

Determinación de uranio empobrecido por espectrometría gamma para pruebas de hermeticidad en equipos de gammagrafía industrial

José Osores*

Dirección de Servicios, Instituto Peruano de Energía Nuclear, Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú

Resumen

Se ha realizado una revisión y evaluación del método por espectrometría gamma para la determinación de uranio empobrecido mediante análisis de sus productos de decaimiento (Th-234 y Pa-234). Este método permite determinaciones por encima de los 0,2 kilobecquerels establecidos en la norma ISO-9978 eficientemente.

Determination of depleted uranium by gamma spectrometry for leakage test in equipments of industrial gammagraphy

Abstract

A review and evaluation of the gamma-spectrometric method for the determination of depleted uranium by analyzing its decay products (Th-234 and Pa-234) was performed. This method allows measurements above 0,2 kilobecquerels established in ISO-9978 efficiently.

1. Introducción

La gammagrafía industrial es una técnica de Ensayos No Destructivos (END) que se utiliza para estudiar la integridad y calidad de soldaduras, material de tuberías, tanques, piezas metálicas diversas, etc. Su uso es intensivo durante la construcción de grandes piezas metálicas, como en el montaje de plantas industriales, en el tendido de oleoductos y durante el mantenimiento de estas instalaciones. También se utiliza para estudiar el estado de estructuras de hormigón armado en las construcciones. Se trata de equipos robustos que pueden instalarse prácticamente en cualquier sitio, el procesamiento de las placas radiográficas es muy sencillo y la técnica confiable; por lo que su uso está muy extendido desde hace años en todo el mundo.

Durante la práctica se coloca una fuente de radiación cerca del objeto que será estudiado y se obtiene una radiografía del mismo. La atenuación diferencial que producen los defectos de las soldaduras o del volumen de la pieza, produce imágenes de los mismos en las placas radiográficas. Actualmente, se utilizan casi exclusivamente fuentes radiactivas encapsuladas de Ir-192 y Co-60, aunque en algunos lugares se siguen utilizando fuentes de Cs-137 [1]. En el caso de la gammagrafía industrial, el alojamiento

blindado de las fuentes varía de acuerdo con el radioisótopo y al uso para el que fue construido. Puede ser portátil o estar montado sobre ruedas, también puede estar diseñado para que la fuente no salga del blindaje o para que se la extraiga del mismo manualmente o en forma remota.

Se llama **uranio empobrecido** a aquel que contiene una fracción de isótopo U-235 inferior a la natural (0,71%). Se trata de un residuo del enriquecimiento y del reprocesamiento del uranio, constituido esencialmente por U-238.

El metal de uranio empobrecido tiene una densidad extremadamente alta (19 g/cm^3), algo mayor que la del uranio natural y mucho mayor que la del plomo. Esta característica lo hace interesante para ciertas aplicaciones civiles y militares. Por su alta densidad el uranio empobrecido se utiliza en la fabricación de blindajes para las fuentes radiactivas utilizadas en medicina y en la industria [2,3]. Una fuente radiactiva sellada es todo material radiactivo permanentemente incorporado a un material, encerrado en una cápsula hermética con resistencia mecánica, suficiente para impedir el escape del radioisótopo o la dispersión de la sustancia radiactiva en las condiciones previsibles de

* Correspondencia autor: josores@ipen.gob.pe

uso y desgaste [4]. Estas fuentes radiactivas selladas, entre ellas el uranio empobrecido utilizado en los blindajes de gammagrafía industrial, suelen caracterizarse por su pequeño tamaño y su movilidad.

En este contexto, el Instituto Peruano de Energía Nuclear establece medidas para proteger la salud de los trabajadores y de la población contra los peligros de las radiaciones ionizantes, existiendo normas básicas al respecto con disposiciones aplicables a las fuentes radiactivas selladas de actividad elevada. En este sentido, se aplica la Norma ISO-9978 utilizada para garantizar la hermeticidad de la fuente radiactiva sellada durante un período de operación determinado; esta norma establece en su numeral 5.1.5, que no se considera fuga radiactiva si los valores de actividad no exceden de los 0,2 kiloBequerelios [5].

