

“Interferencias del ^{60}Co y ^{137}Cs en la determinación de actividad alfa y beta mediante centelleo líquido”

***CARRERA: ESPECIALIZACIÓN EN RADIOQUÍMICA
Y APLICACIONES NUCLEARES***

Alumno: Ing. Lautaro Nicolás Massara

Director: Dr. Jorge Diodati

Co-director: Esp. Andrea Gabriela Rojas

Marzo 2018

Este trabajo no hubiera sido posible sin el apoyo de mis compañeros y amigos, por eso quiero agradecer:

A las autoridades de la Comisión Nacional de Energía Atómica por permitirme formarme profesionalmente y conocer y apasionarme por la vida nuclear y la radioquímica.

A la Decana del Instituto Dan Beninson, Lic. Carla Notari, al Director de la Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares, Dr. Juan Carlos Furnari, a la coordinadora, Mg. Sandra Siri y a todo el personal del instituto por su cálido acompañamiento a lo largo de mi cursada y la pasión depositada en cada una de las clases.

A mi director Dr. Jorge Diodati por su constante apoyo, dedicación y guía durante este proceso de formación. Por ser una guía indispensable en el desarrollo y armado de un trabajo completo y de relevancia.

A mi jefa y co-directora Esp. Andrea Gabriela Rojas de este trabajo por incentivar y fomentar el crecimiento personal y profesional de mi persona.

A mis compañeros del laboratorio de Dosimetría Personal y de Área del CAE, por su paciencia y ayuda cuando la necesité.

A Agustina, mi compañera de vida, bastión de cordura y amor en los menesteres diarios.

A mi familia, mis padres y mi hermana que siempre estuvieron presentes deseando mi felicidad y realización profesional y personal.

Y finalmente a la causalidad quien constantemente demuestra ser la regla a la que estamos sujetos.

Índice:

Capítulo 1: Introducción.....	4
Cobalto 60:.....	4
Cesio 137:.....	6
Objetivos:.....	8
Capítulo 2: Técnicas Instrumentales:.....	10
Centelleo líquido:.....	10
Principio de la técnica:.....	10
Interacciones de los rayos alfa, beta y gamma en conteo de centelleo líquido.....	12
Contador de centelleo líquido.....	13
Extinción (Quench) en el conteo por centelleo líquido.....	16
Espectrómetro gamma.....	18
Cristal semiconductor.....	19
Preamplificador y fuente de alta tensión.....	20
Amplificador.....	20
Convertidos análogo digital (ADC).....	21
Blindaje del detector.....	21
Sistema Criostato.....	22
Capítulo 3: Desarrollo.....	23
Etapa 1: Caso de estudio sobre una necesidad emergente dentro de la casa. Evaluando las particularidades y necesidades puntuales que puedan llegar a surgir.....	23
Preparación del centelleo líquido para el estudio del caso:.....	23
Etapa 2: la utilización de la los recursos de la casa para subsanar la necesidad.....	34
Medición en el equipo gamma:.....	34
Etapa 3: Implementación para el uso en el laboratorio.....	42
Incertidumbre:.....	42
Capítulo 4:.....	45
Conclusiones:.....	45
Bibliografía:.....	47

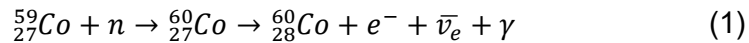
Capítulo 1: Introducción

Cobalto 60:

El ^{60}Co es un isotopo radioactivo del ^{59}Co (Natural) que es ampliamente usado en la industria.

El uso del ^{59}Co se remonta al antiguo Egipto, se consideraba un metal sin valor y su principal uso estaba ligado a la coloración de vidrios con tonos azulados. Es un metal dúctil gris plateado. Se utiliza en aleaciones de acero, motores de reacción, abrasivos y herramientas de carburo cementado. Su descubrimiento se le otorga a Georg Bandt, un químico sueco, en 1735. Él estaba intentando demostrar la capacidad de ciertos metales para colorear los vidrios de azul era debido a un elemento desconocido y no al Bismuto.

El ^{60}Co es un emisor beta-gamma con un periodo de semi-desintegración de 5,27 años. El ^{60}Co artificial se crea bombardeando un blanco de ^{59}Co con una fuente de neutrones lentos, normalmente ^{252}Cf moderados con agua para desacelerar los neutrones, o en un reactor nuclear como el CANDU, donde barras de acero se reemplazan por ^{59}Co como describe la ecuación (1). Los reactores tipo CANDU resultan muy eficientes para la producción de ^{60}Co , la Central Nuclear Embalse posee un reactor de este tipo y ubica a la Argentina como uno de los principales productores de ^{60}Co en el mundo.



Posee dos decaimientos principales, el decaimiento β - y la transición isomérica. Con una energía beta promedio de 0,096 MeV y una energía máxima de 0,318 MeV con una probabilidad del 99%. También posee rayo gamma de 1,33 MeV (100%) y otro de 1,17 MeV (100%).

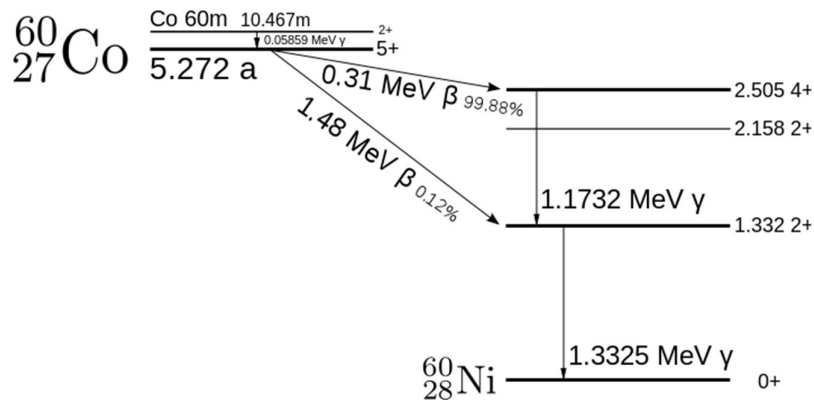


Figura 1. Esquema de decaimiento del ^{60}Co

Su tiempo biológico es de 0,5 días (Compartimiento de transferencia), 6 días (0,6 en todos los tejidos), 60 días (0,2 en todos los tejidos), 800 días (0,2 en todos los tejidos).

Luego de ingresar al organismo la mayor cantidad de ^{60}Co se excreta por heces, una pequeña cantidad es absorbida por los riñones, hígado y huesos.

Entre sus usos podemos destacar:

- ✧ Trazador para reacciones con Cobalto
- ✧ Fuente de radiación para radioterapia. La cobalto terapia es ampliamente usada desde 1950.
- ✧ Fuente de radiación para la técnica del insecto estéril.
- ✧ Fuente de radiación para medidores de nivel y espesor.
- ✧ Fuente de radiación para radiografía industrial.

Debido a los numerosos usos y en particular a lo variado de los usuarios que van desde industrias que los utilizan como herramientas hasta la radioterapia, donde la dosis es una de las variables de trabajo, se notificaron accidentes con fuentes de ^{60}Co .

Como es utilizado para aleaciones de acero se encontraron casos de aceros contaminados ^[1] e incidentes con fuentes de uso médico descartadas ^[2] ^[3].

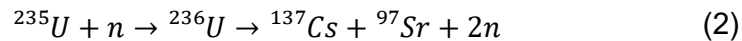
Cesio 137:

El ^{137}Cs es uno de los productos más comunes en el proceso de fisión del uranio en reactores nucleares y explosiones de armas nucleares.

Dentro de los de productos de fisión de periodo de semi-desintegración corto-medio es el más problemático, puede propagarse por la naturaleza fácilmente debido a la alta solubilidad en agua de las sales de cesio.

El cesio natural fue descubierto por Robert Bunsen y por Gustav Kirchhoff en el año 1860 mediante el uso del espectroscopio, al encontrar dos líneas brillantes de color azul en el espectro del carbonato de cesio y del cloruro de cesio. Dichas sales de cesio fueron aisladas por Robert Bunsen, precipitándolas en el agua mineral. A pesar de los intentos infructuosos de Bunsen por aislar el elemento en su forma metálica, hubo que esperar hasta 1862 para que Carl Setterberg pudiera aislarlo mediante electrólisis del cianuro de cesio fundido.

El ^{137}Cs se produce principalmente en los reactores por la fisión del uranio. Como se encuentra en uno de los máximos de la curva de distribución de los fragmentos de fisión es un producto inevitable en la fisión del uranio. Con un proceso de generación que puede adecuarse a la reacción (2), aunque posee otras vías de generación más complejas.



El ^{137}Cs es un emisor beta-gamma decae emitiendo partículas beta, una de ellas con una energía máxima en 0,514 MeV y una energía promedio de 0,17 MeV (94,4%) y el segundo con 1,18 MeV de energía máxima y con una energía promedio de 0,417 MeV (5,6%). El decaimiento mediante partículas beta es hacia un isómero metaestable del bario, el responsable de las emisiones de rayos gamma. Los rayos gamma poseen una energía 0,662 MeV (85,1%). Posee un periodo de semi-desintegración de 30,17 años.

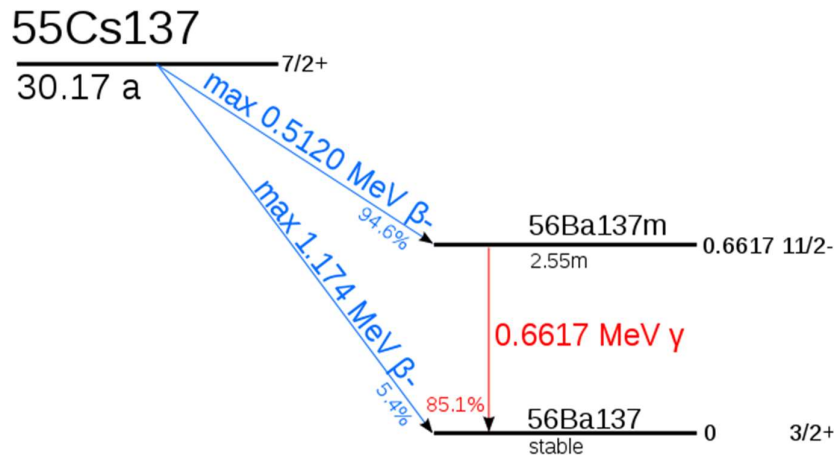


Figura 2. Esquema de decaimiento ^{137}Cs

Su tiempo biológico es de aproximadamente 70 días y es aquí donde se presenta el mayor riesgo para los humanos. Metabólicamente se comporta como el potasio y el rubidio esto genera que se distribuya de forma uniforme por todo el cuerpo.

Esto sumado a su facilidad para ser transportado por agua (como hidróxido de cesio) o aire. En caso de ser ingerido puede ser tratado con azul de prusia que se une químicamente al cesio y disminuye el tiempo biológico a 30 días.

El riesgo ambiental del ^{137}Cs también es importante. La mayor parte de ^{137}Cs en el ambiente está dada por las pruebas de armas nucleares, el accidente de Chernóbil y Fukushima.

Es la principal fuente de radiación en la zona de aislamiento de Chernóbil y lo seguirá siendo por los siguientes 100 años.

La vía ecológica principal es: Pasto -> Vaca -> Leche -> Humano.

Principales usos del ^{137}Cs :

- * Braquiterapia
- * Radiotrazador
- * Medidores de nivel
- * Medidores de densidad

Objetivos:

Dentro del variado marco de las necesidades que pueden surgir en el Laboratorio de Dosimetría Personal y de Área (DPA) ubicado en el Centro Atómico Ezeiza perteneciente a la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). Es importante contar con las herramientas y las capacidades para hacer una correcta evaluación ante las necesidades de la CNEA, en particular cuando es necesaria una respuesta ante una situación de emergencia.

En DPA se realizan determinaciones alfa, beta y se incorporó recientemente las mediciones gamma. A pesar de haber nacido para cumplir con el propósito de medir personal expuesto (principalmente polvos de uranio). Con el tiempo se fue ampliando el rango de trabajo y debido a los bajos límites de detección que requieren los controles dosimétricos la posibilidad de medir muestras ambientales fue una transición natural. Actualmente se realizan mediciones de uranio por fluorimetría en orinas, aguas, suelos, filtros de aire, filtros de superficie, hisopos y heces. Determinaciones de actividad alfa y beta en aguas, suelos y filtros de aire. Y determinaciones de actividad gamma en aguas y suelos.

En situaciones de emergencia el equilibrio entre la calidad de un resultado y el tiempo necesarios para ese resultado juegan un papel crítico, además de que las condiciones que puede suscitarse en una emergencia pueden no ser las planificadas.

En base a lo expuesto previamente, a las necesidades del laboratorio de DPA que se encuentra alineado con los objetivos estratégicos de la CNEA se plantearon los siguientes objetivos:

- * Estudiar el comportamiento de los radionucleidos ^{60}Co y ^{137}Cs en las mediciones por centelleo líquido (LSC).
- * Evaluar, si es posible, la combinación de los métodos (LSC y espectrometría gamma) para obtener un resultado acorde a las necesidades de la situación.
- * Verificación de las soluciones planteadas en el punto anterior y evaluar si son aplicables en la rutina del laboratorio.

Los tres objetivos planteados responden a necesidades puntuales:

- 1) El caso de estudio sobre una necesidad emergente dentro de la casa. Evaluando las particularidades y necesidades puntuales que puedan llegar a surgir.
- 2) Con el estudio realizado, la utilización de los recursos de la casa para subsanar la necesidad.
- 3) La aplicación en el día a día o cuando sea solicitada.

La idea de estos tres objetivos es, adicionalmente, demostrar de forma práctica que el desarrollo es una parte esencial para la resolución de problemas en el día a día.

Capítulo 2: Técnicas Instrumentales:

El presente trabajo utilizó dos técnicas instrumentales para la medición de radioisótopos. El contador de centelleo líquido (LSC) que fue utilizado para realizar las mediciones alfa y beta y el espectrómetro gamma para las mediciones de rayos gamma. Se describen brevemente a continuación.

