



Elaboración de un patrón emisor alfa para muestreo con hisopos y estudio de la eficiencia de detección para dos tipos de detectores

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

Alumno: Nicolás de Matteis

Director: Mario Rossi

Co-directora: María Clara Ferrari



ÍNDICE

RESUMEN	1
CAPÍTULO 1	3
1.1 Introducción.....	3
1.1.1 Metrología de Radioisótopos	3
1.1.2 Necesidad de elaboración del patrón de hisopo	4
1.1.3 Interacción de las partículas alfa con la materia	7
1.1.4 Detectores	8
1.1.4.1 Detectores semiconductores	8
1.1.4.2 Detectores gaseosos. Contadores proporcionales	11
1.1.5 Cadena espectroscópica	17
1.1.6 Eficiencia de detección	19
CAPÍTULO 2	22
2.1 Desarrollo experimental.....	22
2.1.1 Montaje de la cadena espectroscópica.....	22
2.1.2 Configuración de los parámetros electrónicos y geométricos del arreglo de detección	23
2.1.3 Preparación de soluciones de diferente actividad	25
2.1.4 Preparación de patrones de hisopo de diferente actividad.....	27
2.1.5 Medición de los patrones.....	30
2.1.6 Medición de fondos espectrales	31
2.1.7 Medición de muestras incógnita de cliente externo.....	32
2.1.8 Análisis de datos	32
CAPÍTULO 3	34
3.1 Resultados experimentales	34
3.1.1 Evaluación de la eficiencia de detección en función de la configuración de parámetros en un arreglo de detección con un detector de silicio.....	34
3.1.2 Caracterización de los patrones	39
3.1.2.1 Utilizando el detector de silicio	40
3.1.2.2 Utilizando el contador proporcional.....	43

3.1.3	Eficiencias de detección	45
3.1.3.1	Utilizando el detector de silicio	45
3.1.3.2	Utilizando el contador proporcional.....	46
3.1.4	Medición de frotis para cliente externo	46
Conclusiones		48
Referencias Bibliográficas.....		50
ANEXOS		52
ANEXO I: Cálculo de incertidumbres		52
ANEXO II: Mínima Actividad Detectable.....		52
ANEXO III: espectros de patrones medidos con detector de silicio		53
ANEXO IV: espectros de patrones medidos con contador proporcional		56
AGRADECIMIENTOS		58

RESUMEN

Uno de los objetivos del Laboratorio de Metrología de Radioisótopos (LMR) consiste en la creación de patrones de fuentes radiactivas destinados a la medida de actividad (Becquerel-Bq). Estos patrones pueden ser elaborados tanto para clientes externos como para uso interno. En el caso de los clientes externos, estos solicitan patrones radiactivos para su utilización en sus propias instalaciones. Por otro lado, en el caso de uso interno, los clientes remiten al laboratorio muestras tales como agua, tierra, filtros o frotis de superficie con el objetivo de determinar la emisión o actividad de las mismas, según corresponda.

Debido a esto, es de particular interés el desarrollo de patrones que cumplan con las condiciones de geometría, composición y con el mismo emisor radiactivo que se requiera medir en las muestras que se recepcionen. En la práctica, no siempre es posible contar con un patrón de idénticas características a la muestra de interés lo que conlleva a realizar un análisis especial en el proceso de medición y en el cálculo de resultados.

En este contexto, se planteó la necesidad de fabricar un patrón de hisopo, ya que el laboratorio carecía de una geometría específica para este tipo de muestra. Los frotis de hisopos proporcionados por clientes externos se utilizan en áreas de trabajo para la detección de posibles contaminantes después de actividades que involucran el uso de radionucleidos. En este caso particular, el radionucleido de interés es el ^{252}Cf (californio-252), emisor alfa con una baja probabilidad de emisión gamma. Por lo tanto, no es posible analizarlo utilizando detectores de germanio, que están diseñados específicamente para detectar este tipo de radiación.

En el presente trabajo, se prepararon soluciones de ^{241}Am con actividades conocidas, las cuales fueron absorbidas en hisopos de algodón con el propósito de simular un muestreo de una superficie contaminada. Dado que en el laboratorio no se disponía de soluciones de ^{252}Cf , se utilizó una solución patrón de ^{241}Am , un

emisor alfa con una energía similar. Inicialmente, se empleó un detector semiconductor de silicio para la detección de partículas cargadas en la medición de los patrones. Sin embargo, los resultados obtenidos con este detector resultaron insatisfactorios por razones que se abordarán en los capítulos posteriores de este trabajo. Por lo tanto, se optó por realizar los ensayos utilizando un detector gaseoso tipo contador proporcional. Con este detector, se logró obtener una mayor eficiencia de detección y una mayor repetitividad en las mediciones. A partir de estos estudios, se pudo determinar la Mínima Actividad Detectable (M.A.D) para una muestra incógnita proporcionada por un cliente externo.

CAPÍTULO 1

1.1 Introducción

1.1.1 Metrología de Radioisótopos

La Metrología de Radioisótopos tiene como objetivo fundamental la realización, custodia y transferencia de la unidad de medida de actividad de radionucleidos a través de la preparación y certificación de patrones radiactivos.

En Argentina esta tarea fue encomendada al Laboratorio Metrología de Radioisótopos (LMR) - CAE, de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). El LMR es referente nacional y representante ante los Organismos Internacionales, y realiza tareas de custodia y diseminación de los patrones de medida de Actividad (Becquerel-Bq) en la República Argentina. [Ref.1]

El LMR realiza actividades vinculadas al desarrollo de métodos de medición, primarios y secundarios, fabricando detectores, utilizando los métodos de simulación Monte Carlo para representar los procesos físicos en detectores con fuentes radiactivas y perfeccionando técnicas de preparación de fuentes. La variedad de radiaciones emitidas y de formas físicas de las fuentes o patrones obligan a estudiar en cada caso los procedimientos de medición contribuyendo además a una mejor comprensión de los procesos físicos involucrados.

Como se mencionó previamente, resulta de especial relevancia la creación de patrones que posean las mismas características físicas que las muestras recibidas en el laboratorio con el propósito de llevar a cabo análisis de contaminación radiactiva.

1.1.2 Necesidad de elaboración del patrón de hisopo

Según la [Ref.2] un patrón se refiere a una entidad que se utiliza como punto de referencia para medir o definir una unidad o un valor específico de una magnitud. Puede tratarse de un objeto materializado, un instrumento de medición, un material de referencia o incluso un sistema completo de medición. La función principal de un patrón es establecer una base confiable y estandarizada para comparar y asegurar la precisión y la consistencia de las mediciones realizadas en diferentes contextos. En resumen, los patrones son herramientas fundamentales en la metrología para garantizar la trazabilidad y la exactitud de las mediciones.

De acuerdo con lo expuesto previamente, el laboratorio utiliza simulaciones Monte Carlo para la caracterización de patrones que no se encuentran físicamente disponibles, como en el caso de muestras de tierra o soluciones líquidas [Ref.3]. Sin embargo, en el caso de un frotis de hisopo, se encontró dificultad para realizar la simulación debido a la falta de información precisa sobre la densidad del algodón empaquetado. La densidad es un factor crítico en la simulación, ya que está directamente relacionada con la emisión de la fuente radiactiva (partículas que emergen). Esta dificultad resalta los desafíos asociados con el manejo de este tipo particular de patrones.

Actualmente, si se desea cuantificar la emisión alfa o actividad de una muestra incógnita de hisopo, el patrón que se utilizaría para llevar a cabo las mediciones de estos frotis sería una fuente puntual de ^{241}Am . Este término se refiere a una fuente fabricada mediante la aplicación de forma puntual de gotas de solución del radionucleido sobre un disco. Es importante destacar que esta fuente puntual difiere significativamente de la muestra recibida en términos de geometría y composición. La fuente puntual se fabrica específicamente para tener una autoabsorción muy baja, lo cual implica que las partículas emitidas por la fuente son levemente absorbidas por el material mismo antes de alcanzar el detector. Esta discrepancia en la geometría entre el patrón y la muestra se puede apreciar en la Figura 1.1.

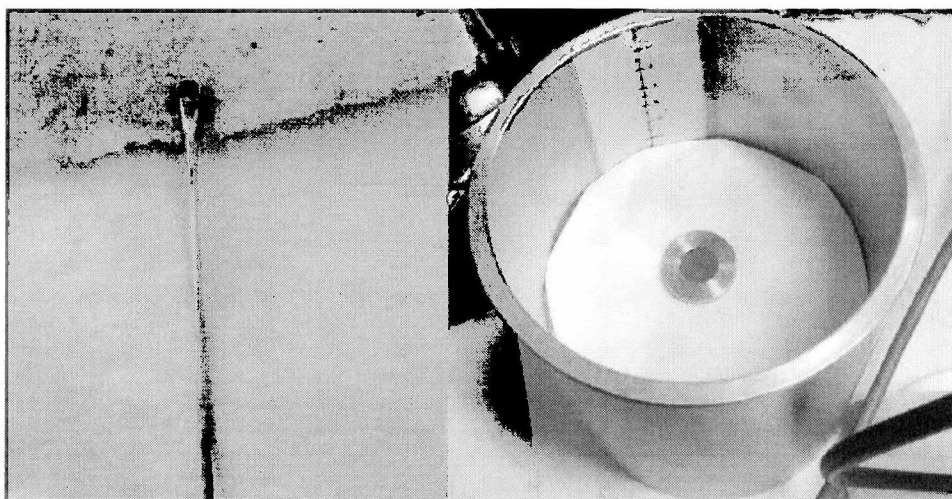


Figura 1.1. A la izquierda, frotis de superficie con hisopo entregada al laboratorio y a la derecha, fuente puntual a utilizar actualmente para cuantificar ^{252}Cf . LMR - Laboratorio Metrología de Radioisótopos

Se debe tener en cuenta que, en el caso de los frotis enviados por el cliente externo, se esperaría observar muy baja tasa de emisión debido a posibles contaminantes, en caso de ser detectables. Por lo tanto, resultaría conveniente contar con un patrón de una baja tasa de emisión comparable a la muestra incógnita. Esto brindaría un marco de referencia del tiempo necesario de medición para lograr un conteo conveniente en el espectro.

Cabe aclarar, que a diferencia de los patrones para mediciones gamma, en los cuales generalmente se requiere de la actividad de la fuente, en el caso de una fuente emisora alfa resulta ser más representativo el valor de emisión de la misma. Se enfatiza en que la actividad es una medida de la tasa de desintegración de la fuente lo cual no es un sinónimo de la tasa de emisión producida desde la fuente. En la Tabla 1.1 se observa los valores de actividad y emisión para el caso de la fuente puntual de ^{241}Am utilizada.

	Fuente puntual ^{241}Am
Actividad (kBq)	4746
Emisión 2π (α/s)	2385

Tabla 1.1. Valores de actividad y emisión para una fuente puntual de ^{241}Am a la fecha de referencia 04/05/2022 12:00 hs UTC-3.

Por estas cuestiones, se estableció como objetivo de este trabajo fabricar patrones de hisopo con soluciones de ^{241}Am de baja actividad, con el propósito de realizar una cuantificación más precisa de los posibles contaminantes (^{252}Cf) en un frotis de superficie. Es importante destacar que el ^{241}Am es ampliamente utilizado en aplicaciones nucleares debido a sus propiedades radiactivas y a su disponibilidad en el laboratorio, a diferencia del ^{252}Cf para el cual no se cuentan con soluciones patrón disponibles. Aunque ambos son radionucleidos diferentes, tienen una energía comparable, lo que significa que sus emisiones radiactivas caen en la misma región del espectro. Esta característica es crucial para este estudio, ya que se espera que los posibles contaminantes emitan radiación en una región similar en el espectro. Al seleccionar un radionucleido con características similares al ^{252}Cf se espera que los resultados obtenidos en este estudio sean relevantes y aplicables a situaciones en las que se sospeche la presencia de contaminantes en muestras de frotis de superficie.

1.1.3 Interacción de las partículas alfa con la materia

A modo de introducción resulta pertinente abordar las características de las partículas emitidas por las fuentes radiactivas empleadas en el presente trabajo. Un desarrollo teórico más formal se encuentra en la bibliografía. Ref [4].