2. Metodología

Se utilizó un sistema de espectrometría gamma de alta resolución de germanio hiperpuro, con una eficiencia relativa del 15% asociado al programa de análisis Genie 2000 y como material de referencia una fuente radiactiva de 2.5 cm de diámetro marca Tracerlab código UX2-234B. La actividad de U-238, Th-234 y Pa-238 en equilibrio es de 1.07×10^{-5} microcuries (396 Bequerelios) al 1961-07-01. Esta fuente presenta una incertidumbre estándar del 15% ($k=1$). Se realizaron lecturas con tiempos de recuento de 1000 segundos y se evaluaron los fotopicos correspondientes al U-238, Th-234 y Pa-234 (Tabla 1).

Tabla 1. Nucleídos evaluados por espectrometría gamma [6].

Nucleido	keV	Emisión gamma
U-238	49,55	0,06%
Th-234	63,29	3,70%
Th-234	92,38	2,13%
Th-234	92,80	2,10%
Pa-234	1001,03	0,84%

Las variables consideradas en el estudio fueron el área neta, error de recuento, continuo o fondo, eficiencia instrumental y actividad mínima detectable para cada uno de los fotopicos. Se determinaron los valores

medios, desviación estándar, coeficiente de variabilidad y varianza. Para los valores de eficiencia instrumental y actividad mínima detectable se realizaron los análisis de varianza y prueba de comparación de medias de Student, con un nivel de significación del 95%.

3. Resultados y Discusión

En la Figura 1 se pueden identificar tres fotopicos, el de 63,29 keV, la suma de los dos fotopicos 92,38 + 92,80 keV que corresponden al Th-234 y el de 1001,03 keV correspondiente al Pa-234. En ninguno de los espectros evaluados se pudo identificar el fotopico del U-238 (49,55 keV).

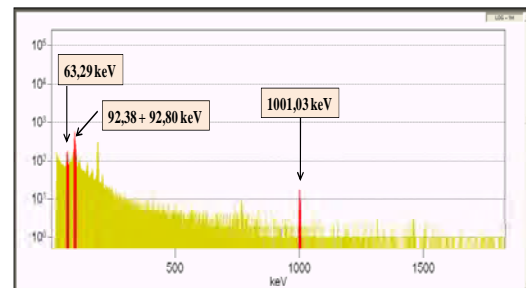


Figura 1. Espectro gamma mostrando los fotopicos del Th-234 y Pa-234.

Para un mejor análisis y considerando que la resolución del detector no permite discriminar los fotopicos de 92,38 y 92,80 keV, se tomó como supuesto un fotopico combinado de 92,59 keV con una emisión gamma de 4,23 %. En el espectro se observa que los dos primeros fotopicos se encuentran dentro del efecto Compton, por lo que su influencia podría afectar el resultado analítico.

La Tabla 2 muestra el área de cada uno de los fotopicos, destacando el de 92,59 keV con un mayor número de cuentas promedio y una menor variabilidad (4511,8 cuentas y 3,11 % de variabilidad).

La Tabla 3 presenta los valores del error de recuento de cada uno de los fotopicos, no se observa una diferencia marcada entre los errores promedio de 63,29 y 1001,03 keV (6,27 % y 9,79 %); sin embargo, el error promedio del fotopico de 92,59 keV es significativamente inferior a los demás (2,95 %).

Tabla 2. Área neta de los fotopicos de Th-234 y Pa-234.

Replica	Energía (keV)		
	63,29	92,59	1001,03
1	964	4580	124
2	967	4535	141
3	929	4746	107
4	1001	4530	123
5	921	4451	120
6	849	4516	120
7	1072	4690	110
8	862	4432	134
9	840	4301	129
10	949	4337	139
Promedio	935,40	4511,80	124,70
1 d.s.	72,39	140,32	11,31
Variabilidad	7,74%	3,11%	9,07%

En el caso del continuo existe mucha variabilidad en el fotopico de 1001,03 keV (46,36 %) respecto a los otros dos niveles energético (4,56 % y 3,20 %); esto significa que el rango de amplitud de la actividad mínima detectable será mucho mayor.

Bajo estas circunstancias, los mejores resultados se obtienen al considerar el fotopico combinado de 92,59 keV dado que presenta una mayor emisión gamma y una menor variabilidad.

Tabla 3. Error de recuento de los fotopicos de Th-234 y Pa-234.