Centelleo líquido:



Figura 3. Equipo de LSC utilizado (PerkinElmer Tri-Carb 3110 TR)

Principio de la técnica:

Ciertos compuestos orgánicos emiten luz fluorescente cuando son bombardeados con radiación nuclear. La fluorescencia o fotones emitidos por los compuestos orgánicos son llevados a un tubo fotomultiplicador y luego se mide el pulso eléctrico generado. La técnica de centelleo líquido involucra poner la muestra con emisores radiactivos en un contenedor de plástico o vidrio, llamado vial de centelleo al cual se le agrega un coctel especial de centelleo. Los viales de plástico y de vidrio tienen ciertas ventajas y desventajas relacionadas con los fondos, permeabilidad de los solventes, fragilidad, transparencia, etc.

El Coctel: Está compuesto de solventes como di-isopropil-naftaleno (DIN), pseudocumeno, o alquilbenceno lineal combinados con un soluto de fluoróforo como 2,5 difenil oxazola (PPO) disuelto en concentraciones de 2-10g por Litro.

Cuando las muestras son disueltas en la solución acuosa tres compuestos químicos diferentes son necesarios en el coctel: solvente orgánico, centellador orgánico y surfactante (emulsificador). La elección del solvente, centellador y surfactante para la preparación está relacionada con las zonas de energía que

van a ser analizadas. También existen requisitos de seguridad, bajos costos, bajos flashpoints, baja toxicidad.

La muestra que contiene actividad es colocada con el coctel de centelleo para formar una solución homogénea para el conteo. El proceso de centelleo líquido es el que ocurre en la Figura 4.

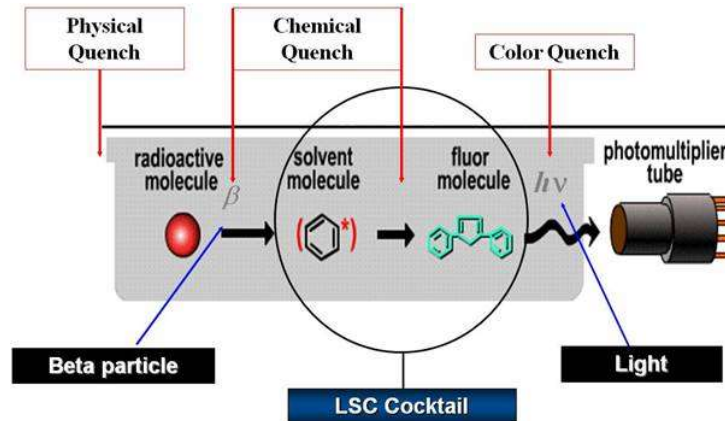


Figura 4. Interacción de la partícula beta con el cóctel de centelleo y el fototubo

El primer paso es la interacción de la radiación con las moléculas del solvente del coctel de centelleo líquido. Estas moléculas del solvente son compuestos orgánicos que poseen al menos un anillo aromático.

Estas moléculas del solvente que están en mayor proporción que el fluoróforo en el coctel, captan fácilmente la energía liberada por la radiación en los procesos de decaimiento. El resultado es la formación de moléculas del solvente orgánico activadas, que transfieren su energía al centellador orgánico. Los centelladores orgánicos son elegidos porque son solubles en el solvente orgánico, pueden captar fácilmente la energía de las moléculas del solvente orgánico activado y producen una molécula de centellador activada.

Estas moléculas de centellador activadas rápidamente pierden su energía y vuelven a su estado original a través de un mecanismo de fluorescencia. La energía es entregada como un destello de luz con longitud de onda entre 375 a 430 nm por cada proceso de decaimiento radiactivo Figura 5.



Figura 5. Interacción dentro del cóctel.

La longitud de onda depende del centellador disuelto en el coctel con PPO. La intensidad o brillo del destello de luz dependen de la energía del decaimiento y el tipo de decaimiento radiactivo.

Interacciones de los rayos alfa, beta y gamma en conteo de centelleo líquido.

El proceso de centello y la luz que se produce son diferentes para los procesos de decaimiento alfa, beta y gamma. El rango de energías para los decaimientos alfa va de 2 a 8 MeV. Cuando ocurre el decaimiento alfa en el coctel de centelleo líquido, la partícula alfa interactúa con el flúor del coctel para producir luz (aproximadamente 1 fotón por keV de energía original de decaimiento). La intensidad de luz es convertida en un pulso eléctrico de magnitud proporcional a la intensidad de la luz mediante un tubo fotomultiplicador.

Si comparamos el alcance de la trayectoria en centímetros de una partícula alfa de 5 MeV y una beta de 0,2 MeV. La partícula alfa viaja 0.0053 cm aproximadamente mientras que la beta 0.046 cm.

Como la partícula alfa tiene más masa y más carga comparada con la partícula beta esto es responsable para el alcance reducido que tiene la partícula alfa y la excitación y transferencia de energía menos eficiente hacia el solvente y el flúor. Las partículas alfas terminan produciendo luz en el coctel de centellador de un décimo de la intensidad comparada con la producida por las partículas beta. Sin embargo, para las partículas alfa que son mono energéticas se aprecia un pico de energía para cada decaimiento, con una ubicación aproximada de un décimo de su energía original de decaimiento.

Una partícula de 5 MeV se detecta en la zona de 500keV en el coctel de centelleo líquido. En consecuencia los pulsos de alfa y de beta se solapan en el espectro y esto genera complicaciones para la interpretación de la información. A pesar de esto, los decaimientos alfa y beta poseen diferente duración de pulso en el centellador, lo que permite discriminarlos. Los pulsos alfa son 30-40 ns más largos que los pulsos producidos por las partículas beta. Debido a esta característica es posible discriminar pulsos beta y alfa simultáneamente.

La eficiencia de conteo es aproximadamente 100% para casi todos los decaimientos alfa usando un cóctel de centelleo líquido. Debido a su característica de pico y a su decaimiento más lento, las partículas alfa pueden ser discriminadas fácilmente de otros decaimientos radiactivos en el analizador de centelleo líquido.

El segundo decaimiento más común es la producción de partículas beta. El decaimiento beta puede ser en forma de emisión de un neutrón o un positrón.

Durante el proceso de decaimiento beta, un neutrón es convertido a protón y a un electrón (partícula beta negativa) y un antineutrino.

La cantidad de energía total liberada en el decaimiento beta esta compartida entre la partícula beta y el neutrino. El rango total de energía es descrito como E_{max} , que es la máxima energía que puede ser entregada en el proceso de decaimiento. La energía de decaimiento esta compartida entre la partícula beta y el neutrino, pero solo la partícula beta puede ser detectada por el equipo. Esto tiene como resultado un espectro beta que se inicia en energía 0 y se extiende hasta la E_{max} .

Diez fotones de luz son creados por cada keV de energía de decaimiento beta. Debido a lo ancho de los espectros beta pueden ser reconocidos fácilmente.

La eficiencia de detección de las partículas beta depende de la energía original del decaimiento. Para la mayoría de las partículas con decaimiento beta mayor a 100keV la eficiencia esta entre el 90-100% este porcentaje cae al rango de 10 a 60 % dependiendo del grado de extinción (quench) de la muestra.

Otro proceso de decaimiento nuclear es el proceso de emisión de rayos gamma. El rayo gamma no es una partícula, es radiación electromagnética. El rango general de energías para los rayos gamma está entre los 50 y 1500 keV. La emisión de rayos gamma está acompañada por decaimiento alfa, beta, captura electrónica, Bremsstrahlung o emisión de rayos X son detectados por el contador de centelleo líquido, no es el rayo gamma lo que es detectado directamente, si no las partículas alfa, beta o electrones atómicos (Auger y electrones de conversión interna) que puede ser producidos durante cualquier proceso de decaimiento que ocurra en el cóctel. Los rayos gamma pueden producir electrones Compton a pesar de que estas interacciones son menos importantes en magnitud para el flúor que se encuentra en el líquido. En general, la radiación electromagnética genera una contribución minoritaria a la excitación en el coctel de centelleo.

Contador de centelleo líquido.

El proceso de centelleo líquido involucra la conversión de la energía del decaimiento nuclear en destellos de luz, en este caso el equipo utilizado es un PerkinElmer Tri-Carb 3110 TR. Para cuantificar un evento de decaimiento nuclear un contador de centelleo debe ser capaz de realizar las siguientes tareas:

- 1) Detectar los destellos de luz que ocurren en el vial de centelleo con un coctel que incluye flúor o un centellador solido (SPA), debe poder determinar la intensidad y el número de destellos de luz
- 2) Contener muchos viales de centelleo de distintos tamaños

- 3) Procesar diferentes condiciones de conteo y programas de conteo (un solo radionucleido, varios radionucleidos, configuraciones de quenching, DPM directoy Cherenkov)
- 4) Procesar información de destellos de luz por minuto a conteo por minuto (CPM)

La tarea más importante para un analizador de centelleo es la detección y cuantificación de números de destellos de luz y su correspondiente intensidad. El diagrama de bloques de la Figura 6 ilustra el funcionamiento del LSC. Tres componentes básicos del LSC los detectores, el circuito de conteo y el circuito de clasificación.

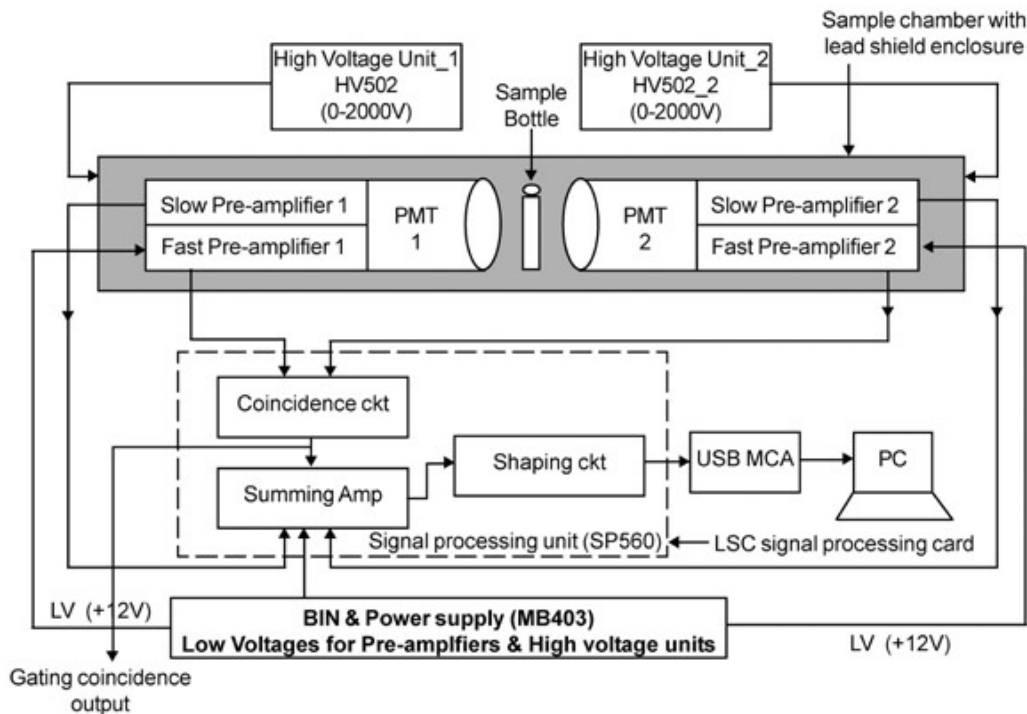


Figura 6. Electrónica del LSC

El vial pasa por una cámara intermedia y luego llega a la cámara de medición, la ventaja de este sistema es que permite mantener al tubo fotomultiplicador (PMT por sus siglas en inglés) prendido todo el tiempo y de esta forma puede estabilizar el fondo.

El tubo fotomultiplicador convierte la luz de los fotones emitidos por el vial de centelleo líquido a electrones cuando la luz de los fotones impacta un fotocátodo bialcalino localizado dentro de la cara del PMT como es ilustrado en la Figura 7.

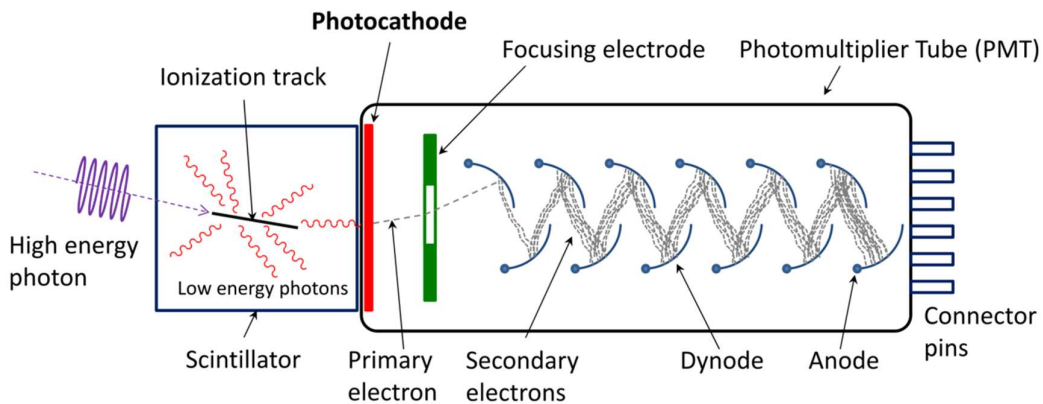


Figura 7. Tubo fotomultiplicador

Los electrones producidos en el fotocátodo del PMT son amplificados a través de una serie de dinodos cargados positivamente, cada uno de los dinodos con un incremento en voltaje positivo que poseen. El aumento de voltaje acelera los fotoelectrones iniciales producidos en el fotocátodo del PMT para producir una avalancha de electrones, resultando en la amplificación del pulso. La luz que es producida en el vial de centelleo, es convertida a una señal electrónica. Debido a que la luz producida es poca (10 fotones por keV de energía absorbida en el flúor del coctel) el PMT debe ser capaz de amplificarla por un gran factor. Este factor es aproximadamente 10 millones de veces para un PMT estándar utilizado en LSC.