Las partículas pesadas y cargadas pierden su energía por interacciones coulombianas con los electrones y los núcleos del material absorbente. Al entrar en cualquier medio absorbente, la partícula cargada interacciona inmediatamente y simultáneamente con muchos electrones. En cualquiera de esas interacciones, el electrón siente un impulso por la fuerza de atracción coulombianas cuando la partícula pasa por sus inmediaciones. Dependiendo de la proximidad del encuentro, este impulso puede ser lo suficiente como para elevar al electrón a un nivel superior dentro del átomo (excitación) o de remover completamente al electrón del átomo (ionización). La energía que es transferida al electrón debe venir a expensas de la partícula cargada, y por lo tanto su velocidad disminuye como resultado de la interacción. La máxima energía que puede ser transferida de una partícula cargada en una sola colisión es del orden de $1/500$ de la energía de la partícula por núcleo (Ref [4]). Debido a que esta es una fracción pequeña de la energía total, la partícula primaria debe perder la totalidad de su energía en muchas de esas interacciones durante su paso a través del absorbedor, disminuyendo su velocidad continuamente hasta que la partícula sea frenada.

Excepto al final del trayecto de la partícula, el camino tiende a ser bastante recto debido a que la partícula no es deflectada por ninguna interacción. Las partículas cargadas son caracterizadas por un rango definido en un dado material absorbente, el cual representa la distancia a la cual la partícula va a penetrar.

En interacciones particularmente cercanas, un electrón puede sufrir un impulso lo suficientemente grande, luego de abandonar a su átomo madre, con la suficiente energía cinética como para crear más iones. Estos electrones energéticos son llamados rayos delta y representa un medio indirecto por la cual la energía de la partícula cargada es transferida al medio absorbente. Bajo condiciones típicas, la

mayoría de la energía perdida de la partícula cargada primaria ocurre vía este rayo delta. El rango de este rayo delta es siempre más chico comparado con el rango de la partícula cargada incidente, entonces la ionización todavía se forma en la cercanía del trayecto primario.

Con respecto al proceso de detección de cualquier partícula cargada, es altamente dependiente de la producción de partículas secundarias cargadas que se colectan para producir una señal.

1.1.4 Detectores

Resulta relevante comentar sobre los 2 tipos de detectores utilizados en el presente trabajo: detector de silicio y contador proporcional. La teoría nos indica que ambos poseen eficiencia intrínseca cercana a la unidad. A lo largo de todo el escrito, se realizara una comparativa en el desempeño de ambos detectores en el transcurso de los ensayos realizados, ambos con igual relevancia para los fines de este trabajo.

Un formalismo teórico más completo es desarrollado en la bibliografía del tema (Ref. [4], [5]).

1.1.4.1 Detectores semiconductores

Un detector semiconductor es un diodo de silicio o germanio de tipo P-N o PIN operado en polarización inversa. En estas condiciones un campo eléctrico se extiende a través de la región depletada haciéndola adecuada para detectar radiación.

Un material intrínseco es aquel que tiene igual cantidad de electrones que huecos. Cuando la radiación interactúa con el material dentro de la región depletada, se

producen portadores de carga (electrones y huecos) que son atraídos por el campo eléctrico hacia los electrodos P y N.

Esta carga en movimiento, la cual es proporcional a la energía depositada en el detector, se convierte en un pulso de tensión mediante un preamplificador sensible a la carga.

Por otra parte, un material semiconductor es un material que puede actuar como aislador o como conductor. Los detectores pueden fabricarse de materiales elementales o compuestos, obteniéndose monocristales con un gap (banda prohibida) de entre 1 y 5 keV aproximadamente. Los elementos del grupo IV, silicio y germanio, son los semiconductores más ampliamente usados.

En los materiales en general se presentan bandas de conducción (BC) y de valencia (BV) separadas por un gap: para aislantes es grande y para conductores es nula (Figura 1.2). Depende de la temperatura: a menor temperatura todos los electrones están en la banda de valencia. A mayor temperatura pasan a banda de conducción, dejando una vacancia en la BV.

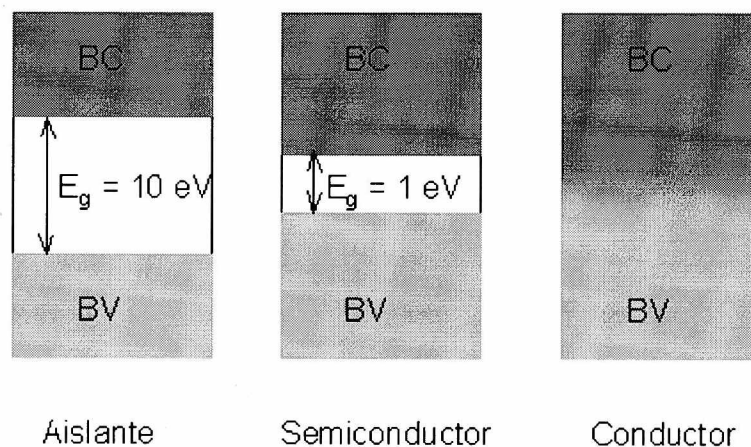


Figura 1.2. Esquema simplificado de bandas en los materiales. Gordon Gilmore-Gamma Ray Spectrometry.

La energía perdida por la radiación ionizante en un detector semiconductor resulta en la creación de pares electrón-hueco. La energía necesaria promedio (ϵ) para crear un par electrón-hueco en un dado semiconductor, a una dada temperatura,

es independiente del tipo y de la energía de la radiación ionizante. Los valores de ϵ son: 3,62 eV en Si a temperatura ambiente; 3,72 eV en Si a 80 K y 2,95 eV en Ge a 80 K.

El bandgap tiene un valor de 1,115 eV para Si a temperatura ambiente y un valor de 0,73 eV para Ge a 80 K.

La constante ϵ para diferentes tipos de radiaciones y para diferentes energías contribuye a la versatilidad y flexibilidad de los detectores semiconductores para su uso en espectrometría nuclear. El valor bajo de ϵ comparado con la energía promedio necesaria para crear un par e-ión en un gas (típicamente: 15 a 30 eV) resulta en una performance espectrométrica superior para los detectores semiconductores.

El detector de silicio destinado para realizar las mediciones en fuentes emisores alfa es del tipo de implantación iónica (PIPS), el cual se observa en la Figura 1.3. La elección de este tipo de detector se debe a que su eficiencia intrínseca es prácticamente la unidad y, por lo tanto, el conteo observado solo debe corregirse por el factor de geometría.

Por otra parte los detectores de silicio de implantación iónica presentan diversas ventajas: mejor resolución en energía para algunas aplicaciones espectroscópicas alfa, menor ruido electrónico, mayor eficiencia geométrica para algunas aplicaciones de espectroscopía alfa y son operables a temperatura ambiente.

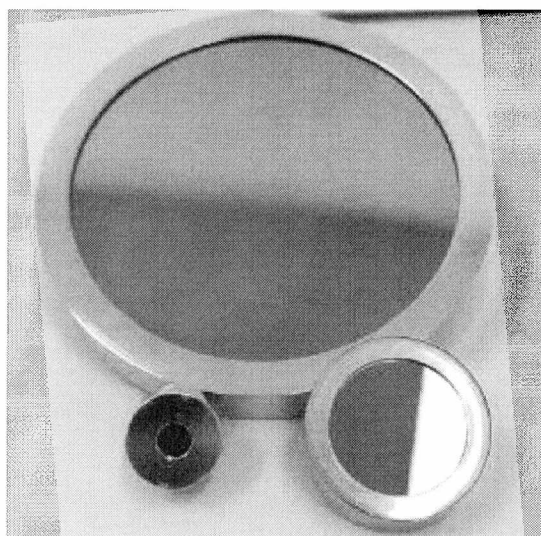


Figura 1.3. Detectores de implantación iónica de Si o detectores PIPS. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

1.1.4.2 Detectores gaseosos. Contadores proporcionales

Para la detección del paso de una partícula ionizante, los contadores gaseosos utilizan determinados tipos de gases como medio de generación de cargas para la formación de pulsos. Mediante una diferencia de potencial producida entre el cátodo y el ánodo, la carga generada es colectada. Las partículas ionizantes pueden provenir de alguna fuente de radiación la cual puede eventualmente estar ubicada fuera del detector o dentro del mismo, según las características del detector.

En función de sus características constructivas y modo de operación, principalmente, podemos separar los detectores gaseosos en tres grandes grupos: cámaras de ionización, contadores proporcionales y contadores Geiger.

Los contadores proporcionales, a diferencia de los otros dos, puede discriminar la energía que ha dejado la partícula ionizante en el gas, diferenciando partículas de diferente energía. La fuente de emisión de partículas (fuente a medir) puede ser

colocada en el interior del detector o en su exterior según el diseño del equipo. En la Figura 1.4 se muestra el tipo de detector gaseoso utilizado, el cual es un contador proporcional cilíndrico de flujo pasante y la fuente puede ser colocada en su interior.

Los contadores proporcionales gaseosos, mayormente son operados en modo pulso y se basan en el fenómeno de multiplicación en el gas para amplificar la carga representada por el par iónico original creada dentro del gas.

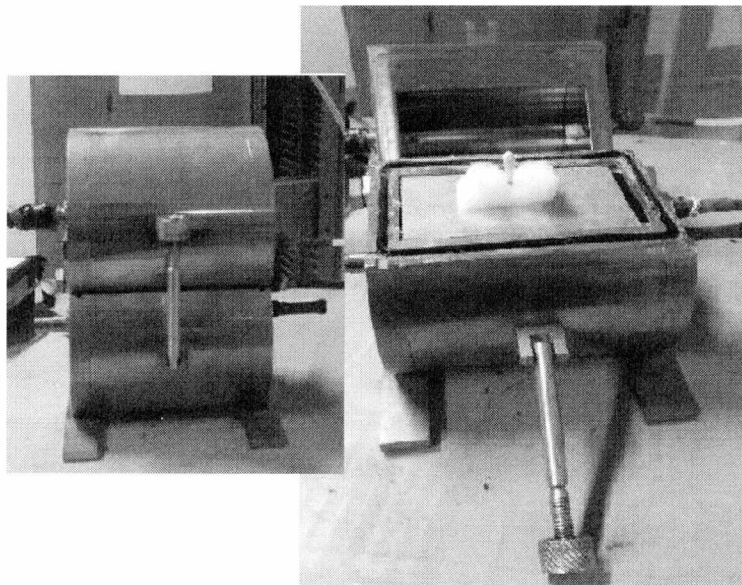


Figura 1.4. Detector gaseoso cilíndrico de flujo pasante. Lleva la muestra a medir en su interior.
LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

Multiplicación en el gas

La multiplicación en el gas es una consecuencia del incremento del campo eléctrico dentro del gas a un valor lo suficientemente grande. A valores bajos del campo, los electrones e iones creados por la radiación incidente simplemente se colectan en sus respectivos electrodos. Durante esta migración de las cargas, ocurren normalmente muchas colisiones con moléculas neutras del gas. Debido a su baja movilidad, los iones positivos o negativos alcanzan muy poca energía

promedio entre colisiones. Por otro parte, los electrones libres son fácilmente acelerados con el campo eléctrico aplicado y pueden tener una energía cinética significativa cuando sufren una colisión de este tipo. Si esta energía es mayor que la energía de ionización de la molécula de gas neutra, es posible la creación de un par iónico adicional en esta colisión. Debido a que la energía promedio del electrón entre colisiones aumenta con el aumento del campo eléctrico, hay un valor umbral del campo por el cual las ionizaciones secundarias ocurrirán.

El electrón liberado por este proceso de ionización secundaria también será acelerado por este campo eléctrico. Durante su posterior deriva a los electrodos, sufre colisiones con otras moléculas del gas neutro y esto genera ionizaciones adicionales. El proceso de multiplicación en el gas toma la forma de una cascada, conocida como avalancha, en la cual cada electrón libre creado en cada colisión puede crear potencialmente más electrones libres por el mismo proceso.

Para la geometría cilíndrica usada en la mayoría de los contadores proporcionales, el campo eléctrico aumenta en la dirección en la cual la avalancha avanza, y el crecimiento con la distancia es aún más pronunciado. En los contadores proporcionales, la avalancha finaliza cuando todos los electrones libres han sido colectados en el ánodo. Bajo condiciones adecuadas, el número de eventos de ionizaciones secundarias se pueden mantener de forma proporcional al número de pares de iones primarios formados. Esta amplificación de la carga dentro del propio detector reduce la demanda de amplificadores externos y puede dar como resultado una relación señal-ruido mejorada comparada con cámaras de iones del tipo pulso.