Replica	Energía (keV)		
	63,29	92,59	1001,03
1	6,16%	2,07%	9,87%
2	5,99%	2,09%	8,94%
3	6,26%	1,98%	11,13%
4	5,92%	2,09%	9,66%
5	6,38%	2,12%	9,79%
6	7,02%	2,10%	10,24%
7	5,41%	2,00%	10,29%
8	6,64%	2,12%	8,77%
9	6,80%	2,18%	10,03%
10	6,13%	2,15%	9,13%
Promedio	6,27%	2,09%	9,79%
1 d.s.	0,47%	0,06%	0,71%
Variabilidad	7,45%	2,95%	7,25%

Tabla 4. Continuo de los fotopicos de Th-234 y Pa-234.

Replica	Energía (keV)		
	63,29	92,59	1001,03
1	1549	2646	16
2	1444	2712	10
3	1480	2488	21
4	1520	2675	10
5	1528	2685	10
6	1633	2693	18
7	1386	2481	10
8	1457	2659	3
9	1459	2704	24
10	1470	2641	13
Promedio	1492,60	2638,40	13,50
1 d.s.	68,06	84,39	6,26
Variabilidad	4,56%	3,20%	46,36%

Las eficiencias porcentuales de los tres niveles energéticos fueron: 6,38 % \pm 0,49 % para 63,29 keV, 26,93 % \pm 0,84 % para 92,59 keV y 3,74 % \pm 0,34 % para 1001,03 keV (Tabla 5). Evidentemente la eficiencia deseable para determinaciones analíticas es aquella que presente un mayor valor y un menor error.

Tabla 5. Eficiencia instrumental de los fotopicos de Th-234 y Pa-234.

Replica	Energía (keV)		
	63,29	92,59	1001,03
1	0,0658	0,2734	0,0372
2	0,0660	0,2707	0,0423
3	0,0634	0,2833	0,0321
4	0,0683	0,2704	0,0369
5	0,0629	0,2657	0,0360
6	0,0579	0,2696	0,0360
7	0,0732	0,2800	0,0330
8	0,0588	0,2646	0,0402
9	0,0573	0,2568	0,0387
10	0,0648	0,2589	0,0417
Promedio	0,0638	0,2693	0,0374
1 d.s.	0,0049	0,0084	0,0034
Variabilidad	7,74%	3,11%	9,07%
Varianza	0,000024	0,000070	0,000012

El análisis de varianza aplicado a la eficiencia instrumental mostró que al menos una de ellas es estadísticamente diferente (Tabla 6), dado que la eficiencia de 92,59 keV es

significativamente mayor, solo se realizó la prueba de Student, considerando varianzas diferentes a las eficiencias de los otros dos niveles energéticos en donde se demuestran que también son estadísticamente diferentes (Tabla 7).

Tabla 6. Análisis de varianza de la eficiencia instrumental.

Origen de las varianzas	GL	Cuadrados Medios	F calculado	Valor crítico
Entre energías	2	0,16122155	4558,77	3,35
Dentro de energía	27	3,5365E-05		

Tabla 7. Prueba de Student de comparación de eficiencias de 63,29 y 1001,03 keV.

	63,29 keV	1001,03 keV
Media	0,063841114	0,03739893
Varianza	2,44116E-05	1,1514E-05
Observaciones	10	10
Diferencia hipotética de las medias	0	
Grados de libertad	16	
Estadístico t	13,95064059	
P(T<=t) una cola	1,12776E-10	
Valor crítico de t (una cola)	1,745883669	
P(T<=t) dos colas	2,25552E-10	
Valor crítico de t (dos colas)	2,119905285	

Dado que los dos fotopicos del Th-234 se encuentran muy cercanos entre sí y a la vez muy alejados del Pa-234, no es posible elaborar una curva de eficiencia polinomial por lo que se recomienda utilizar el método de interpolación para determinar las eficiencias con el Genie 2000.

En la Tabla 8 se puede observar que para ninguno de los ROIs o niveles energéticos estudiados, la actividad mínima detectable sobrepasa los 200 Becquerelios establecidos en la norma ISO-9978 por lo que el analista puede seleccionar cualquiera de los fotopicos en función de sus capacidades instrumentales y analíticas [7,8].

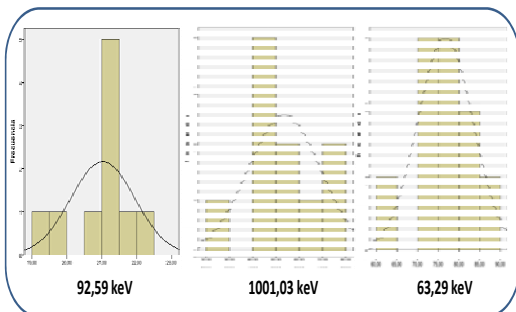


Figura 2. Distribución de la AMD en función de las energías del Th-234 y Pa-234.