Dos PMT son utilizados para la medición de la intensidad de luz para el proceso de decaimiento nuclear en el vial. Los dos PMT permiten la detección de la luz por coincidencia y la suma por coincidencia de pulsos requerida para el LSC para ser capaz de detectar radionucleidos de baja energía (como el tritio) y para poder distinguir el fondo del instrumento de los eventos de decaimiento reales.

En el LSC, dos PMT y un circuito de coincidencia son utilizados para diferenciar señales de fondo de eventos de decaimiento nuclear verdaderos. Con una utilización del sistema de PMT en coincidencia se reducen el fondo del instrumento desde las 10000 CPM (con un solo PMT) a 30 CPM (con 2 PMT). La señal del PMT que es enviada al circuito de coincidencia además posee la altura del pulso que refleja y es proporcional a la energía original de decaimiento.

Luego esos pulsos contados son llevados al circuito suma. El mismo tiene un propósito dual. Primero: Reconponer las dos señales originales en una señal individual con su intensidad sumada. Esto ayuda a optimizar la relación ruido – señal en el equipo.

La segunda es compensar la variación de la intensidad de luz debido a la posición del destello en el vial. Si se utiliza solo uno de los PMT para muestras coloreadas, la intensidad depende de la posición en el vial. En cambio utilizando dos PMT y sumando la señal final, el pulso final producido por los PMTs no es afectado por la posición o el color de la muestra.

Luego para la suma de pulsos en el LSC, la señal es amplificada nuevamente y enviada al convertidos analógico digital (ADC). El ADC convierte la señal de analógica, que es un pulso con una cierta altura, a un solo número que representa la altura del pulso o la intensidad. Los pulsos digitales son finalmente almacenados ordenados en base a magnitud o altura de pulso en número. El ordenamiento puede ocurrir en dos métodos: Análisis de la altura de pulso (PHA) o análisis multicanal (MCA).

Todos los pulsos recolectados por el MCA no solo son contados sino que también son analizados en términos de números y su altura. Tanto que ahora se habla de analizador de centelleo líquido (LSA) más que de contador de centelleo líquido.

Extinción (Quench) en el conteo por centelleo líquido.

En el conteo por centelleo líquido la muestra o esta disuelta en el cóctel de centelleo líquido o absorbida en un centellador sólido dentro de un vial o micro placa. El conteo de la muestra depende de que tan eficientemente los eventos del decaimiento nuclear sean convertidos en destellos de luz que son detectados y cuantificados por el LSA. Debido a que la solución de la muestra está siempre presente, esta puede absorber energía del decaimiento nuclear o fotones de luz que se produjeron en el cóctel de centelleo. Esto genera el fenómeno llamado Extinción (Quench). Podemos definir la extinción como la interferencia de la conversión de energía de decaimiento que es producida en el cóctel de centelleo líquido. La extinción suele ser producto de dos razones principales: 1) La presencia de uno o más químicos en el cóctel que se mezclan con la muestra y 2) Una sustancia coloreada que proviene de la muestra.

El principal mecanismo de extinción es el químico. La extinción química ocurre por una sustancia química en la muestra que absorbe la energía de excitación de la molécula al solvente excitado, impidiendo de este modo la transferencia de energía proveniente del decaimiento nuclear hacia el PPO.

Una forma de corrección del espectro de quench sobre la eficiencia de medición es la utilización de un parámetro externo que genere fotones extinguidos como los de la muestra, como el tSIE (Transformed External Standard Spectrum o Índice espectral transformado del estándar externo).

Otras interferencias a tener en cuenta en el centelleo líquido:

- A. Fondo de radiación
- B. Extinción (química y de color)
- C. Mezclas de radionucleidos
- D. Luminiscencia
- E. Estática
- F. Efecto pared

Espectrómetro gamma

El sistema de espectrometría empleado consta de un conjunto de dispositivos especialmente diseñados para la medición de fotones gamma en muestras con bajo nivel de actividad. [4]



Figura 8. Espectrómetro gamma utilizado para realizar las mediciones

El principal elemento del sistema de medida es el detector, consistente en un cristal semiconductor de germanio de alta pureza, sobre el que se aplica una diferencia de potencial elevada, a fin de establecer un intenso campo eléctrico. La radiación gamma de energía E_{gamma} procedente de la muestra interacciona con el detector GeHP (Figura 9) mediante los procesos característicos de altas energías: efecto fotoeléctrico, Compton o producción de pares. La energía E depositada por el fotón se transforma en portadores de carga electrón-hueco, que bajo la acción del campo eléctrico generan un pulso de corriente proporcional a dicha energía.

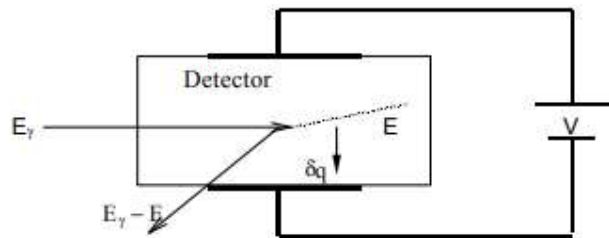


Figura 9. Representación esquemática de la interacción de la emisión gamma con el detector

El detector está conectado a una cadena electrónica convencional (Figura 10) que amplifica la señal eléctrica, y en última instancia genera el espectro de radiación gamma. El preamplificador y el amplificador dan forma y amplifican linealmente el pulso eléctrico. El convertidor analógico digital (ADC) transforma la señal analógica en un dígito, denominado canal C, proporcional al voltaje máximo del pulso, y por tanto proporcional también a la energía E depositada por la radiación en el detector. La señal digital es procesada por un PC que genera el espectro gamma $n(C)$, consistente en la representación del número n de detecciones para cada canal C.

El espectro de una muestra que emite un conjunto de energías gamma consiste en un continuo, procedente fundamentalmente de las radiaciones que depositan su energía parcialmente mediante efectos Compton simple y múltiples, sobre el cual se sitúan los fotopicos, generados tras cesión total de la energía del fotón. La posición de un fotopico en un espectro es proporcional a la energía del fotón gamma que lo origina.

A continuación, se describirán los distintos elementos que constituyen nuestro sistema de espectrometría. Se pondrá especial énfasis en detallar aquellos aspectos esenciales, tanto de diseño como de funcionamiento, que permiten efectuar la medida de los radionúclidos gamma con el sistema de espectrometría.

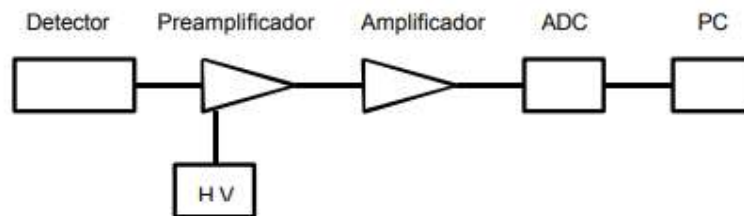


Figura 10. Representación de la cadena electrónica asociada al sistema de espectrometría.

Cristal semiconductor

El detector consiste en un cristal semiconductor de germanio hiperpuro (1 átomo de impureza por cada 10^{12} átomos de Ge), modelo GC6020 de la marca CANBERRA. Se trata de un detector coaxial de 69 mm de diámetro y 69 mm de altura. La configuración de diodo p-i-n y el elevado campo eléctrico que se genera en la configuración coaxial del detector lo hacen idóneo para la espectrometría gamma.

El detector funciona enfriado a la temperatura de licuefacción del nitrógeno (77 K), a fin de minimizar las corrientes de pérdida que se generan a temperatura ambiente, que reducirían la resolución energética.

El voltaje de trabajo del detector es de 4000 V, siendo de 3500 V el voltaje de zona reducida, es decir, el voltaje que permite extender el campo eléctrico a la totalidad del volumen del detector.

El detector es sensible a fotones en el rango energético 40 keV-10 MeV. La relación entre el número de cuentas en el canal de fotópico para la emisión de 1332 keV (^{60}Co) y el promedio del continuo Compton en el intervalo energético 1040-1096 keV, denominada razón Pico/Compton del detector, es 73,9. La eficiencia relativa a un detector NaI(Tl) de 7.62 cm x 7.62 cm es del 61,4 %, para el citado fotón de 1332 keV emitido por una muestra puntual situada a 25 cm del detector, y la resolución, expresada mediante la anchura a la mitad de altura del fotópico (FWHM) a dicha energía es de 1,793 keV [5].

Preamplificador y fuente de alta tensión

El detector de germanio de alta pureza está conectado a un preamplificador modelo 2002CSL de la marca CANBERRA. El preamplificador tiene como finalidad transformar el pulso de carga en un pulso de voltaje. Con objeto de minimizar la atenuación de tales pulsos en su recorrido desde el detector hasta el preamplificador, ambos dispositivos se instalan juntos, en el criostato. El enfriamiento del preamplificador disminuye su ruido electrónico, lo que contribuye a mejorar la resolución del sistema de espectrometría. Además, el preamplificador adapta la alta impedancia del detector con la baja impedancia del cable coaxial que comunica las señales con el resto de la cadena electrónica, a fin de evitar las reflexiones del pulso eléctrico.

El preamplificador incluye la fuente de voltaje, modelo 3106D de la marca CANBERRA, que se encarga de establecer el campo eléctrico en el interior del detector. Dicha fuente de alta tensión proporciona voltajes en el intervalo 0-5000 V, siendo el voltaje óptimo de operación en nuestro caso de 3500 V. Con objeto de evitar los daños que la corriente de pérdida produciría en el semiconductor a temperatura ambiente, la fuente de tensión incorpora un inhibidor de voltaje de forma que cuando el detector se calienta, debido a que se acaba el nitrógeno líquido, el voltaje se reduce a cero automáticamente.

Amplificador

Las señales del preamplificador van al amplificador, modelo 9615 de la marca CANBERRA, cuyas dos funciones son las de amplificar y dar forma conveniente al pulso eléctrico. El amplificador dispone de los siguientes dispositivos.

1. Ajuste de la ganancia de amplificación G. Se ha escogido la amplificación de forma que el espectro recoja el rango energético 0-2000 keV, suficiente para determinar las emisiones gamma ambientales.

2. Eliminador de pulsos por apilamiento, P.U.R. (Pile Up Rejector). Es un dispositivo que no cuenta los pulsos que están claramente distorsionados como consecuencia del apilamiento.
3. Tiempo de formación del pulso (Shaping time). El amplificador cuenta con un selector de tiempos de formación de pulso, "Shaping time", en el intervalo 0.5-12 ms, habiéndose establecido el valor del "Shaping time" en 4 ms.

Convertidor análogo digital (ADC)

El Convertidor analógico digital, ADC, es el dispositivo que determina la altura de los pulsos eléctricos procedentes del amplificador, transformando la señal analógica en un dígito, denominado canal, proporcional al voltaje máximo de dicha señal.

El sistema dispone de un ADC del tipo 9635 (CANBERRA), en el que se ha seleccionado una ganancia de conversión de 4096 canales. Este valor proporciona una anchura adecuada de los fotopicos del espectro, en el intervalo de 4 a 12 canales (dependiendo de la energía de la emisión).

El Convertidor Analógico Digital es un dispositivo relativamente lento, en comparación con el resto de los elementos de la cadena electrónica. Durante el tiempo en el cual el ADC procesa la señal, no puede llegar ningún otro pulso, de forma que el dispositivo introduce un tiempo muerto, que debe ser evaluado al objeto de corregirse las tasas de recuento. Para ello, el ADC dispone de un contador de tiempo vivo (live time meter), que determina la fracción del tiempo en la cual el equipo se encuentra midiendo. El cálculo de tasas de recuento se efectúa con el tiempo vivo, que en medidas de baja actividad coincide prácticamente con el tiempo real. El tiempo muerto aparece para tasas de recuento moderadas o altas, como ocurre en la medida de patrones radiactivos.

Una vez digitalizado el pulso, se incrementa en una unidad el número de cuentas almacenado en la dirección de memoria del PC, asociada al canal correspondiente. La representación del número de cuentas para cada canal constituye el espectro diferencial de altura de pulsos, o simplemente espectro gamma. Hemos empleado el programa informático software GENIE-2000, que trabaja en entorno WINDOWS, para visualizar y controlar el estado de la adquisición de los espectros.

Blindaje del detector

El sistema, dispone de un blindaje consistente en un receptáculo aproximadamente cúbico, cuyas paredes son de plomo, de un grosor de 15 cm (Figura 11) Se ha demostrado que para un detector de germanio de eficiencia relativa del 10 %, la tasa de recuento de fondo en el intervalo 50-3000 keV se

reduce en dos órdenes de magnitud [6]. El espesor de 15 cm es óptimo, dado que un espesor mayor generaría una componente de radiación inducida, como consecuencia de las emisiones gamma producto de la interacción de los rayos cósmicos con el blindaje.

La cara interior del blindaje se ha cubierto con una capa superficial de cobre, de 1 mm, para atenuar la radiación de fluorescencia de rayos X inducida en el plomo, cuya energía está comprendida en el intervalo 70-80 keV.

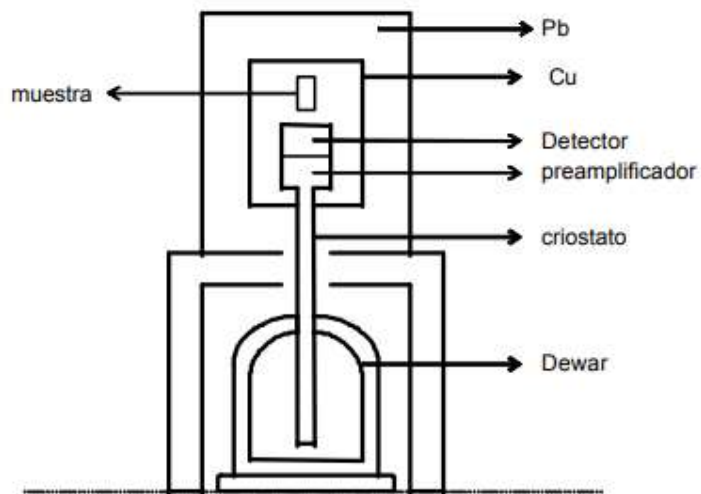


Figura 11. Esquema del detector y blindaje

Sistema Criostato.