Regiones de operación

Las diferencias entre varios tipos de contadores de gas operado en modo pulso son mostrados en la Figura 1.5. La amplitud del pulso observado desde el detector

está trazado versus la diferencia de potencial aplicada o el campo eléctrico en el detector. A muy bajos valores de tensión, el campo es insuficiente como para prevenir las recombinaciones de los pares iónicos originales y la carga recolectada es menor que la representada por el par iónico original. Al ir aumentando la tensión, las recombinaciones son suprimidas y se alcanza la región de saturación de iones. Este es el modo normal de operación de las cámaras de ionización. A medida que la tensión sigue aumentando, el umbral del campo a la cual empieza la multiplicación en el gas es alcanzado. La carga colectada comienza a multiplicarse y la amplitud del pulso aumentará. En alguna región del campo eléctrico, la multiplicación en el gas será lineal, y la carga colectada será proporcional al número de pares iónicos creados por la radiación incidente. Esta es la región de verdadera proporcionalidad y representa el modo de operación de los contadores proporcionales convencionales. Bajo condiciones constantes de operación, la amplitud del pulso observado sigue indicando el número de pares iónicos creados en el contador, aunque su carga haya sido muy amplificada.

Aumentando la diferencia de potencial aplicada o el campo eléctrico aún más, puede introducir efectos no lineales. Lo más importante de esto está relacionado con los iones positivos, los cuales también son creados en el proceso de ionización secundaria. A pesar de que los electrones libres son colectados rápidamente, los iones positivos se mueven mucho más lento y durante el tiempo que se tarda en colectar a los electrones, apenas se mueven. Por lo tanto, cada pulso en el contador crea una nube de iones positivos la cual tarda en dispersarse a medida que se desplaza hacia el cátodo. Si la concentración de estos iones es lo suficientemente grande, ellos representan una carga espacial que puede alterar la forma del campo eléctrico en el detector. Debido a que la multiplicación en el gas es dependiente de la magnitud del campo eléctrico, algunas no linealidades van a ser observadas. Estos efectos marcan el comienzo de la región de proporcionalidad limitada en la cual la amplitud del pulso sigue creciendo con un incremento en el número de pares iónicos iniciales pero no de modo lineal. (Se pierde proporcionalidad por apantallamiento del campo eléctrico por acumulación espacial de cargas positivas).

Si la diferencia de tensión aplicada es lo suficientemente grande, la carga espacial creada por los iones positivos puede volverse completamente dominante. Bajo estas condiciones, la avalancha procede hasta el punto en el cual el número de iones positivos creados sea el suficiente para reducir el campo eléctrico por debajo del punto en el que puede tener lugar una multiplicación del gas adicional. El proceso es entonces auto limitante y terminará cuando el mismo número total de iones positivos hayan sido creados a pesar del número inicial de pares iónicos creados por la radiación incidente. Entonces cada pulso de salida del detector es de la misma amplitud y no refleja ninguna propiedad de la radiación incidente. Esta es la región de operación de Geiger-Mueller.

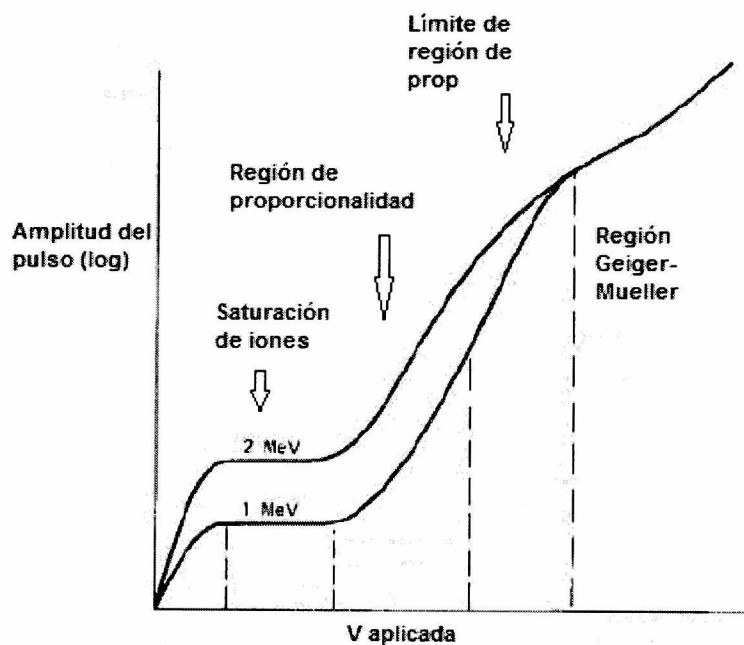


Figura 1.5. Zonas de operación de un detector gaseoso. Glenn Knoll-Radiation Detection and Measurement.

Elección de la geometría

Los contadores proporcionales típicos son construidos con una geometría cilíndrica, como se observa en la Figura 1.6.

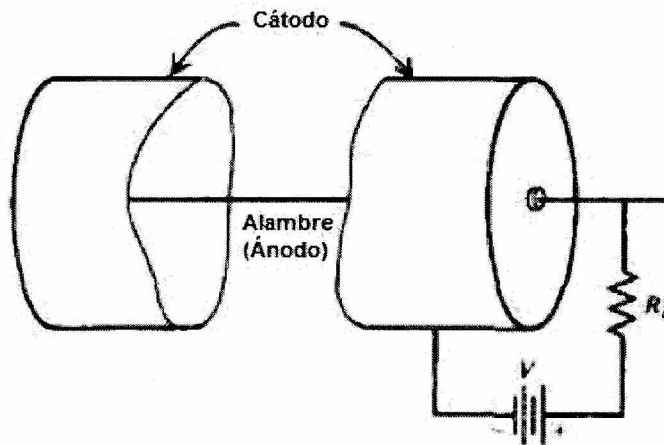


Figura 1.6. Elementos básicos de un contador proporcional. Glenn Knoll-Radiation Detection and Measurement.

El ánodo consiste en un alambre fino el cual está posicionado a lo largo de un tubo largo y hueco que sirve como cátodo. La polaridad de la tensión aplicada en esta configuración es importante, debido a que los electrones deben ser atraídos hacia el alambre axial central. Esta polaridad es necesaria desde dos puntos de vista:

- En la geometría cilíndrica, el campo eléctrico con un radio r está dado por la ecuación (1):

$$\varepsilon = \frac{V}{r \ln(b/a)} \quad (1)$$

donde

V =tensión aplicada entre el ánodo y el cátodo

a=radio del filamento (ánodo)

b=radio interno del cátodo

La multiplicación en el gas requiere grandes valores en el campo eléctrico, la cual ocurre en la cercanía del filamento del ánodo donde r es chica.

Debido a que los electrones son atraídos al ánodo, estos se desplazarán

hacia la región de alto campo eléctrico. $\varepsilon = \frac{V}{r \ln(b/a)}$

- Si se desea lograr una multiplicación uniforme para todos los pares de iones formados por la interacción de la radiación original, la región de multiplicación del gas debe ser confinada a un volumen pequeño comparada con el volumen total del gas. Bajo estas condiciones, casi todos los iones primarios son formados fuera de la región de multiplicación, y el electrón primario simplemente se desplaza a esa región antes que la multiplicación tome lugar. Por lo tanto, cada electrón sufre el mismo proceso de multiplicación a pesar de su posición original de formación, y el factor de multiplicación va a ser el mismo para todos los pares originales.

1.1.5 Cadena espectroscópica

La cadena espectroscópica utilizada es una configuración usual para la conexión de un detector de Si y para un contador proporcional, Figura 1.7. Consta de pre-amplificador, amplificador, fuente de tensión, un multicanal y la PC, monitoreándose además los pulsos del preamplificador y del amplificador por un osciloscopio conectado al sistema.

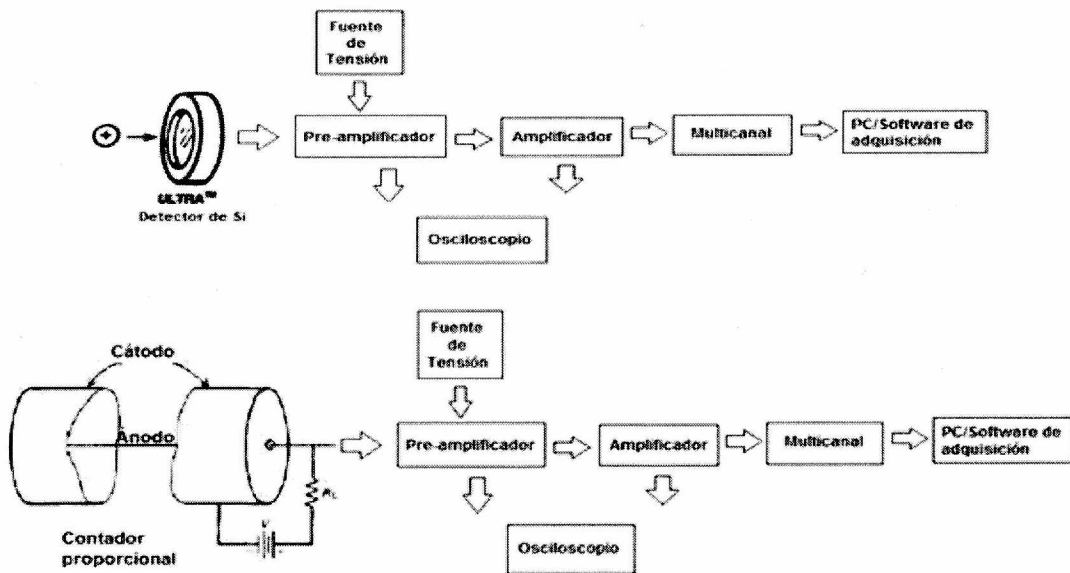


Figura 1.7. Esquema de la cadena espectroscópica para la utilización del detector de Si y del contador proporcional. Glenn Knoll-Radiation Detection and Measurement.

En la mayoría de las aplicaciones de los detectores de radiación operando en modo pulso, la salida del detector es convertida a un pulso gaussiano cuya amplitud y forma puede llevar información de interés al operador. Para la visualización de este pulso, ocurren una serie de pasos que son llevadas a cabo por toda la cadena espectroscópica.

La función primaria de un preamplificador es la de extraer la señal proveniente del detector sin degradar significativamente la relación señal-ruido. Por lo tanto, el preamplificador es localizado lo más cerca posible del detector y los circuitos de entrada están diseñados para hacer coincidir las características del detector. El preamplificador convencionalmente no provee forma en el pulso y su salida es un pulso de cola lineal. La forma del pulso para cualquier aplicación es normalmente conformada en un módulo posterior. Este módulo puede ser colocado a cierta distancia del preamplificador, siempre y cuando la señal no se degrada debido a la longitud del cable coaxial.

El amplificador es uno de los componentes más importantes en un sistema de procesamiento de pulsos para aplicaciones en conteo, de tiempo o para espectroscopía de amplitud de pulso. El amplificador lineal de formación de pulso debe aceptar la forma del pulso de salida proveniente del preamplificador y cambiarlo a la forma del pulso requerida para la espectroscopia de energía óptima.

Normalmente, es el amplificador el que provee el control de la forma del pulso que se necesita para optimizar la performance de la electrónica analógica. Para altura de pulsos o espectroscopía de energía, el amplificador lineal y de formación de pulso realiza varias funciones clave. La función primaria es la de aumentar la amplitud del pulso de salida del preamplificador desde el rango de los mV al rango de los 0,1 a 10 V. Esto facilita mediciones precisas con convertidores analógicos (multicanales). En adición, el amplificador le da forma al pulso para optimizar la resolución en energía y para minimizar el riesgo de solapamiento entre pulsos sucesivos. Ref. [6]

1.1.6 Eficiencia de detección

Es conveniente subdividir eficiencias de conteo en 3 clases: eficiencia absoluta, intrínseca y geométrica. La eficiencia absoluta es definida como:

$$Eff\ abs = \frac{\text{cantidad de pulsos detectados}}{\text{cantidad de partículas emitidas por la fuente}}$$

y es dependiente no solamente de las propiedades del detector, sino también de la geometría del conteo, principalmente en relación a la distancia entre la fuente y el detector. La eficiencia intrínseca es definida como:

$$Eff\ int = \frac{\text{cantidad de pulsos detectados}}{\text{cantidad de partículas incidentes en el detector}}$$

usualmente depende principalmente del material detector, la energía de la radiación y el espesor del detector en la dirección de la radiación incidente. Una

pequeña dependencia en la distancia entre la fuente y el detector se mantiene, sin embargo, debido a la longitud media del camino de la radiación a través del detector cambiará un poco con este espacio. La eficiencia geométrica es definida como:

$$Eff_{geom} = \frac{\text{cantidad de partículas incidentes en el detector}}{\text{cantidad de partículas emitidas por la fuente}}$$

la misma depende del ángulo sólido a la cual se ubica la fuente.

