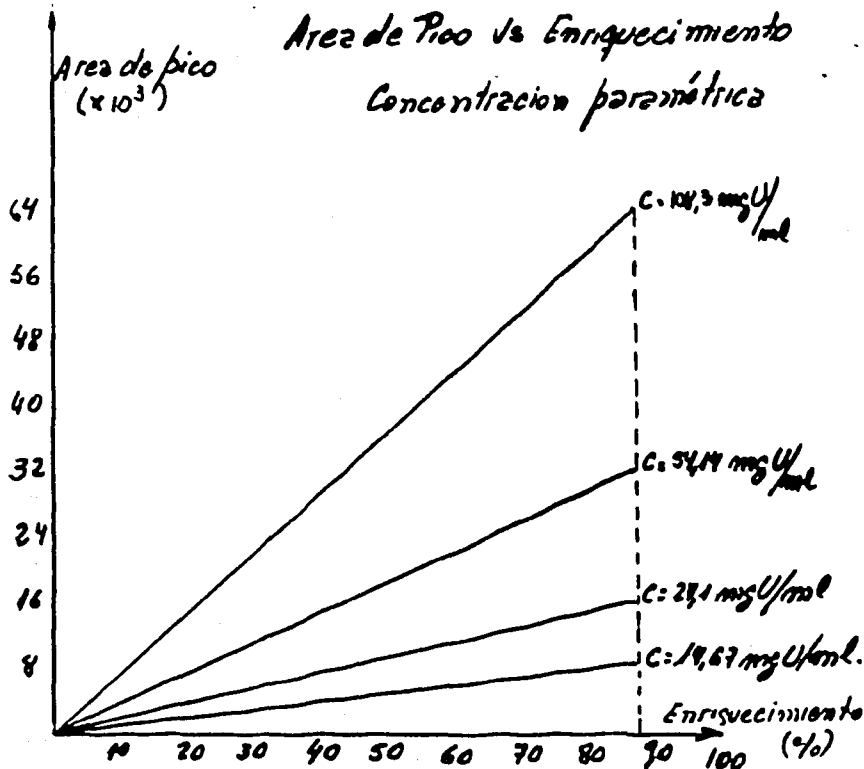


$\theta = 89.39\%$

mgU/ml	Area
104.8	61879
51.28	31745
27.33	16923
14.34	8882

Gráfico N: IV
Nomograma Área de pico vs Concentración
(Enriquecimiento paramétrico)





Geometría de Medición Axial

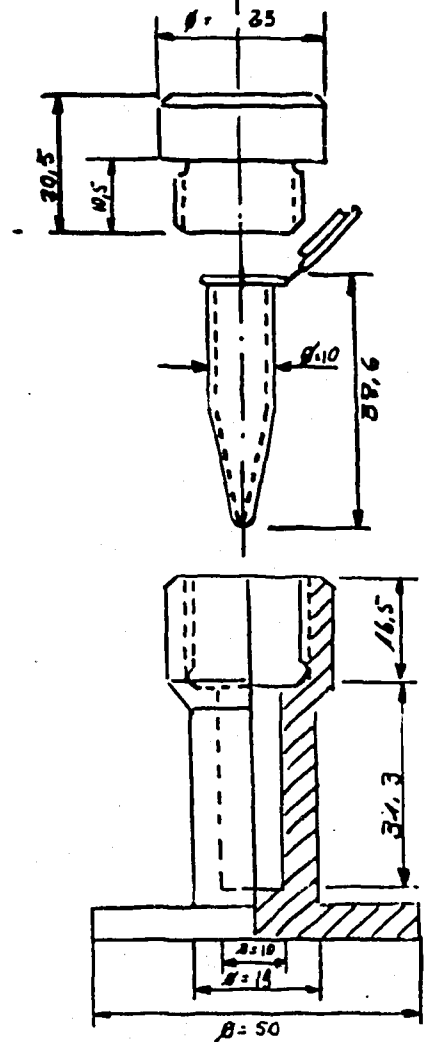


TABLA N.º I
Composición Isotópica de Muestras Certificadas

Muestra	U ₂₃₈	U ₂₃₅	U ₂₃₄	U ₂₃₆
79/2	79,94	19,81	0,110	0,164
80/2	79,92	19,79	0,118	0,169
50/3	89,93	9,70	0,54	0,298
54/2	89,90	9,27	0,55	0,161
61/2	89,40	9,61	0,64	0,260
36/3	88,22	10,87	0,62	0,230

Geometría de Medición planar