El enfriamiento del detector y del preamplificador se consigue incorporando ambos dispositivos en el criostato, que se encuentra en contacto directo con el nitrógeno líquido contenido en el Dewar (Figura 11), cuya capacidad es de 30 Litros. El contenido de nitrógeno disminuye a medida que se evapora, debido al flujo de calor desde el exterior a temperatura ambiente, con lo cual, con una periodicidad semanal, es preciso reponer el volumen de nitrógeno. Para ello se dispone de otro tanque portátil de la misma capacidad, cuyo contenido se trasvasa al recipiente fijo mediante la inyección de nitrógeno gaseoso de gran pureza a presión.

Capítulo 3: Desarrollo

Etapa 1: Caso de estudio sobre una necesidad emergente dentro de la CNAE. Evaluando las particularidades y necesidades puntuales que puedan llegar a surgir.

Preparación del centelleo líquido para el estudio del caso:

Se procedió a preparar un protocolo nuevo de medición bajo las condiciones de la experiencia. Las muestras fueron medidas en 5 mL de HNO₃ 0,5 M con 15 mL de cóctel Ultima Gold AB, siendo estos junto con el CCl₄ los únicos reactivos utilizados. El objetivo de la creación del protocolo es obtener un valor de PSA (Pulse Shape Analyzer) [7] acorde a las condiciones de conteo dadas. Para esto se procedió a colocar 370 Bq de ²⁴¹Am, solución proveniente del Laboratorio de Metrología de Radioisótopos (LMR) en un vial y denominado como α. Un segundo vial con 391 Bq de ⁹⁰Sr y ⁹⁰Y en equilibrio solución también proporcionada por el LMR y denominado como β. Ambos llevados a 5 mL de volumen con HNO₃ y luego fueron agregados 15 mL de cóctel (Ultima Gold AB). Los resultados obtenidos se presentan en la Figura 12.

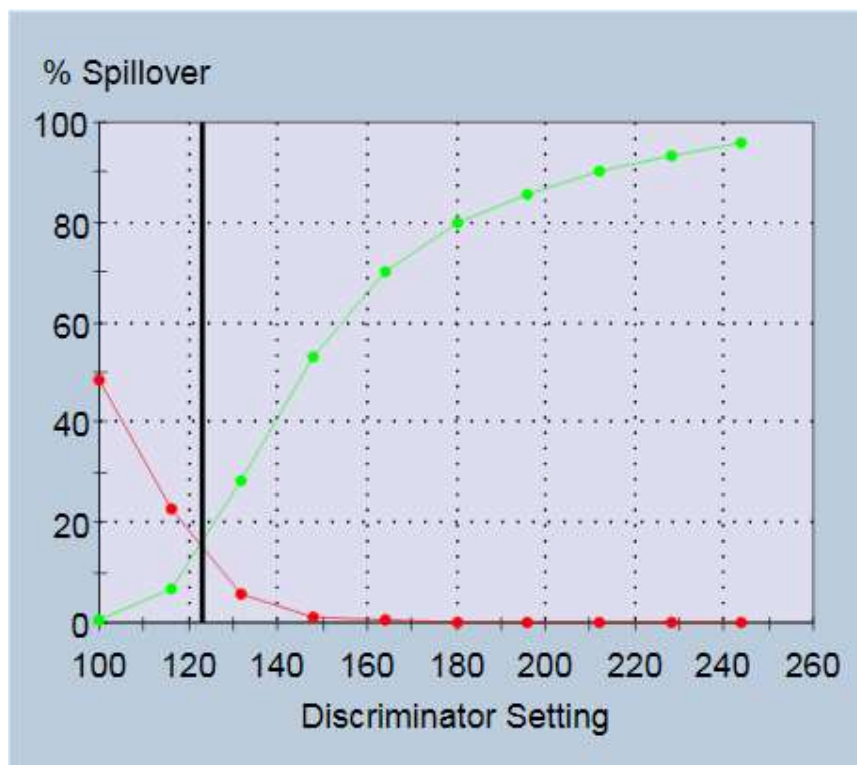


Figura 12. Configuración obtenida por el discriminador

El cálculo proporcionado por el discriminador no es suficiente para la correcta separación de los pulsos alfa-beta, debido a que la extinción (Quench) de la

muestra afecta la producción de los pulsos. Es necesario realizar una curva de extinción para obtener una correcta separación de los pulsos. Para la curva de extinción se tomaron dos viales con 370 Bq de ^{241}Am (α puro) en un vial y el segundo vial con 391 Bq de ^{90}Sr y ^{90}Y (β puro) en equilibrio. Utilizando la misma relación de muestra / cóctel se procedió a medir. Se procedió a medir ambos viales y se le fueron agregando 10 μL de CCl_4 luego de cada medición un total de 5 veces obteniendo 6 puntos totales para la curvar de extinción los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 1.

alfa			
70-300 α [CPM]	70-300 β [CPM]	Spillover β	tSIE
9303	1359	0,13	390
9253	1632	0,15	370
9232	1872	0,17	351
8984	2110	0,19	341
8508	2300	0,21	333
8433	2400	0,22	324
beta			
5-2000 α [CPM]	5-2000 β [CPM]	Spillover α	tSIE
3250	19101	0,15	381
3100	19025	0,14	370
3051	18933	0,14	358
2884	19146	0,13	350
2775	19197	0,13	342
2589	19316	0,12	335

Tabla 1. Resultados de la curva de extinción

El spillover se calcula mediante la ecuación 3 para α y 4 para β ^[8]

$$X_{\alpha} = \frac{B_0}{A_0 + B_0} \quad (3)$$

$$X_{\beta} = \frac{A_0}{A_0 + B_0} \quad (4)$$

Dónde:

X_{α} : Es el spillover alfa, las cuentas alfas contadas erróneamente como betas.

X_{β} : Es el spillover beta, las cuentas betas contadas erróneamente como alfas.

B_0 : Son las cuentas beta del MCA beta.

A_0 : Son las cuentas alfa del MCA alfa.

Debido a que cada uno de los viales solo posee actividad de un tipo (α o β) todas las cuentas que entren dentro del otro MCA son cuentas que el equipo clasifico de forma incorrecta. Con esta información se generan las curvas de extinción. Para ambos casos con los valores de spillover obtenidos para α y β se trazó una regresión lineal. Se optó por una regresión lineal en ambos casos debido lo acotado del rango de trabajo, para casos de rango de trabajo más amplio es posible que se requiera de otro ajuste.

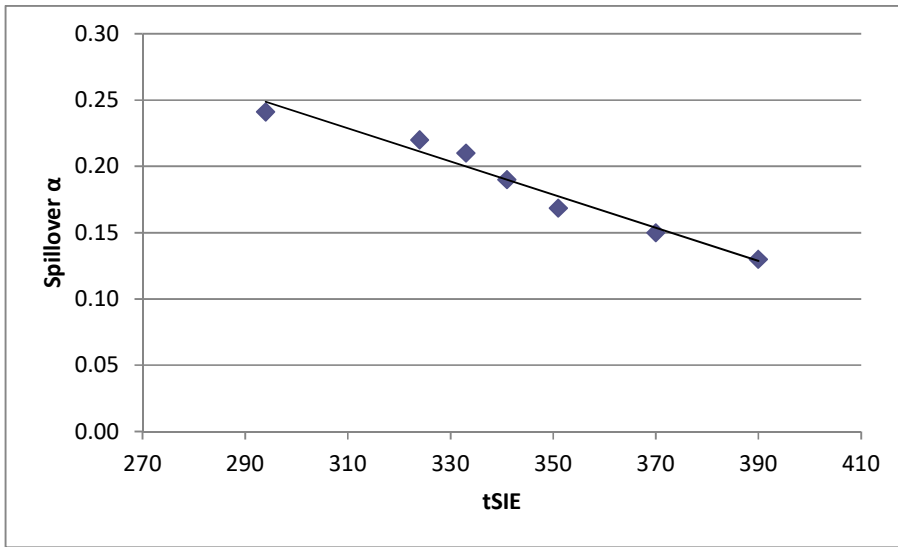


Figura 13. Curva de regresión para el spillover α (X_α)

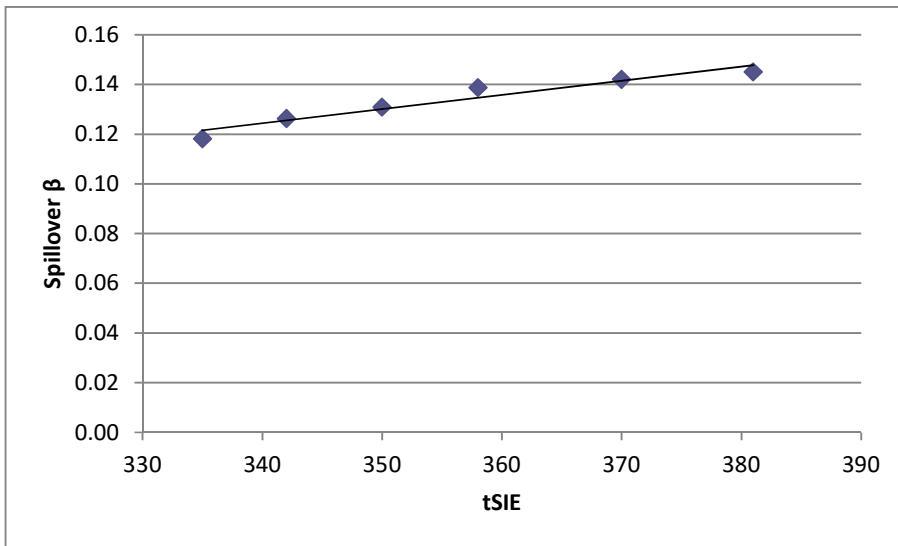


Figura 14. Curva de regresión para el spillover β (X_β)

Las regresiones obtenidas para cada spillover fueron:

$$X_\alpha = -1,3 \cdot 10^{-3} \cdot tSIE + 6,2 \cdot 10^{-1} \quad (5)$$

$$X_{\beta} = 6.10^{-4} \cdot tSIE - 7,0.10^{-2} \quad (6)$$

Con el discriminador fijado en 122 y las curvas de extinción obtenida, se procedió a la primera serie de mediciones. La primera serie posee viales con:

α (solo)	β (solo)	$\alpha + \beta$
$\alpha + {}^{60}\text{Co}$	$\beta + {}^{60}\text{Co}$	$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$
$\alpha + {}^{137}\text{Cs}$	$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$

Las regiones de medición elegidas fueron de 70 a 300 keV para la región alfa y 5 a 2000 keV para la región beta. El equipo cuenta con una eficiencia de medición de 105% para alfa y 90 % para beta. Los resultados obtenidos de la primera serie fueron:

Vial	Actividad Colocada [Bq/vial]			
	alfa (${}^{241}\text{Am}$)	beta (${}^{90}\text{Sr}+{}^{90}\text{Y}$)	${}^{60}\text{Co}$	${}^{137}\text{Cs}$
α	48,2			
$\alpha + {}^{60}\text{Co}$	47,3		85,3	
$\alpha + \text{Cs}$	44,7			57,4
β		59,2		
$\beta + {}^{60}\text{Co}$		49,9	74,0	
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$		56,7		61,8
$\alpha + \beta$	48,4	54,7		
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	48,2	64,5	65,9	
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	49,2	46,6		59,9

Tabla 2. Actividad Colocada en etapa uno

	Cuentas medidas [CPM]				tSIE
	70-300 α	70-300 β	5-2000 α	5-2000 β	
α	2701	136	3015	187	385
$\alpha + {}^{60}\text{Co}$	2809	474	2952	4206	389
$\alpha + \text{Cs}$	2733	1967	2790	5266	390
β	62	1205	607	2943	386
$\beta + {}^{60}\text{Co}$	79	1327	641	5712	385
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	171	3125	743	8353	386
$\alpha + \beta$	2925	1182	1554	2615	385
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	2974	1666	3613	6028	386
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	3111	2865	3113	6965	383

Tabla 3. Cuentas obtenidas del LSC y tSIE

	Spillovers		Cuantificado			
	X_α	X_β	Actividad medida			
			Cuentas Corregidas [CPM]	α [Bq/Vial]	Cuentas Corregidas [CPM]	β [Bq/Vial]
α	0,12	0,16	3119	49,51		
$\alpha + {}^{60}\text{Co}$	0,11	0,16	3146	49,94	5082	94,12
$\alpha + \text{Cs}$	0,11	0,16	2714	43,08	6153	113,95
β	0,12	0,16			3405	63,07
$\beta + {}^{60}\text{Co}$	0,12	0,16			6769	125,36
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	0,12	0,16			9714	179,90
$\alpha + \beta$	0,12	0,16	3146	49,94	3003	55,63
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	0,12	0,16	3088	49,02	7107	131,61
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	0,12	0,16	3002	47,66	8027	148,66

Tabla 4. Valores cuantificados

	Medido/Colocado	
	alfa	beta
α	103%	
$\alpha + {}^{60}\text{Co}$	106%	
$\alpha + \text{Cs}$	96%	
β		107%
$\beta + {}^{60}\text{Co}$		250%
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$		317%
$\alpha + \beta$	103%	102%
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	102%	204%
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	97%	319%

Tabla 5. Medido / Colocado

El cálculo de las cuentas corregidas se realizó según la siguiente ecuación [6]:

$$CPM_{acr\alpha} = \frac{(CPM_{ar\alpha} - CPM_{ar\alpha} \cdot X_\beta - CPM_{br\alpha} \cdot X_\beta)}{(1 - X_\beta - X_\alpha)} \quad (7)$$

$$CPM_{bc\beta} = \frac{(CPM_{br\beta} - CPM_{br\beta} \cdot X_\alpha - CPM_{ar\beta} \cdot X_\alpha)}{(1 - X_\beta - X_\alpha)} \quad (8)$$

Dónde:

$CPM_{acr\alpha}$: Cuentas alfa corregidas en la región alfa

$CPM_{ar\alpha}$: Cuentas alfa en la región alfa

$CPM_{br\alpha}$: Cuentas beta en la región alfa

$CPM_{bc\beta}$: Cuentas beta corregidas en la región beta

$CPM_{\beta r \beta}$: Cuentas beta en la región beta

$CPM_{\alpha r \beta}$: Cuentas alfa en la región beta

X_{α} : Spillover alfa

X_{β} : Spillover beta

Se realizó la cuantificación final obtenida en el vial utilizando la siguiente ecuación:

$$Act_{\alpha} = \frac{CPM_{\alpha cr \alpha}}{Eff_{\alpha} \cdot 60} \quad (9)$$

$$Act_{\beta} = \frac{CPM_{\beta cr \beta}}{Eff_{\beta} \cdot 60} \quad (10)$$

Dónde:

Act_{α} : Es la actividad alfa

Act_{β} : Es la actividad beta

Eff_{α} : Es la eficiencia α del equipo

Eff_{β} : Es la eficiencia β del equipo

En las Tablas 4 y 5 se puede observar que el efecto del ^{60}Co y ^{137}Cs en las mediciones alfa es controlado correctamente por la separación que realiza el contador de centelleo líquido, el espectro generado por el ^{60}Co (Figura 16) no interfiere de forma significativa y la separación de pulsos es eficiente. En el caso del ^{137}Cs el impacto es un poco mayor por el tipo de espectro que presenta (Figura 17). Posee un pico cercano a la zona delimitada como región alfa (70-300 keV) generando un aumento significativo en el conteo beta de esa misma región.