El método más común para determinar la eficiencia es el experimental. Este requiere la medida de fuentes de calibración marcadas con radionucleidos que emiten partículas alfa de energía similar en el intervalo en el que se desea calibrar. Los resultados de las mediciones pueden interpretarse mediante el programa Genie 2000, un software de adquisición utilizado habitualmente en el laboratorio. Mediante esta herramienta se calcula el área bajo el pico producido por la partícula cargada y luego puede calcularse la eficiencia experimental según la ecuación 2:

$$Eff = \frac{N}{A \cdot t} = \frac{eps}{dps} \quad (2)$$

N: corresponde al área neta obtenida a través del programa Genie 2000.

A: es la actividad de la fuente correspondiente al momento de medición (Becquerel-Bq-dps: desintegraciones por segundo).

t: tiempo de medición.

N/t: emisiones por segundo (eps).

Todos los detectores de radiación darán lugar a un pulso de salida para cada partícula que interactúa dentro del volumen activo. Para radiaciones primarias cargadas como las partículas alfa o beta, la interacción en forma de excitación o ionización toma parte inmediatamente a la entrada de la partícula en el volumen activo. Después de viajar una pequeña fracción de su rango, una típica partícula

forma suficientes pares iónicos a lo largo de su camino para asegurarse que el pulso resultante es lo suficientemente grande para ser digitalizada. Por lo tanto, es fácil de arreglar una situación en la cual un detector va a ver todas las partículas alfa o beta que entran en el volumen activo del detector. Bajo estas condiciones, el detector tiene una eficiencia del 100%. Ref. [4] - [5].

CAPÍTULO 2

2.1 Desarrollo experimental

2.1.1 Montaje de la cadena espectroscópica

Las mediciones se realizaron con la cadena espectroscópica que se muestra en la Figura 2.1, conformada por una fuente de tensión, preamplificador, amplificador, multicanal, PC, osciloscopio y el detector semiconductor de silicio, en este caso en particular.

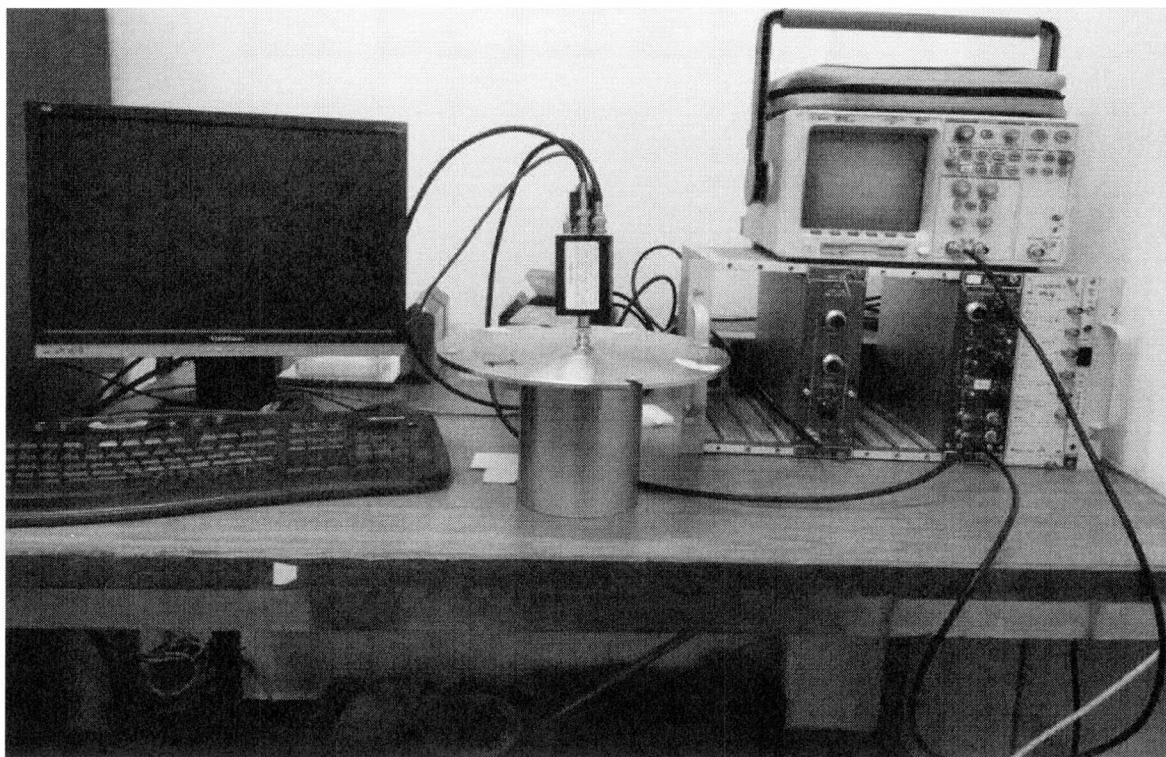


Figura 2.1. Cadena espectroscópica utilizada con el detector de Si. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

Para el caso del detector contador proporcional, se montó la cadena espectroscópica que se muestra en la Figura 2.2.

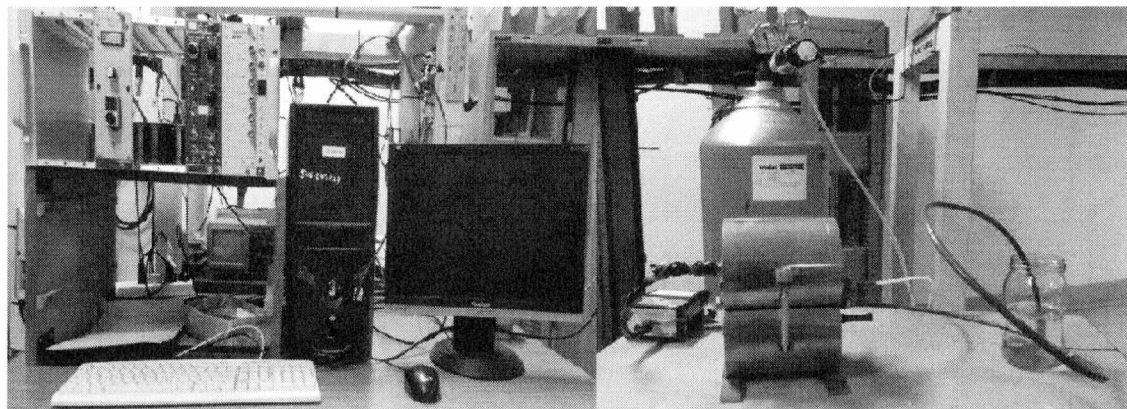


Figura 2.2. Cadena espectroscópica utilizada con el contador proporcional. A la izquierda se observa gran parte de la cadena espectroscópica: fuente de tensión, amplificador, multicanal y PC. A la derecha, el preamplificador, el detector y el tubo de gas P10. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

2.1.2 Configuración de los parámetros electrónicos y geométricos del arreglo de detección

Primeramente, se usó una fuente puntual de ^{241}Am y un detector semiconductor de silicio para comenzar con la utilización de la cadena espectroscópica vista anteriormente. La elección de esta fuente se debe a que su espectro es fácil de observar debido a su baja autoabsorción, es decir, exhibe un pico característico bien definido. El objetivo de esta tarea era configurar la electrónica y los parámetros geométricos para poder observar el espectro de una manera correcta. Durante la actividad se realizaron diferentes ajustes para determinar cómo se modificaba la eficiencia de detección en función de la altura de la fuente con respecto al detector, así como la distancia radial de la fuente respecto al centro del detector. Para esto, se utilizó una regla dentro del arreglo de detección y se varió la altura desde 1 cm hasta 4 cm y sobre la base regulable se dibujaron puntos a 1 cm, 2 cm y 3 cm desde el centro del detector, como se ilustra en la Figura 2.3.

Además, en la Figura 2.4 se observa el amplificador de la cadena espectroscópica, donde se encuentra el selector correspondiente al shaping time o tiempo de conformado del pulso o señal. Estos tres parámetros: variación de la distancia axial, radial y el shaping time, se ajustaron para determinar el comportamiento del detector por medio de la eficiencia del arreglo de detección. Se realizaron series de 2 mediciones para cada uno de los parámetros alterados.

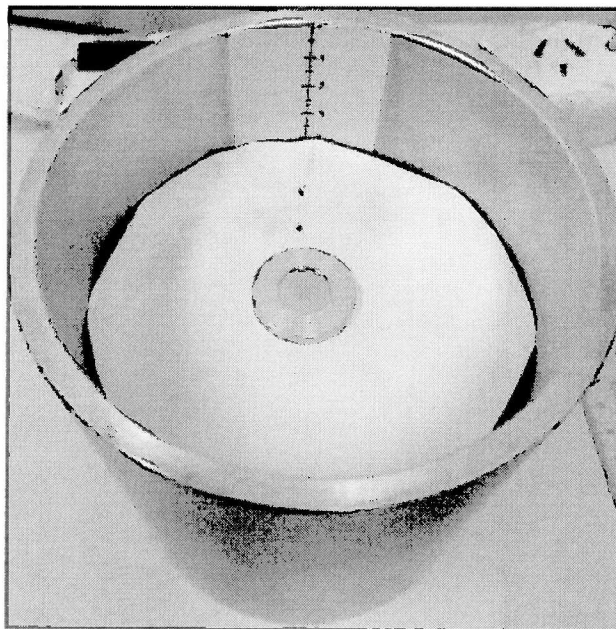


Figura 2.3. Montaje del arreglo de detección. Puede apreciarse una escala graduada y la fuente puntual en el centro de un contenedor de aluminio. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

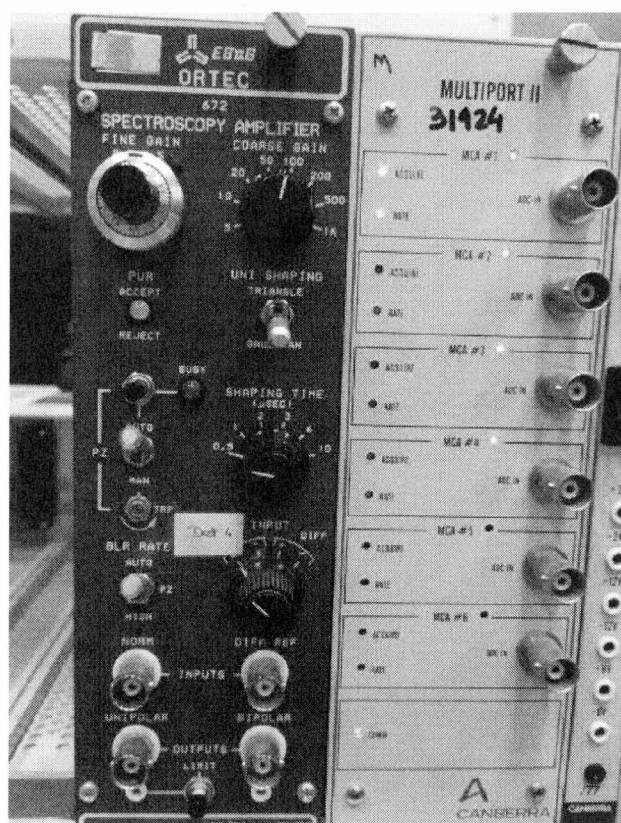


Figura 2.4. Amplificador y multicanal pertenecientes a la cadena espectroscópica. Se observa el dial perteneciente al shaping time. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

2.1.3 Preparación de soluciones de diferente actividad

Tal como se mencionó anteriormente, el laboratorio no cuenta con soluciones de ^{252}Cf y en su lugar se empleó una solución patrón de ^{241}Am .

A continuación, se detalla la solución radiactiva empleada en la fabricación de las 4 soluciones (Figura 2.5) para la realización de los patrones de hisopo.

- Solución n° 104-01-01 de ^{241}Am correspondiente a la dilución de la solución n° 104-00 (NPL, intercomparación para BIPM) en solución portadora de Am (23 mg de $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ / 500 ml HNO_3 0,1N).