Tabla 8. Actividad mínima detectable (Bq) de los fotopicos de Th-234 y Pa-234.

Replica	Energía (keV)		
	63,29	92,59	1001,03
1	75,34	20,73	59,53
2	72,52	21,19	41,39
3	76,42	19,39	79,03
4	71,87	21,07	47,44
5	78,32	21,48	48,63
6	87,83	21,21	65,24
7	64,09	19,60	53,05
8	81,72	21,47	23,85
9	83,91	22,31	70,08
10	74,55	21,87	47,87
Promedio	76,66	21,03	53,61
1 d.s.	6,75	0,92	15,70
Variabilidad	8,81%	4,37%	29,29%
Varianza	45,58	0,85	246,55

El análisis de varianza así como la prueba de Student muestran que entre los tres ROIs la actividad mínima detectable (AMD) son significativamente diferentes.

Tabla 9. Análisis de varianza de la actividad mínima detectable (AMD).

Origen de las varianzas	GL	Cuadrados Medios	F calculado	Valor crítico
Entre energías	2	7811,39529	79,99	3,35
Dentro de energía	27	97,6587996		

Tabla 10. Prueba de Student de comparación de AMD para 63,29 y 1001,03 keV.

	63,29 keV	1001,03 keV
Media	76,65752562	53,6114236
Varianza	45,57754698	246,552854
Observaciones	10	10
Diferencia hipotética de las medias	0	
Grados de libertad	12	
Estadístico t	4,263920538	
P(T<=t) una cola	0,000549928	
Valor crítico de t (una cola)	1,782287548	
P(T<=t) dos colas	0,001099856	
Valor crítico de t (dos colas)	2,178812827	

En la Figura 2 se presenta la distribución de las actividades mínimas detectables para cada uno de los niveles energéticos estudiados, destacando una baja AMD para 92,59 keV a pesar que dicha región se encuentra dentro de la zona Compton del espectro gamma. Por otro lado se puede verificar que no tienen una distribución gaussiana dado que los tiempos

de recuento son cortos, pero que sin embargo son suficientes para optimizar el tiempo de análisis de las muestras colectadas para las pruebas de hermeticidad.

4. Conclusiones

Dentro de los alcances de la norma ISO-9978, la espectrometría gamma de alta resolución constituye una herramienta útil, rápida y económica para identificar fugas de uranio empobrecido que no sobrepasen los 0,2 kilobequerelios utilizando para ello las emisiones gamma del Th-234 y Pa-234, radionucleídos que se encuentran en equilibrio secular con el U-238.

5. Agradecimientos

Al Instituto de Radioprotección y Dosimetría (IRD) de Brasil por su valioso aporte para la comprensión de los métodos analíticos por espectrometría gamma.

6. Bibliografía

- [1] Camilaesepu. Gammagrafía Industrial. [homepage de Internet]. Acceso 2013-03-14. Disponible en: <http://www.buenastareas.com/ensayos/Gammagraf%C3%ADa-Industrial/2077327.html>
- [2] Wikipedia. Uranio Empobrecido. [homepage de Internet]. Acceso 2013-03-14. Disponible en:

http://es.wikipedia.org/wiki/Uranio_empobrecido

- [3] Betti M. Civil use of depleted uranium. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2003; 64(2-3):113-119.
- [4] OSMAN. Fuente radiactiva sellada. Observatorio de salud y medio ambiente de Andalucía. Diccionario. [homepage de Internet]. Acceso 2013-03-14. Disponible en: <http://www.osman.es/ficha/12743>.
- [5] International Standard (1992). Radiation Protection – Sealed radioactive sources – leakage test methods. ISO 9978. First Edition. 1992-02-15. Page 8.
- [6] Browne E, Tuli JK. Nuclear Data Sheets for A = 234. *Nuclear Data Sheets*. 2007; 108(3):681-772.
- [7] Shoji M, Hamajima H, Takatsuka K, Honoki H, Nakajima T, Kondo T, Nakanishi T. A convenient method for discriminating between natural and depleted uranium by γ -ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*. 2001; 55(2):221-227.
- [8] Vukanac I, Novkovic D, Kandic A, Djurašević M, Milošević Z (2010) A simple method for determination of natural and depleted uranium in surface soil samples. *Applied Radiation and Isotopes*. 2010; 68: 1433-1434.