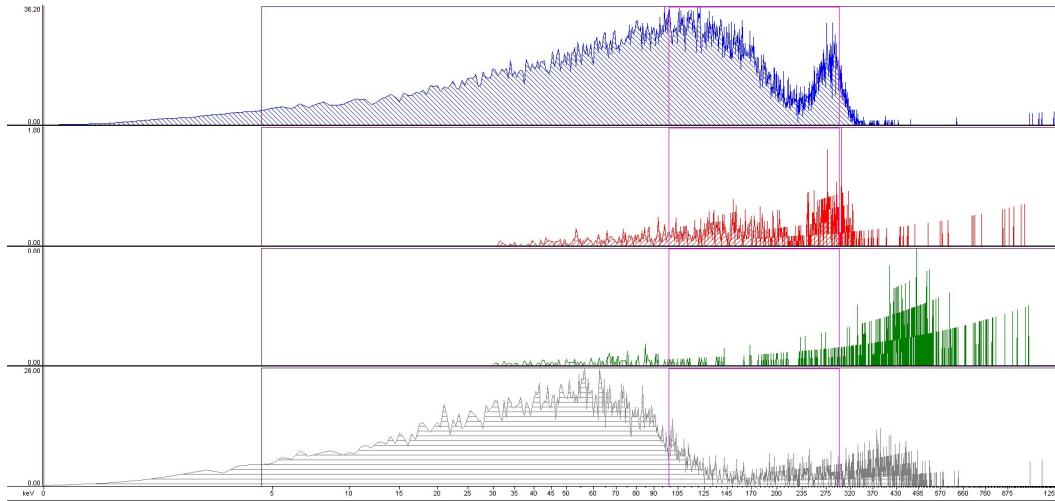


Figura 15. De arriba hacia abajo ^{137}Cs (Espectro β y α), ^{60}Co (Espectro α y β).

En la Figura 15 se presentan al ^{60}Co y ^{137}Cs puros.

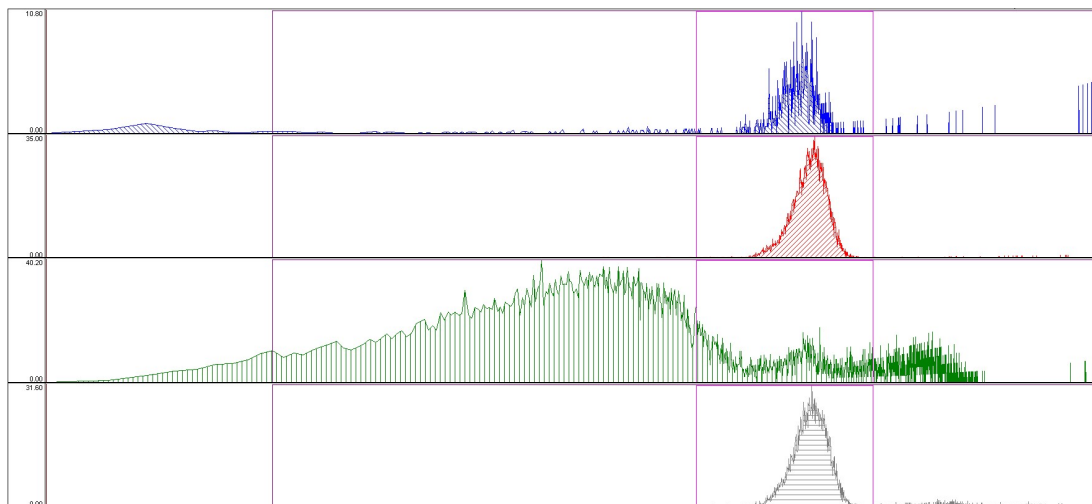


Figura 16. De arriba hacia abajo α puro (espectro β y α) y $\alpha + ^{60}\text{Co}$ (Espectro β y α)

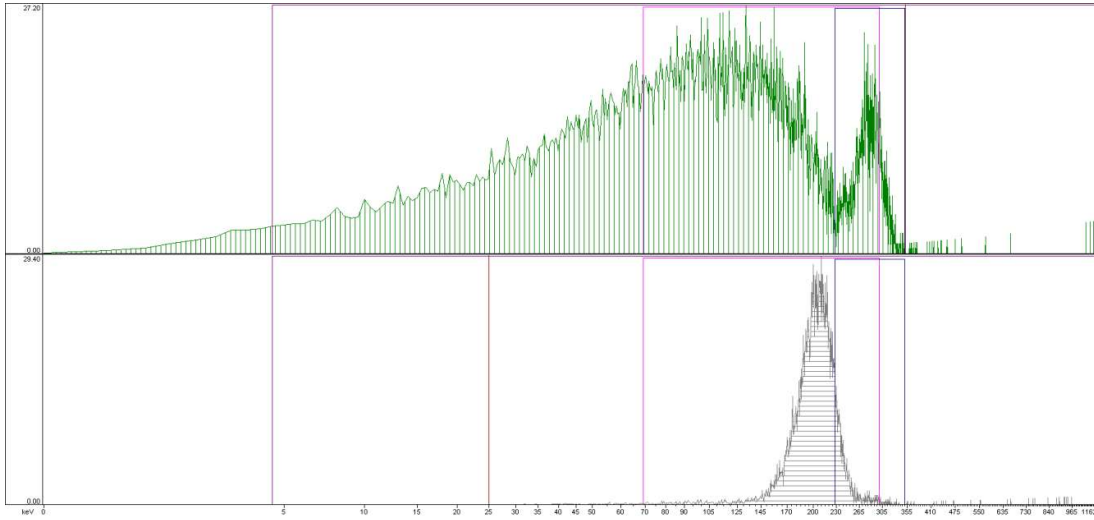


Figura 17. De arriba hacia abajo ^{137}Cs (Espectro β y α).

El ^{137}Cs posee un espectro característico lo que permite una identificación más sencilla respecto del ^{60}Co . Pero esta característica hace que resulte más fácil confundir el pico característico que posee al final del espectro con un crecimiento beta debido a un alfa por una discriminación incorrecta del equipo.

Para los viales preparados con alfa, beta y un emisor gamma los resultados en alfa son similares, la discriminación del equipo continúa siendo eficiente. Los espectros obtenidos demuestran el solapamiento entre las emisiones del ^{90}Sr e ^{90}Y y los decaimientos producidos por el ^{60}Co y ^{137}Cs .

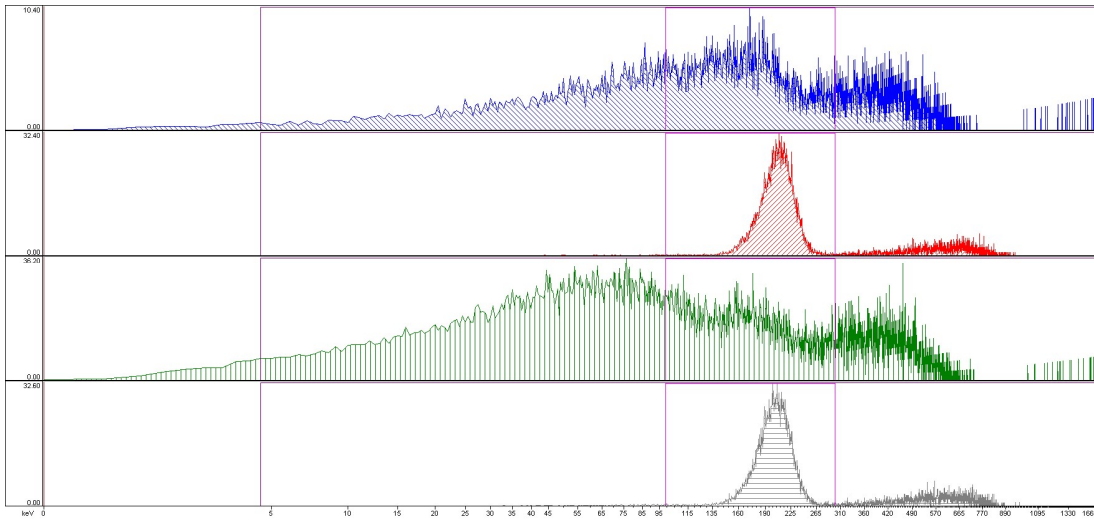


Figura 18. De arriba hacia abajo: $\alpha + \beta$ (Espectro β y α) y $\alpha + \beta + ^{60}\text{Co}$ (Espectro β y α)

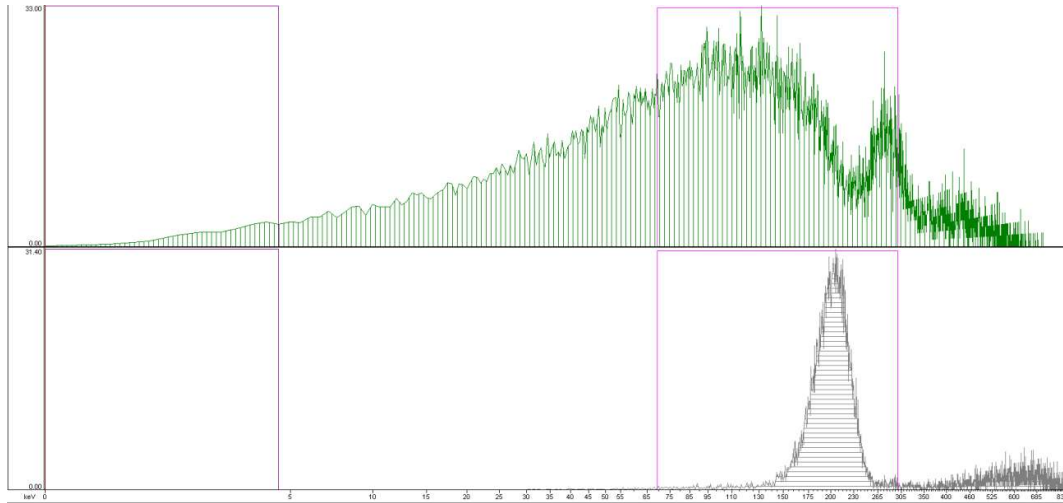


Figura 19. De arriba hacia abajo $\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$ (Espectro β y α)

En cuanto al análisis de los espectros beta surge el mayor de los inconvenientes, el ${}^{60}\text{Co}$ y ${}^{137}\text{Cs}$ poseen un decaimiento beta seguido por el decaimiento gamma, lo imposibilita la medición de otros radionucleidos con decaimiento beta, obteniendo en el mejor de los casos un beta total. En la Figura 18 y la Figura 20 se puede observar los emisores beta totalmente solapados, el espectro del ${}^{60}\text{Co}$ se acopla en la región de 5 a 130 keV mientras que el ${}^{90}\text{Sr}$ e ${}^{90}\text{Y}$ comienza a crecer alrededor de los 25keV, haciendo imposible (al menos solo utilizando el LSC) la discriminación de los dos emisores beta.

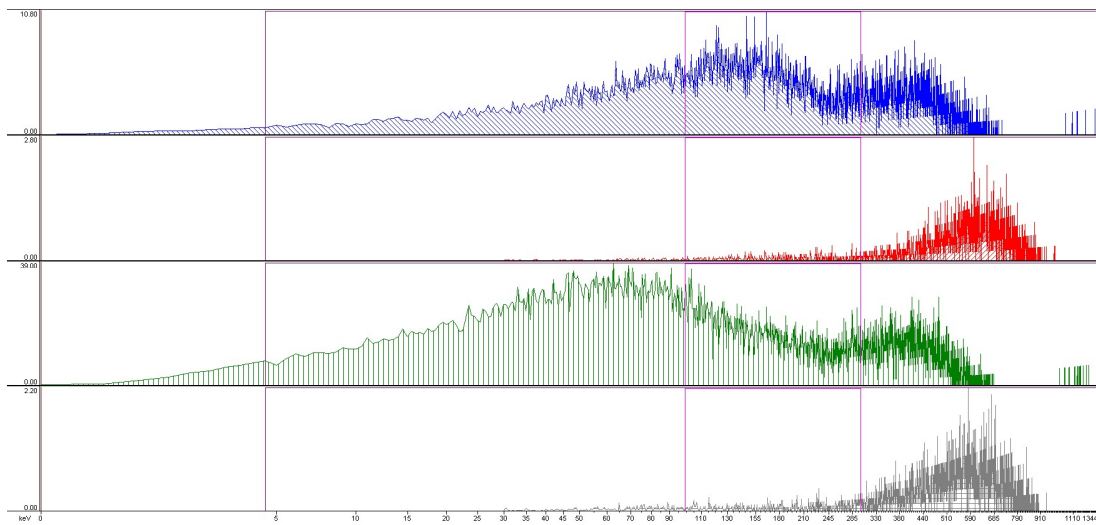


Figura 20. De arriba hacia abajo β (Espectro β y α) $\beta + {}^{60}\text{Co}$ (Espectro β y α)

En el caso del ${}^{137}\text{Cs}$ a pesar de que pueda prestar a confusión el pico que presenta en el espectro beta, una vez reconocido puede utilizarse como herramienta para identificar que la muestra posee ${}^{137}\text{Cs}$ (Figura 21).