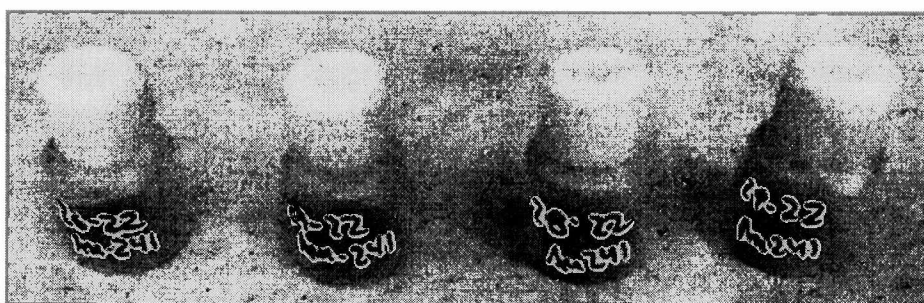


Figura 2.5. Soluciones radiactivas empleadas para la preparación de los patrones de hisopo. LMR- Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

Se llevaron a cabo diluciones de la solución n° 104-01-01 debido a la necesidad de obtener actividades considerablemente más bajas que las disponibles en el laboratorio. La concentración de actividad (Bq/g) obtenida para cada una de las soluciones en la fecha de referencia del 02/06/2022 a las 12:00 hs UTC-3 se encuentra registrada en la Tabla 2.1. Los elevados niveles de incertidumbre se deben a la fuerte dependencia de la incertidumbre en la pesada de las masas.

Solución	Concentración de actividad (Bq/g)
26-22	72,95 (7%)
27-22	24,29 (20%)
28-22	24,18 (20%)
29-22	25,62 (20%)

Tabla 2.1. Concentración de actividad de cada solución de ^{241}Am a la fecha de referencia, con sus respectivas incertidumbres.

La solución 104-01-01 de ^{241}Am fue calibrada por el sistema Triple-to-Double Coincidence Ratio (TDCR), un método primario utilizado en el LMR para determinar la actividad absoluta de una solución radiactiva mediante el preparado de viales de centelleo líquido. Para llevar a cabo este procedimiento, se dispusieron dos viales de vidrio de 20 ml cada uno (blanco y solución). En ambos se añadieron 10 ml de Ultima Gold AB (UGAB) y a uno, además, la solución de ^{241}Am . Este sistema se encuentra en el LMR ubicado en el Edificio Aplicaciones. Se realizaron 15 mediciones de 1 minuto tanto para esta solución como para el blanco.

2.1.4 Preparación de patrones de hisopo de diferente actividad

Se realizaron dos métodos diferentes para preparar los patrones de hisopo (los patrones de hisopo tienen la misma numeración que las soluciones patrón con las que fueron preparados). En el caso del patrón 26-22, la solución fue absorbida mediante la rotación (360°) del hisopo. Por otro lado, en los casos de los otros tres patrones 27-22, 28-22 y 29-22, la solución se absorbió en una única cara del hisopo, específicamente en la zona marcada de color rosa, como puede verse en la Figura 2.6.

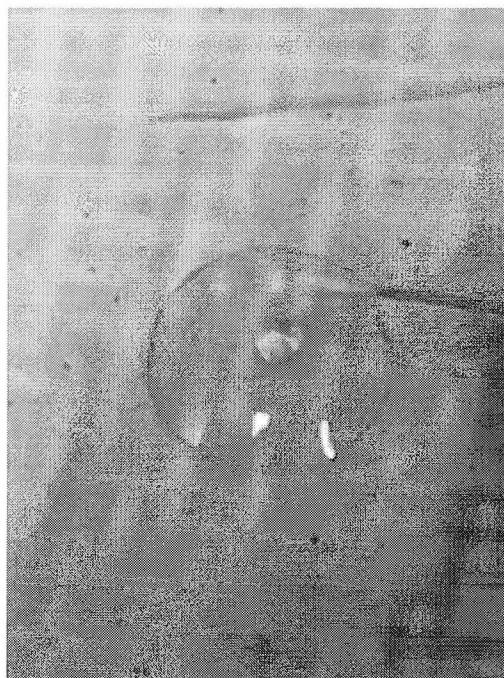


Figura 2.6. Absorción de solución de ^{241}Am en hisopo. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

Esta variación en la preparación de los patrones, se llevó a cabo con el objetivo de simular un muestreo de superficie. Por un lado, se imitó el método utilizado por el cliente externo, que implica una mayor acumulación de suciedad en una cara del hisopo (Figura 2.7). Por otro lado, se exploró la posibilidad de mejorar el muestreo mediante una absorción homogénea, como se detalló para el patrón 26-22.

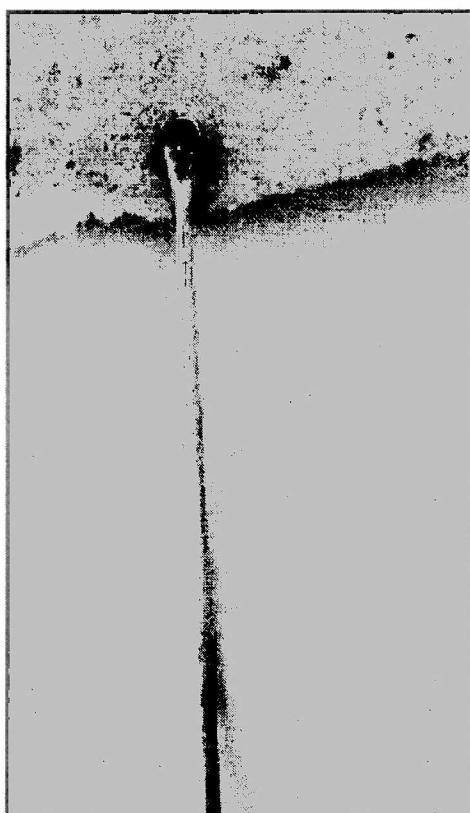


Figura 2.7. Frotis de superficie entregado por un cliente externo para análisis de posibles contaminantes radiactivos. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

El procedimiento para la absorción de cada una de las soluciones consta de los siguientes pasos:

- i) Tres gotas de la solución fueron absorbidas con el hisopo.
- ii) El solvente se evaporó bajo una lámpara, aproximadamente por 30 minutos, como se muestra en la Figura 2.8. Se aguardaba hasta que no se detectara presencia de líquido visible sobre la superficie del algodón.
- iii) Los pasos i) y ii) se repitieron hasta alcanzar la actividad deseada.

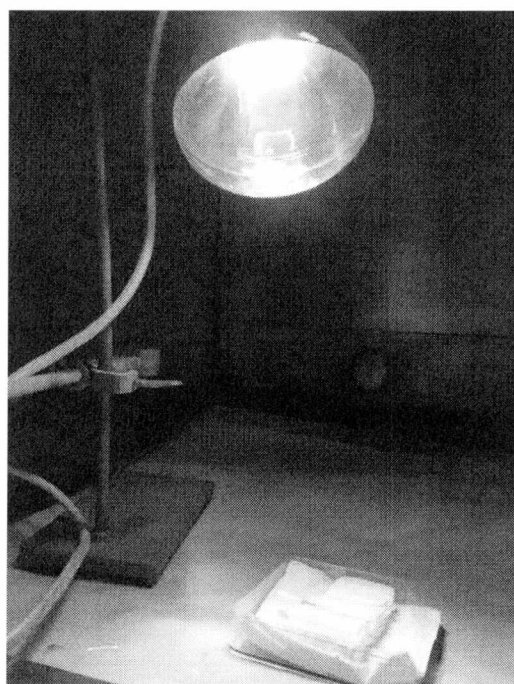


Figura 2.8. Evaporación del solvente del hisopo bajo lámpara. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

La masa absorbida en cada hisopo y la actividad obtenida para cada uno se muestra en la Tabla 2.2. Para determinar las masas se utilizó una balanza semimicroanalítica-Marca Mettler-Modelo AE 163, ubicada en el Edificio Aplicaciones en el LMR.

Patrón	Masa absorbida (g)	Actividad (Bq)
26-22	1,0359 ± 0,0001	75,57 Inc.(7%)
27-22	0,8784 ± 0,0001	21,33 Inc.(20%)
28-22	0,9649 ± 0,0001	23,33 Inc.(20%)
29-22	0,9688 ± 0,0001	24,82 Inc.(20%)

Tabla 2.2. Masas colocadas y actividades obtenidas para cada hisopo.

Las incertidumbres fueron calculadas como la combinación de las incertidumbres introducidas por cada uno de los factores considerados (ver ANEXO I).

2.1.5 Medición de los patrones

En primera instancia, se realizaron mediciones de los patrones con el detector semiconductor de silicio. Las mismas se realizaron a 1 cm del detector y en el centro del mismo, como se observa en la Figura 2.9. Se realizaron 2 series de 10 mediciones para cada uno de los patrones.

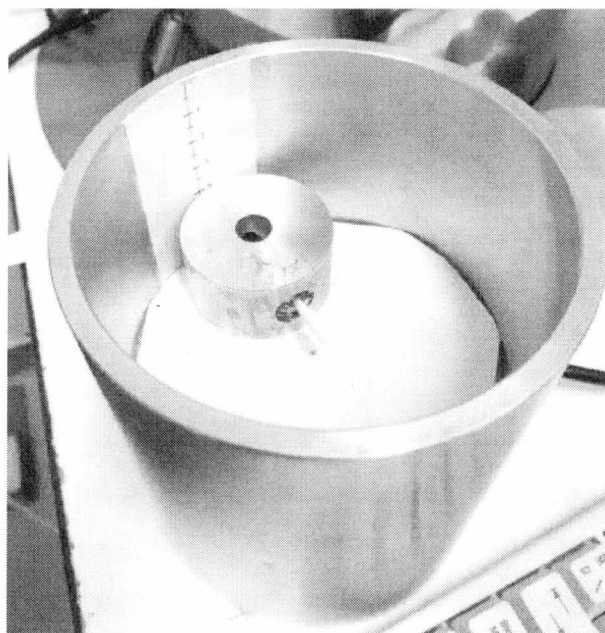


Figura 2.9. Posicionamiento de los patrones dentro del arreglo de detección. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

En segunda instancia, se empleó el detector gaseoso y se dispusieron los hisopos según se ilustra en la Figura 2.10. A continuación, se procedió a cerrar el detector y se inició el proceso de llenado con gas P10 (Argón + Metano). Debido al tamaño reducido del detector, se estimó que un período de dos minutos sería suficiente para evacuar el aire presente en su interior y asegurar la presencia exclusiva de P10. Una vez completada esta etapa, se estableció un flujo constante y reducido de gas y se comenzaron las mediciones, manteniendo la presión atmosférica.

Con el fin de evaluar la repetitividad entre diferentes mediciones, se siguió el mismo procedimiento en cada ocasión: se abría el detector para permitir la salida del gas P10, se volvía a cerrar y se iniciaba el proceso de llenado del gas de manera idéntica a como se había hecho inicialmente. Se llevaron a cabo dos series de dos mediciones para cada uno de los patrones.

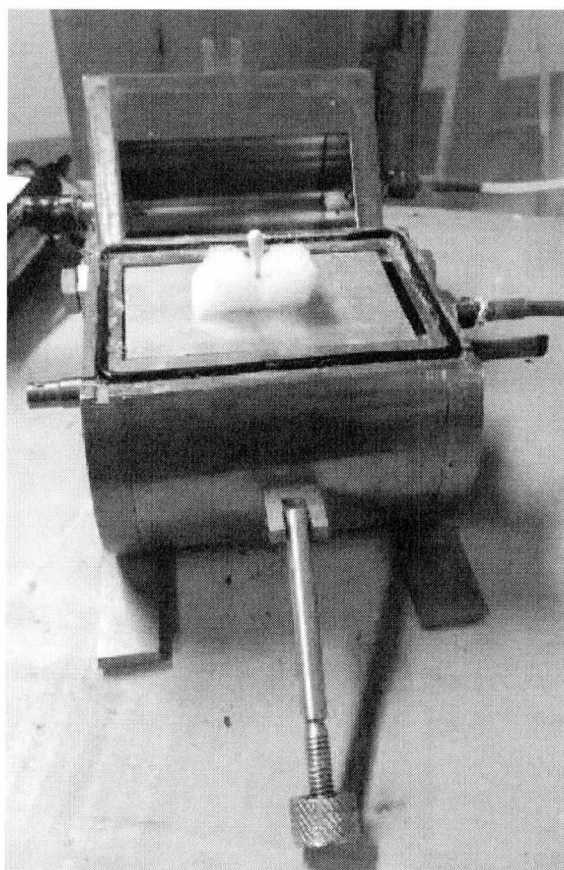


Figura 2.10 Ubicación de los hisopos dentro del contador proporcional. LMR-Laboratorio Metrología de Radioisótopos.