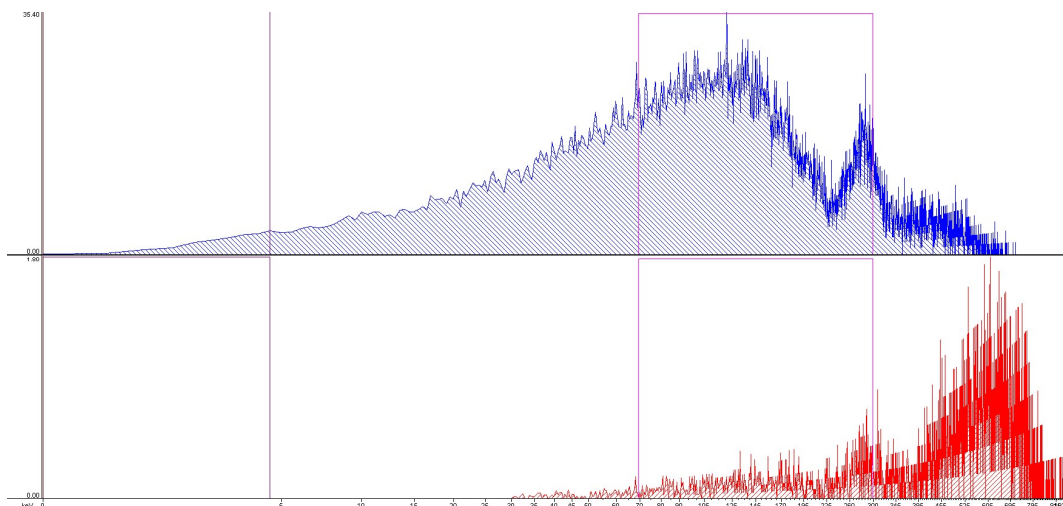


Figura 21. De arriba hacia abajo $\beta + ^{137}\text{Cs}$ (Espectro β y α)

Como estudio adicional se midieron las muestras en un LSC modelo 3180 que posee un sistema con germanato de bismuto (BGO) que cuando es sometido a rayos gamma emite fotones en la longitud de onda de 375 a 650 nm con un pico en 480 nm el equipo de centelleo liquido utiliza el pico producido por el germanato de bismuto para corregir el conteo medido. El principal objetivo de estas mediciones es comparar los resultados obtenidos con el modelo 3110 para verificar si existe una disminuci3n en el conteo beta. Debido a esto la evaluaci3n se enfoc3 en los espectros beta. Los resultados obtenidos se presentan en la en la Tabla 6:

	Conteo beta		Relaci3n
	Regi3n 5-2000 β [CPM]		3180/3110
^{60}Co	2920	1550	0.53
$\beta + ^{60}\text{Co 1}$	5324	4500	0.85
$\beta + ^{60}\text{Co 2}$	6760	6100	0.90
^{137}Cs	6835	6911	1.01
$\beta + ^{137}\text{Cs 1}$	8324	8879	1.07
$\beta + ^{137}\text{Cs 2}$	9184	9759	1.06

Tabla 6. Resultados Packard 3180 vs 3110

El Packard 3180 que cuenta con BGO demostr3 tener la capacidad de disminuir el conteo beta para las muestras con ^{60}Co como emisor gamma, siendo la muestra de ^{60}Co la m3s atenuada con un factor de 0,53 respecto del 3110 (Figura 22). Para el caso del ^{137}Cs no demostr3 ser eficiente en la separaci3n los conteos son igual (o superiores) a los obtenidos en el Packard 3110, la relaci3n es pr3cticamente 1 para las tres mediciones. Esto puede deberse al tipo de espectro beta que presenta el ^{137}Cs y la energ3a de la emisi3n (Figura 22).

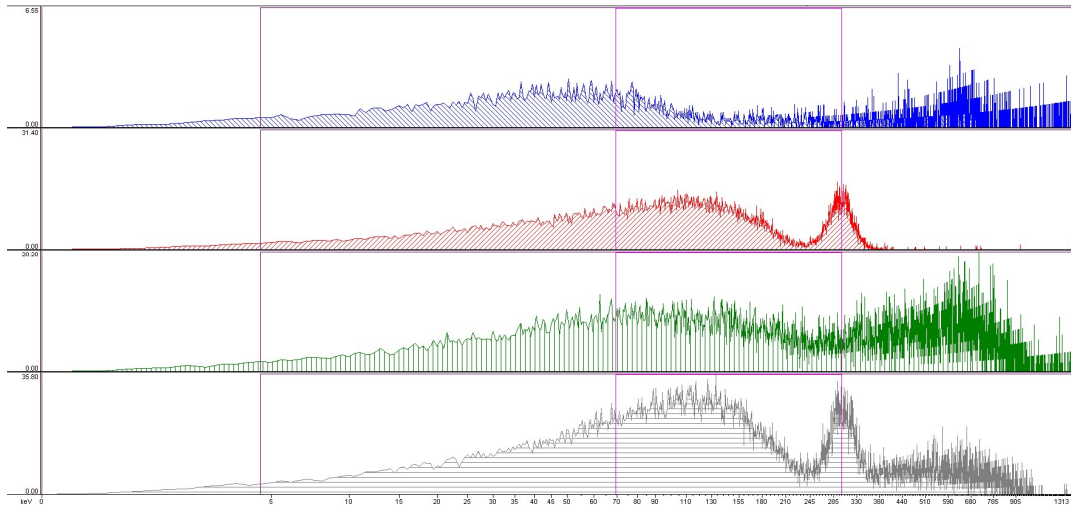


Figura 22. De arriba hacia abajo ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, β + ⁶⁰Co y β + ¹³⁷Cs (Todos espectros β)

Etapa 2: la utilización de la los recursos de la casa para subsanar la necesidad.

Medición en el equipo gamma:

Teniendo en consideración que los interferentes son emisores gamma, se propuso realizar las mediciones en el espectrómetro gamma, evaluar si existe una correlación entre lo medido en el LSC y el espectrómetro gamma y en caso de existir esa relación aplicar una corrección a la medición por centelleo líquido para obtener un resultado del beta total descontando el ^{60}Co o ^{137}Cs .

Para esta tarea se prepararon dos viales solo con ^{60}Co y ^{137}Cs , con una doble función, obtener un conteo beta en el LSC exclusivo de estos radionucleidos y generar un patrón con la geometría y el volumen necesario para medir los viales en el espectrómetro gamma. Para verificar estos resultados y teniendo en consideración que las mayores dificultades se presentan en el análisis de los espectros beta obtenidos por centelleo líquido, se prepararon cuatro muestras más. Las cuatro con ^{90}Sr e ^{90}Y con actividades entre 50 y 80 Bq/vial. A dos de estos viales se les agrego ^{60}Co con una actividad de aproximadamente 55 Bq/vial y a los dos restantes ^{137}Cs con actividades de aproximadamente 67 Bq/Vial. Se conservaron las regiones de medición y eficiencias de la etapa 1.

Los resultados obtenidos fueron los siguientes:

Actividades colocadas Bq/Vial			
	^{90}Sr e ^{90}Y	^{60}Co	^{60}Cs
^{60}Co		60,6	
$\beta + ^{60}\text{Co}$ 1	53,3	55,2	
$\beta + ^{60}\text{Co}$ 2	79,5	56,9	
^{137}Cs			78,5
$\beta + ^{137}\text{Cs}$ 1	48,1		67,8
$\beta + ^{137}\text{Cs}$ 2	62,8		67,7

Tabla 7. Actividades colocadas en Bq/Vial

Cuentas [CPM]					
	70-300 α	70-300 β	5-2000 α	5-2000 β	tSIE
^{60}Co	16	226	112	2770	378
$\beta + ^{60}\text{Co}$ 1	72	1285	657	5017	384
$\beta + ^{60}\text{Co}$ 2	92	1820	862	6325	380
^{137}Cs	145	2487	218	6835	381
$\beta + ^{137}\text{Cs}$ 1	186	2945	637	8055	362
$\beta + ^{137}\text{Cs}$ 2	180	3442	727	8529	388

Tabla 8. Cuentas obtenidas del LSC y tSIE

	Spillovers		Actividad medida	
	X_α	X_β	Cuentas Corregidas	β [Bq/Vial]
^{60}Co	0,13	0,16	3358	62,2
$\beta + ^{60}\text{Co 1}$	0,12	0,16	6026	111,6
$\beta + ^{60}\text{Co 2}$	0,13	0,16	7569	140,2
^{137}Cs	0,12	0,16	8310	153,9
$\beta + ^{137}\text{Cs 1}$	0,15	0,15	9605	177,9
$\beta + ^{137}\text{Cs 2}$	0,12	0,16	10337	191,4

Tabla 9. Valores cuantificados

	Medido gamma [Bq/Vial]		Relación gamma/beta	Medición LSC corregida [Bq/Vial]
	^{60}Co	^{137}Cs		
^{60}Co	60,6		0,97	
$\beta + ^{60}\text{Co 1}$	54,0			56,15
$\beta + ^{60}\text{Co 2}$	59,8			78,81
^{137}Cs		78,5	0,51	
$\beta + ^{137}\text{Cs 1}$		65,4		49,60
$\beta + ^{137}\text{Cs 2}$		66,2		61,64

Tabla 10. Medición gamma y corrección a la medición LSC

Para el caso de las mediciones en el espectrómetro gamma, se utilizaron los viales con ^{60}Co y ^{137}Cs (Canales para la cuantificación elegidos 3474 a 3795 para ^{60}Co y 1958 a 1974 para ^{137}Cs), puros como patrones para la cuantificación del resto de los viales. La cuantificación se realizó por comparación de áreas, los resultados obtenidos en el espectrómetro gamma fueron los siguientes:

		Espectrómetro gamma			Colocado [Bq/vial]		Medido [Bq/Vial]	
		cuentas en sus canales	T_m [s]	Cts/ T_m [Cps]	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs
Soluciones de referencia	^{60}Co	14502	12795	1,1334	60,6			
	^{137}Cs	228734	73079	3,1300		78,5		
Pruebas	$\beta + ^{60}\text{Co 1}$	4769	4673	1,0205	55,2		54,5	
	$\beta + ^{60}\text{Co 2}$	12516	11190	1,1185	56,9		59,8	
	$\beta + ^{137}\text{Cs 1}$	7684	2945	2,6092		67,8	65,4	
	$\beta + ^{137}\text{Cs 2}$	180810	68496	2,6397		67,7	66,2	

Tabla 11. Conteo y cuantificación en espectrometría gamma

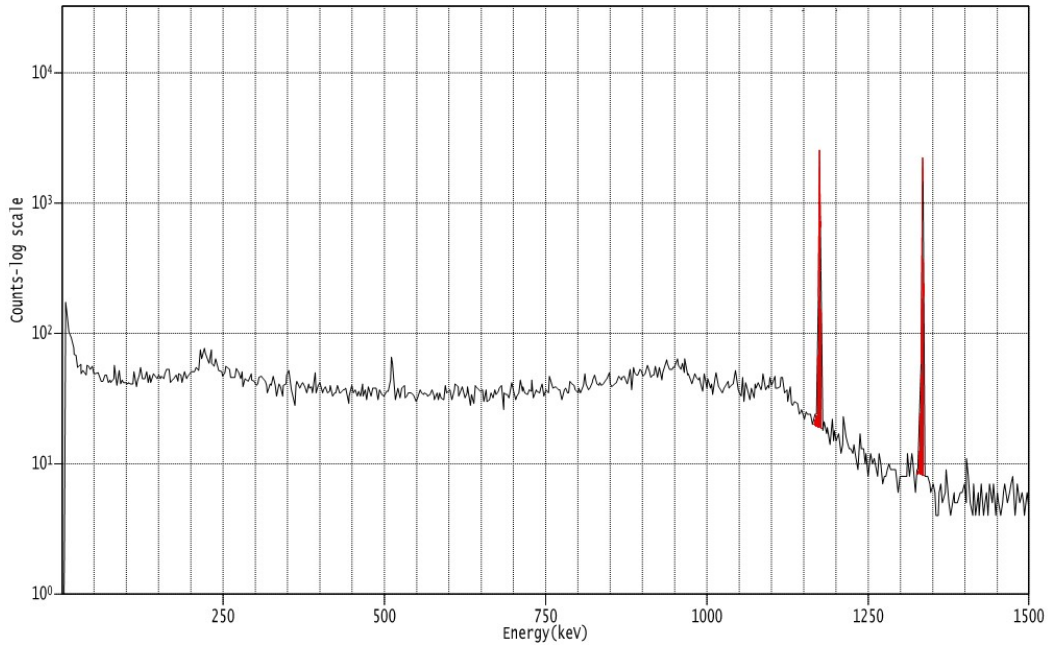


Figura 23. Patrón ^{60}Co

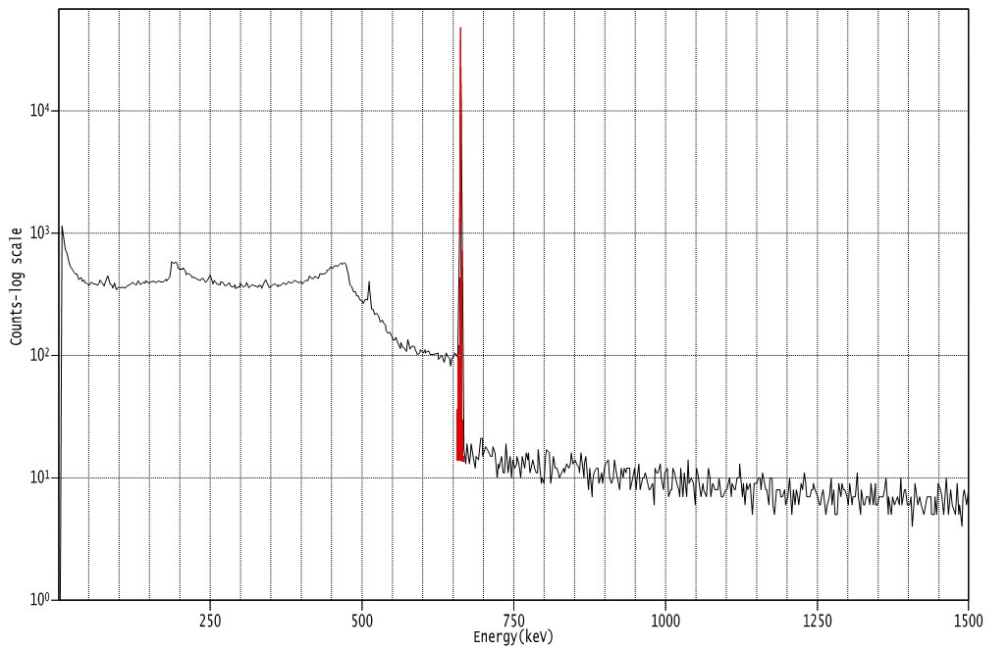


Figura 24. Patrón ^{137}Cs

Los valores cuantificados obtenidos mediante los patrones generados de ^{60}Co y ^{137}Cs (Figura 23 y 24) fueron satisfactorios para las incertidumbres de trabajo esperadas. Para la cuantificación se utilizó la siguiente ecuación:

$$Act_{\gamma} = \frac{C_m \cdot T_p}{C_p \cdot T_m} \cdot Act_p \quad (11)$$

Dónde:

Act_γ : Es la actividad gamma cuantificada

C_m : Es el conteo obtenido de la muestra

T_m : Es el tiempo de medición de la muestra

C_p : Es el conteo obtenido del patrón

T_p : Es el tiempo de medición del patrón

Act_p : Es la actividad colocada del patrón

Como parte de la experiencia se decidió utilizar tiempos de medición diferentes con el fin de evaluar si existía un impacto significativo en el cambio de esa variable. Por los resultados obtenidos se puede asumir que para estos niveles de actividad ($\approx 60\text{Bq/vial}$) y con un tiempo de medición de 1500 segundos se obtienen resultados satisfactorios. Esta última observación cobrará especial importancia en la Etapa 3, la implementación como herramienta a las necesidades de la casa en el laboratorio.

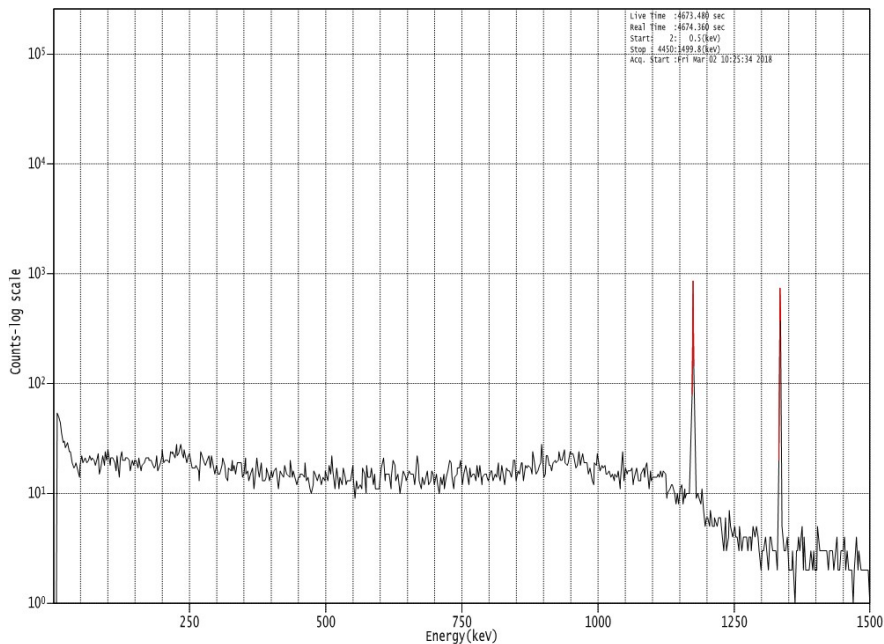


Figura 25. Espectro gamma de $\beta + {}^{60}\text{Co}$ 1

Los picos formados en el espectrómetro gamma resultaron nítidos y no presentaron complicaciones en la evaluación de las áreas (Figura 25 e 26).

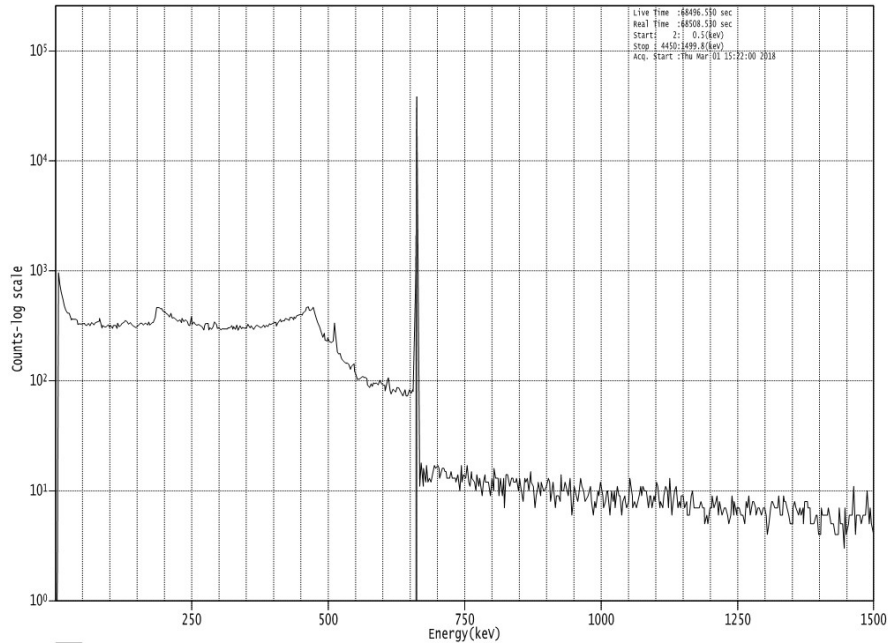


Figura 26. Espectro gamma de $\beta + {}^{137}\text{Cs } 2$

Los cálculos de cuentas corregidas y la cuantificación se realizaron utilizando las ecuaciones (8) y (10) por tratarse solo de la actividad beta. La relación gamma/beta se describe en la ecuación (12):

$$\frac{\gamma}{\beta} = \frac{Act_{\gamma}}{Act_{\beta}} \quad (12)$$

Dónde:

Act_{γ} : Es la actividad medida mediante espectrometría gamma.

Act_{β} : Es la actividad medida mediante LSC

En el caso del ${}^{60}\text{Co}$ y ${}^{137}\text{Cs}$ puros, la medición tiene como objeto obtener la relación entre las mediciones de los equipos para poder trasladar la actividad medida en el espectrómetro gamma a la actividad medida en el LSC. De esta forma es posible realizar una corrección en la actividad medida en el LSC. El valor obtenido para ${}^{60}\text{Co}$ fue muy cercano a 1 (0,97) (Tabla 12) en cambio para el caso del ${}^{137}\text{Cs}$ se obtuvo un valor de 0,51 (Tabla 12). En este último el nivel de interferencia generado por el ${}^{137}\text{Cs}$ es mayor, lo que implica que cantidades menores de ${}^{137}\text{Cs}$ interfieren de forma más significativa, afectando entre otros aspectos la mínima actividad detectable de la técnica, que nueva mente tendrá implicancias en la Etapa 3.

	Medido LSC [Bq/Vial]	Relación gamma/beta	Medición LSC corregida [Bq/Vial]
⁶⁰ Co	62,2	0,97	
β + ⁶⁰ Co 1	111,6		56,1
β + ⁶⁰ Co 2	140,2		78,8
¹³⁷ Cs	153,9	0,51	
β + ¹³⁷ Cs 1	177,9		49,6
β + ¹³⁷ Cs 2	191,4		61,6

Tabla 12. Mediciones gamma cuantificadas y relación gamma/beta

Con los valores de la relación beta/gamma obtenidos se procedió a realizar las correcciones de las cuatro muestras preparadas utilizando la ecuación (13)

$$Act_{LSC_{Cor}} = Act_{LSC_{tot}} - Act_{\gamma} \cdot \frac{\beta}{\gamma} \quad (13)$$

Dónde:

$Act_{LSC_{Cor}}$: Es la actividad obtenida en el LSC corregida

$Act_{LSC_{tot}}$: Es la actividad total obtenida mediante el LSC

Act_{γ} : Es la actividad obtenida mediante espectrometría gamma

En la Tabla 13 se presentan los resultados de la comparación de la $Act_{LSC_{Cor}}$ con la Actividad colocada de ⁹⁰Sr e ⁹⁰Y. Estos resultados se encuentran en la tabla 11 y 12 junto con los cocientes medidos para actividad gamma:

	Medido/Colocado	
	gamma	LSC (Corregido)
	⁶⁰ Co ¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr e ⁹⁰ Y
β + ⁶⁰ Co 1	98%	105%
β + ⁶⁰ Co 2	105%	99%
β + ¹³⁷ Cs 1	97%	103%
β + ¹³⁷ Cs 2	98%	98%

Tabla 13. Medido / Colocado

Los resultados obtenidos ya sea en la medición gamma o en el LSC corregido fueron satisfactorios. Las diferencias obtenidas entre colocado y medido se encuentran dentro de la incertidumbre de los métodos utilizados (que será detallada más adelante).

Se decidió medir por espectrometría gamma las muestras β y α + β utilizadas en la Etapa 1, para verificar con un mayor número de resultados. Los valores obtenidos por espectrometría gamma se detallan en la Tabla 14:

Espectrómetro gamma						
		Cuentas [Cts]	Tm [s]	Cts/Tm [cps]	Colocado Bq/vial	Medido Bq/Vial
Etapa 1	$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	78612	65000	1,209	65,9	64,6
	$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	10259	4387	2,339	59,9	58,6
	$\beta + {}^{60}\text{Co}$	2816	2090	1,347	74,0	72,0
	$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	4820	1950	2,471	61,8	62,0

Tabla 14. Resultados en espectrometría gamma muestras Etapa 1

La medición por espectrometría gamma proporcionó espectros sin interferencias, en el caso de los viales con actividad α y β se puede apreciar el pico de ${}^{241}\text{Am}$ en las energías de 49-70 keV (Figura 27 e 28). La cuantificación para el resto de las muestras se encuentra dentro de los parámetros aceptables considerando la incertidumbre asociada.

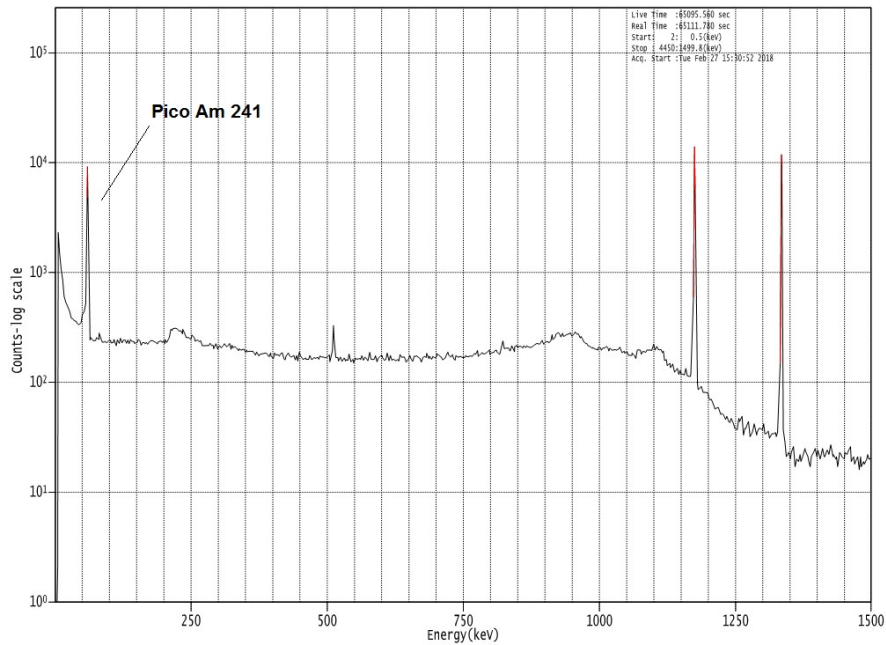


Figura 27. Espectro gamma de $\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$ Etapa 1

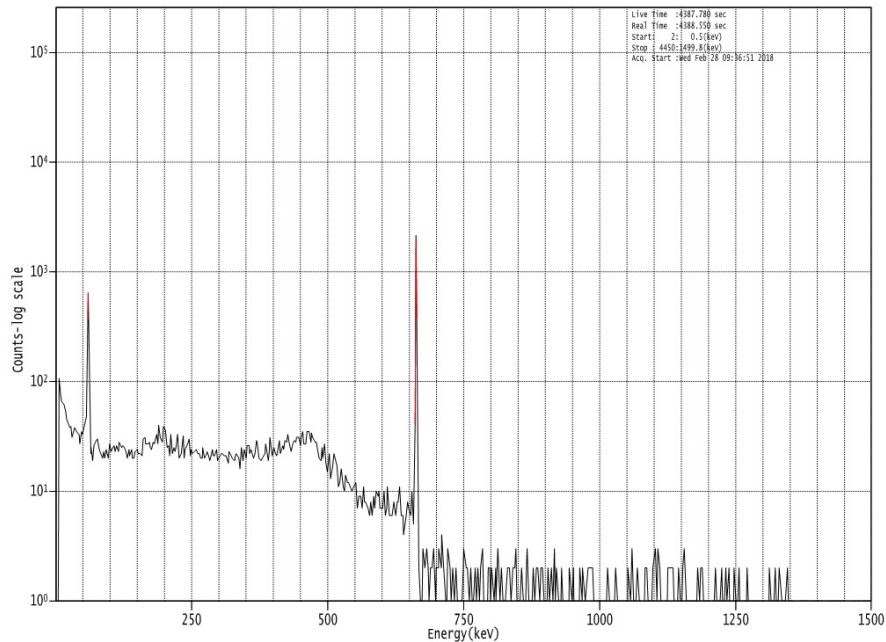


Figura 28. Espectro gamma de $\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$ Etapa 1

	Actividad medida LSC	Actividad medida gamma	Actividad LSC corregida
	beta [Bq/vial]	${}^{60}\text{Co}$ [Bq/Vial] ${}^{137}\text{Cs}$ [Bq/Vial]	beta [Bq/Vial]
$\beta + {}^{60}\text{Co}$	132,8	72,0	58,9
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	179,9	62,0	58,4
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$	131,6	64,6	65,3
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$	148,7	58,6	33,7

Tabla 15. Actividad medida por espectrometría gamma y LSC corregida

	Medido/Colocado			
	gamma		LSC (Corregido)	LSC (Sin corregir)
	${}^{60}\text{Co}$ [Bq/Vial]	${}^{137}\text{Cs}$ [Bq/Vial]	${}^{90}\text{Sr}$ e ${}^{90}\text{Y}$ [Bq/Vial]	${}^{90}\text{Sr}$ e ${}^{90}\text{Y}$ [Bq/Vial]
$\beta + {}^{60}\text{Co}$	97%		103%	250%
$\beta + {}^{137}\text{Cs}$	98%		103%	317%
$\alpha + \beta + {}^{60}\text{Co}$		100%	104%	204%
$\alpha + \beta + {}^{137}\text{Cs}$		98%	104%	319%

Tabla 16. Medido / Colocado en gamma, LSC corregido y sin corregir

Los resultados obtenidos sobre las muestras de la Etapa 1 fueron satisfactorios. Los factores $\frac{\gamma}{\beta}$ utilizados fueron los obtenidos en la Etapa 2 (0,97 para el ${}^{60}\text{Co}$ y 0,51 en el caso del ${}^{137}\text{Cs}$).