2.1.6 Medición de fondos espectrales

Se llevó a cabo un número igual de mediciones de fondos espectrales para cada uno de los detectores, utilizando un hisopo sin ninguna solución absorbida. El propósito de estas mediciones fue detectar posibles cuentas que pudieran provenir

de los materiales utilizados para preparar los patrones, así como tener en cuenta el ruido electrónico, que está siempre presente. Este término se refiere a cualquier fluctuación no deseada en las señales eléctricas que aparece superpuesta en un espectro afectando en la calidad y exactitud de la información procesada. Posteriormente, estas cuentas detectadas fueron restadas del espectro correspondiente a cada patrón, con el fin de obtener resultados más precisos y eliminar posibles interferencias.

2.1.7 Medición de muestras incógnita de cliente externo

Las muestras incógnitas fueron sometidas a mediciones siguiendo el mismo procedimiento utilizado para los patrones y los fondos en el detector de silicio y el contador proporcional. En el caso del detector semiconductor, se llevaron a cabo específicamente en la región del hisopo que presentaba la mayor proporción de suciedad, asumiendo una concentración más alta de contaminantes en esa superficie. Esto se hizo con el objetivo de obtener datos comparables y tener en cuenta posibles variaciones en la distribución de la contaminación en el hisopo.

2.1.8 Análisis de datos

Los espectros fueron adquiridos mediante el programa Genie2000. De los datos adquiridos, se decidió excluir las cuentas correspondientes a canales muy bajos debido a la presencia significativa de ruido. Esta exclusión se realizó para garantizar la precisión y fiabilidad de los datos analizados. Durante las mediciones, no fue necesario aplicar correcciones por decaimiento radiactivo, ya que el tiempo de semidesintegración del ^{241}Am es considerablemente mayor en comparación con el intervalo de tiempo transcurrido entre la preparación de los patrones y las mediciones realizadas. Los datos bibliográficos utilizados se obtuvieron de la base de datos nucleares del Laboratorio Nacional Henri Becquerel en Francia (Ref. [7]).

La Tabla 2.3. proporciona información sobre la energía de cada radionucleido y sus respectivos tiempos de semidesintegración.

Nucleido	Energía (keV)	Tiempo de semidesintegración (años)
²⁴¹ Am	5485,56	432,6
²⁵² Cf	6118,10	2,6470

Tabla 2.3. Energías de cada radionucleido junto con los períodos de semidesintegración, obtenidos de la base de datos nucleares pertenecientes al Laboratorio Nacional Henri Becquerel.

Se obtuvieron la siguiente cantidad de archivos de salida, para cada serie, conteniendo las emisiones totales en todo el espectro:

- Para las mediciones de los patrones con el detector de silicio, 20 archivos .txt (10 del propio patrón y 10 del fondo)
- Para las mediciones de los patrones con el contador proporcional, 4 archivos .txt (2 del propio patrón y 2 del fondo)
- Para las mediciones de la muestra incógnita, 20 archivos .txt con el detector de silicio y 4 archivos .txt con el contador proporcional.

Todos los valores de emisiones, para cada uno de los archivos, fueron recopilados en planillas de cálculo, para realizar luego los cálculos de eficiencia dado por la ecuación (2), conociendo la actividad absorbida en cada uno de los hisopos y los tiempos de medición. Además se calculó la M.A.D (mínima actividad detectable) por medio de la ecuación (3). Ref. [4].

$$MAD = (4,653\sigma_{N_B} + 2,706)/Eff \quad (3)$$

En el ANEXO II del presente trabajo se muestra una breve teoría sobre la mínima actividad detectable.

CAPÍTULO 3

3.1 Resultados experimentales

3.1.1 Evaluación de la eficiencia de detección en función de la configuración de parámetros en un arreglo de detección con un detector de silicio

La configuración de los diferentes parámetros del arreglo de detección fue utilizada para observar la variación de la eficiencia de detección de tres maneras diferentes: i) al cambiar la altura de la posición de la fuente puntual al detector (desde 1 cm hasta 4 cm) ii) variando la distancia radial al centro (desde 1 cm hasta 3 cm) iii) modificando el parámetro shaping time. Para los 3 casos se utilizó el detector de silicio de mayor diámetro. NOTA: se presenta, a modo de muestra, un espectro de cada serie de medición para cada uno de los parámetros alterados.

- i) En primera medida, se fue variando la distancia axial entre el detector y la fuente puntual de ^{241}Am (Energía de emisión más probable: 5,486 MeV). Las partículas alfa, de un alto poder ionizante, pierden su energía rápidamente al interactuar con la materia, en este caso, aire. En la Figura 3.1 se puede observar el gráfico correspondiente a la cantidad de cuentas observadas cambiando la altura de la fuente puntual. El espectro presenta un máximo correspondiente a la energía máxima de la partícula alfa y luego un continuo hacia canales menores (energías menores) debido a la baja autoabsorción de este tipo de fuentes patrones puntuales.

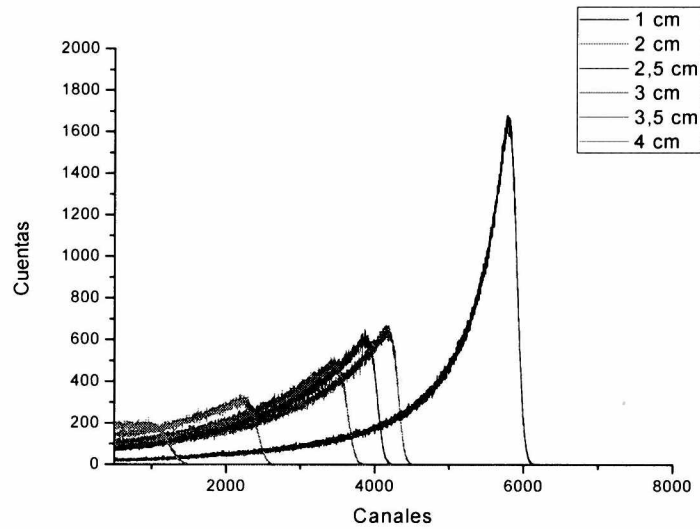


Figura 3.1. Fuente puntual de ^{241}Am en el centro del detector con un shaping time de 0,5 us. Los canales son proporcionales a la energía de la partícula en keV.

- ii) En segundo lugar, se procedió a variar la distancia entre la fuente puntual de ^{241}Am y el centro del detector. Las mediciones se realizaron comenzando desde una distancia de alrededor de 1 cm con respecto al detector de silicio. A medida que se incrementó la distancia radial, se observó una disminución en la eficiencia de detección. Como puede observarse en la Figura 3.2, las partículas no llegan al detector con el mismo ángulo sólido que tendrían si la fuente estuviera ubicada en el centro, lo que resulta en una disminución de la eficiencia geométrica de detección.

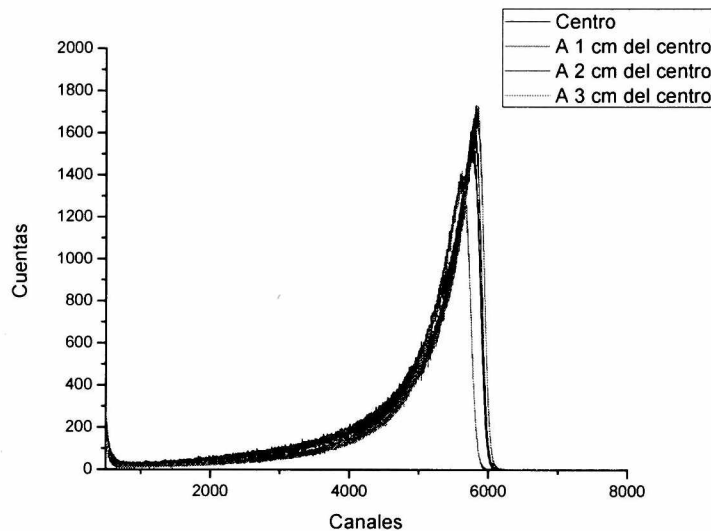


Figura 3.2. Fuente puntual de ^{241}Am a 1 cm del detector y con un shaping time de 0,5 us. Los canales son proporcionales a la energía de la partícula en keV.

- iii) En el panel frontal del amplificador se encuentra el selector correspondiente al shaping time (st), el cual se refiere al tiempo de formación del pulso. El ancho del pulso varía en función de esta constante seleccionada. Este parámetro contribuye al tiempo muerto para eventos de conteo: a mayor shaping time, menor conteo (menor recolección de carga, para este detector). Se efectuaron mediciones con una fuente puntual de ^{241}Am ubicada a 1 cm del detector, variando el shaping time desde 0,5 us hasta 6 us (Figura 3.3).

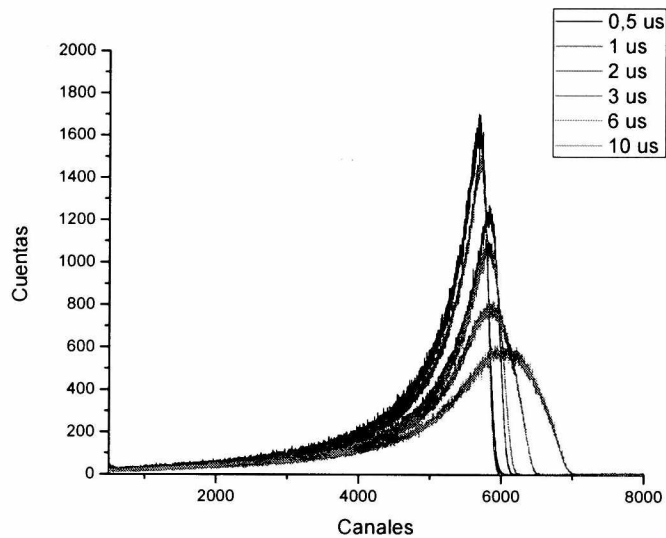


Figura 3.3. Fuente puntual de ^{241}Am a 1 cm del detector y en el centro. Los canales son proporcionales a la energía de la partícula en keV.

A modo de síntesis, en las siguientes tres figuras (Figura 3.4-3.5-3.6) se muestra un resumen de la variación de la eficiencia para cada uno de los parámetros estudiados. Según lo realizado, se comprueba que la manera más eficiente de utilizar esta cadena espectroscópica es lo más cerca y lo más centrado posible del detector y con el shaping time más bajo.

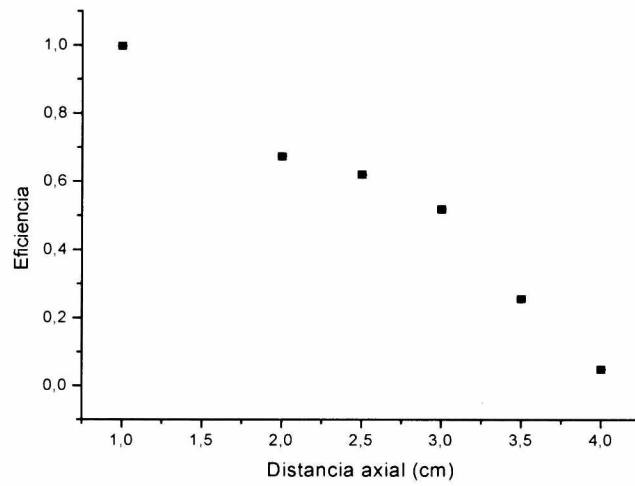


Figura 3.4. Eficiencia en función de la distancia axial. En el centro y shaping time de 0.5 us.

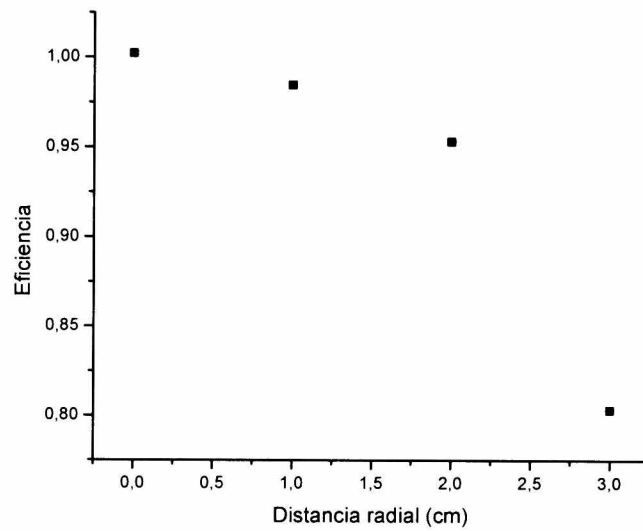


Figura 3.5. Eficiencia en función de la distancia radial. A 1 cm respecto del detector y shaping time de 0.5 us.

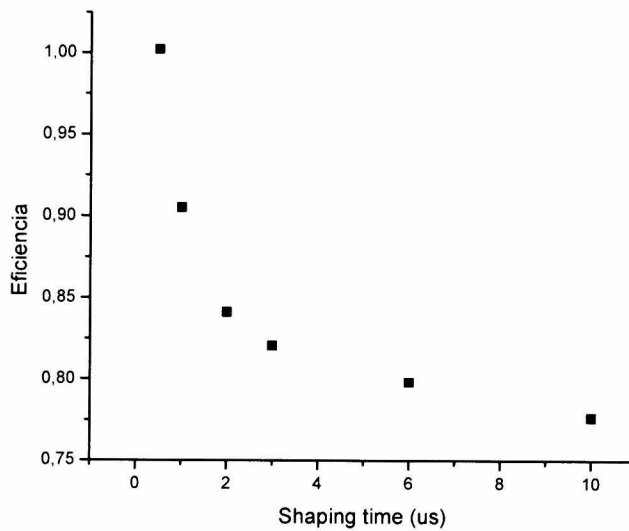


Figura 3.6. Eficiencia en función del shaping time. En el centro y a 1 cm respecto del detector.

3.1.2 Caracterización de los patrones

A continuación, se muestran los espectros obtenidos con el programa Genie2000 para los diferentes patrones con los dos tipos de detectores utilizados (Figuras 3.7 a 3.13). A modo informativo, se agregó para cada una de las mediciones, el fondo y un espectro de una fuente patrón puntual de ^{241}Am , el cual indica la energía máxima de las partículas alfa para este radionucleido. NOTA: se presenta, a modo de ejemplo, un espectro de cada serie de medición.

3.1.2.1 Utilizando el detector de silicio

Se realizaron las mediciones seleccionando la región del hisopo donde se absorbió la solución apuntando hacia el detector, para el caso de los patrones 27-22, 28-22 y 29-22. Para el patrón 26-22 fue indistinto, recordando que en este patrón, la gota se absorbió rotando el hisopo 360°.

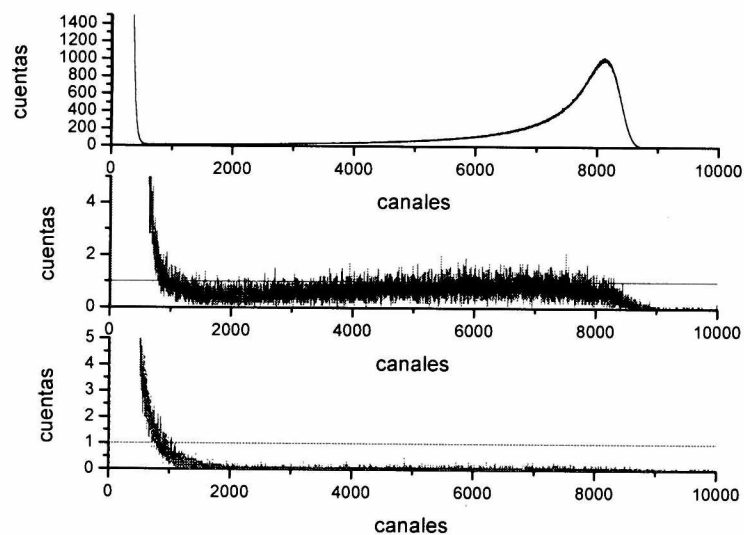


Figura 3.7. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 26-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

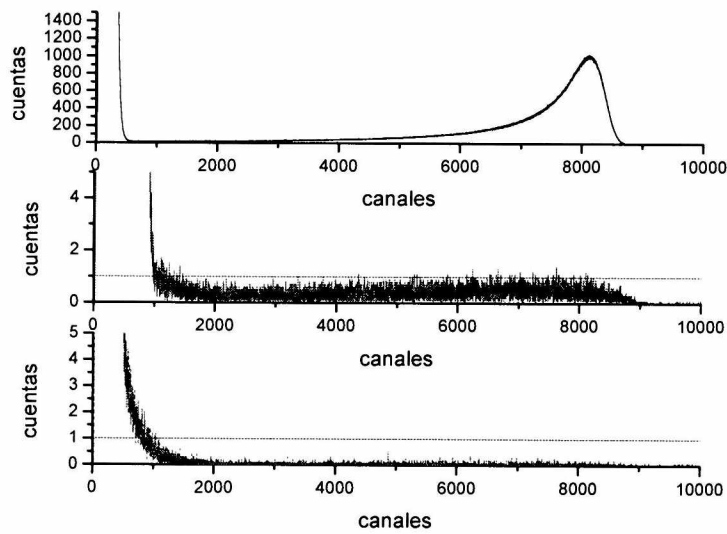


Figura 3.8. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 27-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

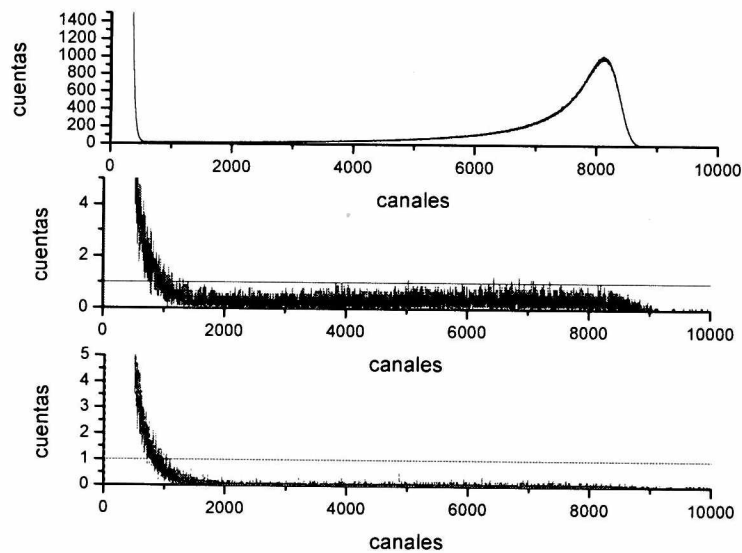


Figura 3.9. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 28-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

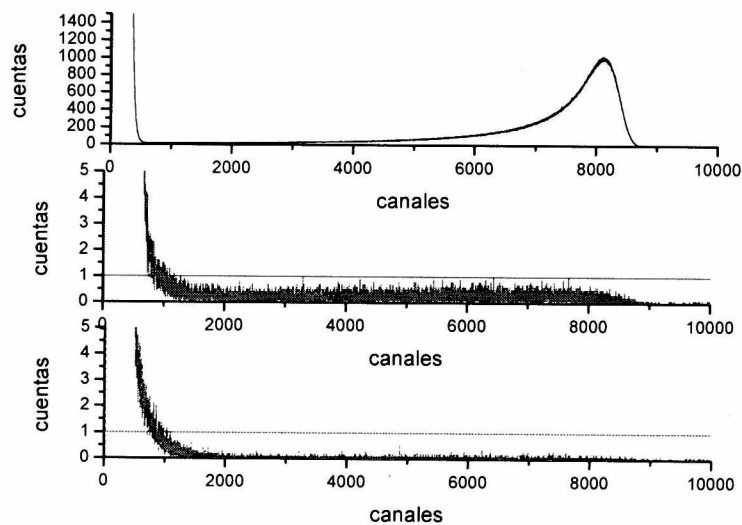


Figura 3.10. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 29-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

En el ANEXO 3 del presente trabajo se muestran 4 espectros para cada uno de los patrones, a modo informativo.

3.1.2.2 Utilizando el contador proporcional

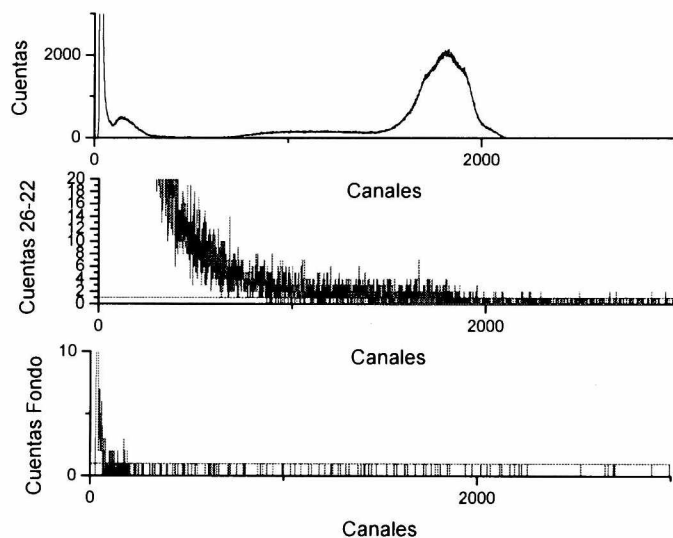


Figura 3.11 De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 26-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

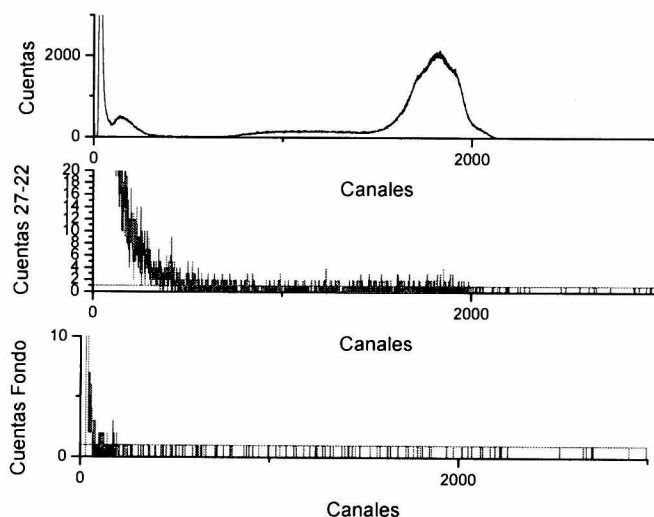


Figura 3.12. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 27-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

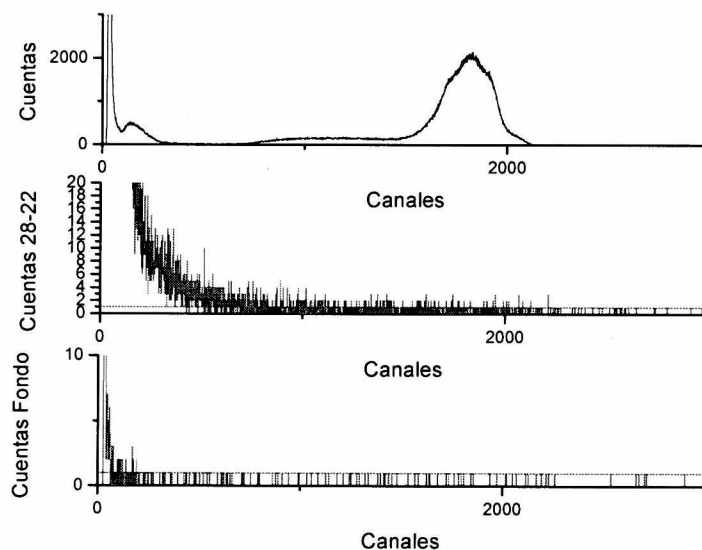


Figura 3.13. De arriba hacia abajo: Fuente patrón puntual de ^{241}Am , patrón de hisopo 28-22, fondo de medición. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

En el ANEXO 4 del presente trabajo se muestran 2 espectros para cada uno de los patrones, a modo informativo.

Durante la inspección visual de cada uno de los espectros, se realizaron observaciones respecto a ciertas características, como la forma general del mismo, la presencia de ruido y el número de canales. A simple vista, los espectros parecen ser muy similares entre sí al comparar ambos detectores. Sin embargo, más adelante se demostrará que existe una marcada diferencia en la eficiencia de detección obtenida con cada uno de los detectores.