Etapas 3: Implementación para el uso en el laboratorio.

Incertidumbre:

La incertidumbre de la medición es un parámetro no negativo que caracteriza la dispersión de la cantidad de valores que se atribuyen a un mensurando, basándose en la información utilizada [9].

Para que el resultado de una medición este completo se le debe adjuntar intervalo de confianza de la medición asociada. Para la correcta evaluación de los parámetros de las Etapas 1 y 2 es necesario conocer los valores de incertidumbre, al menos a grandes rasgos, para delimitar de manera más certera si los resultados obtenidos son satisfactorios o no.

Existen numerosas maneras de calcular la incertidumbre (Nordtest [10], Fuente por fuente, derivadas parciales, experiencia en la técnica a evaluar, etc. [11]). Aprovechando las condiciones que ya fueron estudiadas en el laboratorio de DPA, el análisis de la incertidumbre para la Etapa 1 y 2 constara en la utilización de las herramientas brindadas en la nota técnica de IAEA 1401 [12] y la evaluación fuente por fuente que el laboratorio ya posee estudiada.

Las fuentes consideradas en centelleo líquido fueron:

- Volumen medido por las micropipetas y dispensador de cóctel.
- Incertidumbre de las soluciones de referencias
- Incertidumbre de las balanzas utilizadas
- Incertidumbre del conteo obtenido por centelleo liquido
- Incertidumbre de la curva de extinción

En el caso de espectrometría gamma:

- Volumen medido por las micropipetas y dispensador de cóctel.
- Incertidumbre de las soluciones de referencias
- Incertidumbre de las balanzas utilizadas
- Incertidumbre del conteo obtenido por espectrometría gamma

Para el caso de las muestras en centelleo líquido se obtuvo:

$$U_{Act_{\alpha/\beta}} = Act_{\alpha/\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{U_{V_m}}{V_m}\right)^2 + \left(\frac{U_{Act_{sr}}}{Act_{sr}}\right)^2 + \left(\frac{U_{P_b}}{P_b}\right)^2 + \left(\frac{U_{Cta_{LSC}}}{Cta_{LSC}}\right)^2 + \left(\frac{U_{tSIE}}{tSIE}\right)^2} \quad (14)$$

$$\frac{U_{Act_{\alpha/\beta}}}{Act_{\alpha/\beta}} = \sqrt{\left(\frac{0,001}{5}\right)^2 + \left(\frac{8}{300}\right)^2 + \left(\frac{0,0001}{0,1}\right)^2 + \left(\frac{25}{1500}\right)^2 + \left(\frac{3}{380}\right)^2} \quad (15)$$

$$\frac{U_{Act_{\alpha/\beta}}}{Act_{\alpha/\beta}} [=] \sqrt{\left(\frac{mL}{mL}\right)^2 + \left(\frac{Bq}{Bq}\right)^2 + \left(\frac{g}{g}\right)^2 + \left(\frac{CPM}{CPM}\right)^2 + \left(\frac{tSIE}{tSIE}\right)^2} \quad (16)$$

$$\frac{U_{Act_{\alpha/\beta}}}{Act_{\alpha/\beta}} = 3,2\% \quad (17)$$

La evaluación de la incertidumbre para la espectrometría gamma:

$$U_{Act_{\gamma}} = Act_{\gamma} \cdot \sqrt{\left(\frac{U_{V_m}}{V_m}\right)^2 + \left(\frac{U_{Act_{CS}}}{Act_{CS}}\right)^2 + \left(\frac{U_{P_b}}{P_b}\right)^2 + \left(\frac{U_{Cta_{\gamma}}}{Cta_{\gamma}}\right)^2} \quad (18)$$

$$\frac{U_{Act_{\gamma}}}{Act_{\gamma}} = \sqrt{\left(\frac{0,001}{5}\right)^2 + \left(\frac{8}{320}\right)^2 + \left(\frac{0,0001}{0,3}\right)^2 + \left(\frac{299}{65000}\right)^2} \quad (19)$$

$$\frac{U_{Act_{\gamma}}}{Act_{\gamma}} [=] \sqrt{\left(\frac{mL}{mL}\right)^2 + \left(\frac{Bq}{Bq}\right)^2 + \left(\frac{g}{g}\right)^2 + \left(\frac{Cuentas}{Cuentas}\right)^2} \quad (20)$$

$$\frac{U_{Act_{\gamma}}}{Act_{\gamma}} = 2,5\% \quad (21)$$

Dónde:

$U_{Act_{\alpha/\beta}}$: La incertidumbre para la actividad α/β (sin corregir)

$Act_{\alpha/\beta}$: Actividad α/β medida

$\frac{U_{V_m}}{V_m}$: Componente volumétrica porcentual en la incertidumbre

$\frac{U_{Act_{sr}}}{Act_{sr}}$: Componente respecto de las soluciones de referencia porcentual en la incertidumbre

$\frac{U_{P_b}}{P_b}$: Componente respecto de la pesada porcentual en la incertidumbre

$\frac{U_{Cta_{LSC}}}{Cta_{LSC}}$: Componente respecto al conteo en el LSC porcentual de la incertidumbre

$\frac{U_{tSIE}}{tSIE}$: Componente respecto de la curva de extinción porcentual en la incertidumbre

$\frac{U_{Cta\gamma}}{Cta\gamma}$: Componente respecto del conteo en el espectrómetro gamma porcentual de la incertidumbre.

En el caso de los valores corregidos se debe propagar la incertidumbre de la resta:

$$\frac{UAct_{LSC_{Cor}}}{Act_{LSC_{Cor}}} = \frac{UAct_{\alpha/\beta}}{Act_{\alpha/\beta}} + \frac{UAct_{\gamma}}{Act_{\gamma}} = 5,7\% \quad (22)$$

Dónde:

$Act_{LSC_{Cor}}$: Es la actividad por centelleo líquido corregida.

$UAct_{LSC_{Cor}}$: Es la incertidumbre de la medición por centelleo líquido corregida.

El cálculo de incertidumbre puede realizarse de forma más detallada o utilizando alguna de las técnicas previamente descritas, el objetivo de este trabajo no es profundizar en ese tema, se presenta como una herramienta necesaria para la toma de decisiones en la Etapa 1 y 2.

Recordar que la incertidumbre combinada se debe multiplicar por el factor de cobertura ($k=2$) y establecer el intervalo de confianza para el cual el valor de la medición posee una confianza del 95%.

Capítulo 4:

Conclusiones:

Las interferencias de los emisores, normalmente llamados, gamma en el centelleo líquido suscitan inconvenientes. Esto sumado a que no siempre es posible un re-muestreo, reprocesar la muestra (en particular luego del agregado del cóctel de centelleo líquido) o que los tiempos de respuestas exigidos no permiten ni el re-muestreo ni el reprocesamiento, contar con las herramientas para poder solucionar este tipo de inconvenientes es una útil herramienta para la CNEA y otra demostración de la capacidad del personal de la institución.

Este trabajo está separado en tres etapas puntuales:

Etapla 1: El caso de estudio sobre una necesidad emergente dentro de la casa. Evaluando las particularidades y necesidades puntuales que puedan llegar a surgir.

El estudio de comportamiento bajo las condiciones de laboratorio dadas fue satisfactorio y un paso esencial para la solución del problema. Este trabajo en sus orígenes estaba planificado como, principalmente, un trabajo de investigación y estudio del caso mientras se estaba realizando la Etapa 1 surgió la posibilidad de la utilización de otra técnica para, en una primera instancia, complementar los resultados obtenidos por el centelleo líquido.

Esta etapa resulto satisfactoria, se obtuvo información relevante de las interferencias generadas por el ^{60}Co y ^{137}Cs , información acerca de los espectros que pueden permitir la caracterización en un futuro.

En esta etapa además se verifico que las interferencias del ^{60}Co y ^{137}Cs afectaban solamente al conteo beta y las muestras que poseían alfas podían ser medidas sin mayores dificultades.

Etapla 2: la utilización de la los recursos de la casa para subsanar la necesidad.

Luego de que surja en la Etapa 1 la posibilidad de utilizar una técnica adicional para obtener resultados a las condiciones dadas y enfocado en las emisiones beta. Se comenzó a explorar si podía ser posible conseguir una relación entre los beta medidos en el contador de centelleo líquido y los gamma medidos por espectrometría gamma. Para ello se prepararon soluciones de ^{60}Co y ^{137}Cs puras con la doble función de estudiar las interferencias solas en centelleo líquido y utilizarlos como patrones para espectrometría gamma. Se obtuvieron dos factores de correlación $\frac{\gamma}{\beta}$ (0,97 para el ^{60}Co y 0,51 para el ^{137}Cs) que pudieron ser utilizados con éxito para una correcta cuantificación en el espectro beta. Los resultados obtenidos del conjunto de muestras analizadas y

corregidas fueron satisfactorios. Los resultados obtenidos incluso variando los tiempos de medición en el espectrómetro gamma y con un tiempo reducido de medición en el centelleo líquido se encontraron dentro de las incertidumbres adoptadas.

Etapa 3: La aplicación en el día a día o cuando sea solicitada.

La Etapa 3 no fue cumplida en su totalidad. Para un correcto cumplimiento de esta etapa es necesaria la evaluación de muestras reales, para entender el contexto y la complejidad de las muestras que deben ser tratadas.

Se puede profundizar en el cálculo de la incertidumbre y se debe adaptar a las condiciones de medición que vayan a ser presentadas en la realidad.

Se deben evaluar emisores gamma en simultáneo y ver cómo funciona el factor de correlación $\frac{\gamma}{\beta}$ bajo esas condiciones.

En términos generales el resultado del trabajo fue satisfactorio, quedan ciertos aspectos a evaluar y mejorar, principalmente en la Etapa 3. También se puede ampliar el campo de estudio a otros emisores gamma, la utilización de dos técnicas conlleva dificultades pero también permite complementar a ambas de forma de obtener resultados adecuados.

Trabajo a futuro:

La utilización de varias técnicas instrumentales de forma combinada permite ampliar el espectro del tipo de tareas a desarrollar. La posibilidad de realizar la medición por centelleo líquido y luego utilizando el mismo vial preparado para centelleo líquido medir en espectrometría gamma. Mientras se desarrollaba el presente trabajo surgieron varias posibilidades de cómo seguir investigando este tipo de interacciones. Para comenzar, otros emisores beta-gamma, obtener la relación entre lo medido por espectrometría gamma y evaluar su eficacia. En el caso de emisores alfa (como el ^{241}Am) se puede investigar la corrección con un factor alfa-gamma (en caso de superposición de 2 emisores alfa). Las posibilidades son muy amplias y se pueden adaptar a las necesidades de la institución.

Bibliografía:

- [1] <https://petpitchusa.wordpress.com/2012/08/10/petco-recalls-some-stainless-steel-pet-bowls-due-to-cobalt-60-contamination/>
- [2] The radiological accident in Samut Prakarn. — Vienna: International Atomic Energy Agency, 2002.
- [3] <https://www.rt.com/news/truck-radioactive-stolen-mexico-697/>
- [4] M Barrera, et al. Puesta a Punto de un Sistema de Espectrometría gamma para la Determinación de Cs-137 en Suelos Españoles. Informe Técnico CIEMAT 1147, Julio 2008.
- [5] Germanium Detectors User's Manual – 9231358C, Canberra
- [6] H.L.Malm, M.M.Watt. Background reduction in germanium spectrometers: Material selection, geometry, and shielding, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Volume 223, Issues 2–3 (1984) 420-425.
- [7] B2810 TR, B2910TR, B3110TR, and B3180TR/SL Manual de Operación Tri-Carb Liquid Scintillation Analyzer. Rev. A, 2009. Perkin Elmer.
- [8] Michael F. L'Annunziata, Handbook of Radioactivity analysis, Academic Press, California, 1998.
- [9] Vocabulario Internacional de Metrología – Conceptos Fundamentales y Generales, y términos asociados. 3ra Edición JCGM 200:2012, Centro español de metrología 2012.
- [10] Näykk, Håvard Hovind, Handbook for calculation of measurement uncertainty in environmental laboratories (NT TR 537 - Edition 3.1), Octubre 2012.
- [11] Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement. JCGM 100:2008, Septiembre 2008.
- [12] Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements, IAEA-TECDOC-1401, IAEA Austria, 2004