En cuanto a la forma de los espectros, se observó que la fuente patrón puntual de ^{241}Am exhibía una baja autoabsorción. Por otro lado, esta característica no se manifestaba de la misma manera en la fuente patrón de hisopo, la cual presentaba una alta autoabsorción debido a las propiedades inherentes de los materiales utilizados en su fabricación. Esto indica que las partículas alfa, emitidas desde regiones más internas del hisopo, experimentaban una disminución en su energía,

lo cual no ocurría con las partículas emitidas desde la superficie del hisopo, las cuales llegaban al detector prácticamente con toda su energía.

3.1.3 Eficiencias de detección

Teniendo los valores de las emisiones netas para cada uno de los espectros de cada patrón se calcularon las eficiencias experimentales correspondientes mediante la ecuación (2). Las Tablas 3.1 y 3.2 resumen estos valores para cada uno de los patrones de hisopo. ACLARACIÓN: a las emisiones se les restó el valor de fondo correspondiente.

3.1.3.1 Utilizando el detector de silicio

Patrón	26-22	27-22	28-22	29-22
Actividad (Bq)	75,57 (7%)	21,33 (20%)	23,33 (20%)	24,82 (20%)
Emisiones (α/s)	2,85	0,65	0,41	1,08
Eficiencia (%)	3,76 (7%)	3,07 (20%)	1,75 (20%)	3,42 (20%)

Tabla 3.1. Resultados obtenidos para cada uno de los patrones de hisopo, restándole a cada uno el fondo.

Según se detalla en la Tabla 3.1, se observaron discrepancias de hasta un 15% en la eficiencia de detección para patrones con actividades aproximadamente similares. Esta variación se consideró inaceptable en los resultados. Por lo tanto, se tomó la decisión de no continuar utilizando este tipo de detector y se exploró la posibilidad de emplear un detector gaseoso tipo contador proporcional. Se esperaba que este tipo de detector proporcionara una mayor eficiencia de conteo debido a cuestiones de geometría.

3.1.3.2 Utilizando el contador proporcional

Patrón	26-22	27-22	28-22
Actividad (Bq)	75,57 (7%)	21,33 (20%)	23,33 (20%)
Emisiones (α/s)	27,36	4,25	4,46
Eficiencia (%)	33,7 (7%)	20,3 (20%)	19,4 (20%)

Tabla 3.2. Eficiencias de detección para cada uno de los patrones.

Tal como se advierte en la Tabla 3.2 se obtuvo un procedimiento de medición que generaba un valor de eficiencia repetible ante una misma experiencia de medición, situación que no se lograba utilizando el detector semiconductor de silicio. Esto se debe a que con el contador gaseoso, se logran contar todas las partículas que se emiten desde el hisopo en todas las direcciones, ya que este se encuentre inmerso en el gas, mientras que en el de silicio, solo se pueden contar las que se emiten con un ángulo entre la posición del hisopo y el detector (ángulo sólido menor a 2π). Para el caso del patrón 26-22 se obtuvo una eficiencia superior debido a que se absorbió la solución de ^{241}Am de una manera diferente a los otros dos patrones, pudiendo detectar mayor cantidad de partículas por la homogeneidad en el hisopo del radionucleido en cuestión.

3.1.4 Medición de frotis para cliente externo

A continuación, se muestran los gráficos correspondientes al fondo y a la muestra recibida en el laboratorio para determinación de ^{252}Cf realizadas con el contador proporcional (Figura 3.14).

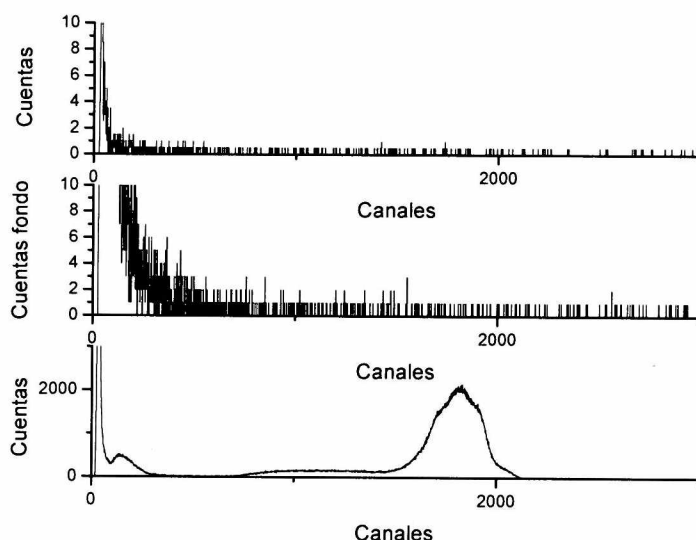


Figura 3.14. De arriba hacia abajo: muestra incógnita de frotis de superficie, fondo de medición, fuente patrón puntual de ^{241}Am . Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV, que sirve como referencia.

Según los gráficos se puede inferir que no existe contaminación alguna en el frotis de hisopo entregado por el cliente, ya que no se observan cuentas visibles en el espectro. En estas condiciones, al cliente se le informa el valor de la Mínima Actividad Detectable (M.A.D), el cual necesita el valor de la desviación estándar del fondo. La Tabla 3.3 muestra los valores de M.A.D calculadas mediante la ecuación (3).

Detector	Contador Proporcional
MAD (α/s)	4,76
MAD (Bq)	23,82

Tabla 3.3. Valores de M.A.D calculados por medio de la ecuación (3).

Conclusiones

Como primera instancia, se elaboraron patrones de hisopo con soluciones de ²⁴¹Am de diferentes actividades utilizando dos técnicas diferentes: absorción en toda la superficie del hisopo y absorción sobre una región de la superficie del hisopo. Esto permitirá al LMR realizar mediciones con mayor precisión para frotis de superficies realizadas con hisopos entregadas por clientes externos.

Se lograron establecer relaciones de eficiencia entre 2 patrones con actividades similares. Además, se identificó que, al realizar el frotis de una manera diferente, abarcando toda la superficie del hisopo, aumenta la eficiencia de detección utilizando el detector gaseoso tipo contador proporcional. Esto abre la posibilidad de realizar frotis de superficie de una manera distinta a la actual, la cual concentra la mayor cantidad de suciedad en una región específica del hisopo.

En relación a los detectores utilizados, si bien ambos presentan eficiencias intrínsecas cercanas a la unidad, se encontró que, el factor geométrico es especialmente relevante en este caso. Si bien ambos detectores lograron detectar prácticamente todas las partículas emitidas por la fuente patrón puntual, no se obtuvo el mismo resultado con los patrones de hisopo. El detector semiconductor de silicio, no resultó óptimo para su uso con este tipo de patrones debido a su geometría. En cambio, el detector contador proporcional permitió detectar todas las partículas emitidas por el hisopo, dado que este se encuentra inmerso en el detector.

Se subraya la importancia de haber desarrollado los patrones de hisopo ya que, debido a su alta autoabsorción, genera espectros distintos a los de una fuente patrón puntual, caracterizada por una baja autoabsorción. Esta variación en el espectro se distingue principalmente por su forma, ya que se distribuyen las cuentas en todos los canales posibles (efecto de espectro continuo). En cambio, para una fuente puntual, el espectro generado exhibe un pico característico, muy bien definido, lo cual lo convierte en un patrón ineficaz para la muestra incógnita.

Se tiene previsto continuar con la elaboración de una mayor cantidad de patrones de hisopo, abarcando un rango más amplio de actividades (Bq), que permita estudiar relaciones de eficiencia y emisión de los mismos.

Se contempla la implementación de una modificación en el contador proporcional de flujo pasante, con el propósito de lograr su estanqueidad. Esta mejora tiene como objetivo reducir la pérdida de gas P10 y, por consiguiente, posibilitar la realización de un mayor número de mediciones utilizando este tipo de detector.

Referencias Bibliográficas

- [1] <https://www.boletinoficial.gob.ar/detalleAviso/primera/245939/20210623>
- [2] JCGM_200_2008_VIM; Vocabulario Internacional de Metrología - Conceptos fundamentales, generales y términos asociados (VIM); Marzo 2009
- [3] Ferrari M.C., “Variación en las eficiencias de detección de radionucleidos en muestras volumétricas mediante espectroscopía gamma de alta resolución”, tesis de Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares, Instituto Dan Beninson, Comisión Nacional de Energía Atómica - Universidad Nacional de San Martín, 2014.
- [4] Glenn Knoll, Radiation Detection and Measurement, 3º edition, ed. John Wiley & Sons.
- [5] Gordon Gilmore, John Hemingway, Gamma Ray Spectrometry, 2º edition, ed. John Wiley & Sons.
- [6] Modular Pulse-Processing Electronics, Ortec
- [7] <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>
- [8] Rossi M.P., “Caracterización de detectores de Germanio mediante códigos Monte Carlo”, tesis de Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares, Instituto Dan Beninson, Comisión Nacional de Energía Atómica - Universidad Nacional de San Martín, 2018.
- [9] Rossi M.P., “Diseño, caracterización y aplicación de detectores del tipo proporcional para la medición del contenido de boro en muestras biológicas”, tesis Doctoral en Tecnología Nuclear, Comisión Nacional de Energía Atómica - Universidad Nacional de San Martín, 2022.
- [10] Capoulat M.E., “Diseño y construcción de una cámara de baja geometría para la medida absoluta de fuentes de nucleidos emisores alfa”, tesis de Licenciatura

en Ciencias Físicas, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales - Universidad de Buenos Aires, 2009.

[11] Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement, Bureau International des Poids et Mesures, Francia, 2008.

ANEXOS

ANEXO I: Cálculo de incertidumbres

Sabiendo que la actividad (Becquerel-Bq) viene dada por la ecuación (4), entonces su incertidumbre (U) será la combinación de incertidumbres introducidas por cada uno de los factores (u_j), según la ecuación (5).

$$Act(Bq) = m(g) \cdot ca\left(\frac{Bq}{g}\right) \quad (4)$$

$$U_{Act} = \sqrt{\left(\frac{\partial A}{\partial m} \cdot u_m\right)^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial ca} \cdot u_{ca}\right)^2} \quad (5)$$

Donde $\frac{\partial Act}{\partial j}$ es la derivada parcial de la actividad con respecto a j y los u_j son las respectivas incertidumbres absolutas de las magnitudes.

La incertidumbre de la masa se tomó como el error de la balanza: 0,0001 g.

ANEXO II: Mínima Actividad Detectable

Existen ciertas circunstancias en las cuales es conveniente estimar la señal más pequeña que se puede detectar de forma confiable para establecer un límite de detección para el sistema de conteo. Algunas agencias regulatorias requieren que una cierta mínima actividad detectable (M.A.D) sea medible mientras se monitorea por una posible presencia de contaminación radiactiva. Está basado en una decisión binaria (sí o no) si una muestra contiene actividad.

En el caso más simple en el que un sistema de conteo está arreglado para detectar radiación. Consideremos N_T como el número de cuentas obtenidas de una muestra incógnita y N_B como el número de cuentas del blanco. Las cuentas netas se calculan como:

$$N_S = N_T - N_B$$

La distribución esperada para N_S es una distribución Gaussiana. Para tomar una decisión de si una muestra tiene o no actividad, N_S es comparado con un nivel crítico L_C . Si $N_S < L_C$ se concluye que la muestra no contiene actividad y viceversa.

Se define a la M.A.D como para generar un valor medio de N_S que es lo suficientemente alto como para reducir la tasa de falsos negativos a un nivel aceptable (<95%). N_D , representa el mínimo valor neto de N_S que representa este criterio. N_D , entonces se convierte en un estimativo numérico del valor medio de las cuentas netas que corresponden con la M.A.D. Para asegurarse que el 95% del área bajo la distribución de N_S caiga por encima del límite L_C , se requiere que:

$$N_D = L_C + 1,645\sigma_{N_D}$$

Considerando $L_C = 2,326\sigma_{N_B}$ y asumiendo que las cuentas son pequeñas comparada con el fondo de medición: $N_D \ll N_B$ y $\sigma_{N_D} = \sqrt{2N_B + N_D}$

$$N_D = 4.653\sigma_{N_B} + 2,706$$

N_D puede ser interpretado como el mínimo número de cuentas necesarias de la fuente para asegurar un falso negativo no mayor al 5% cuando el sistema está operando con un nivel crítico L_C . Para convertir a N_D en la M.A.D, el factor adicional a tener en cuenta es la eficiencia del sistema de detección:

$$M.A.D = \frac{N_D}{Eff} [2]$$

ANEXO III: espectros de patrones medidos con detector de silicio

A continuación se muestran, a modo de ejemplo, cuatro (4) espectros de cada patrón obtenidos con un detector semiconductor de silicio.

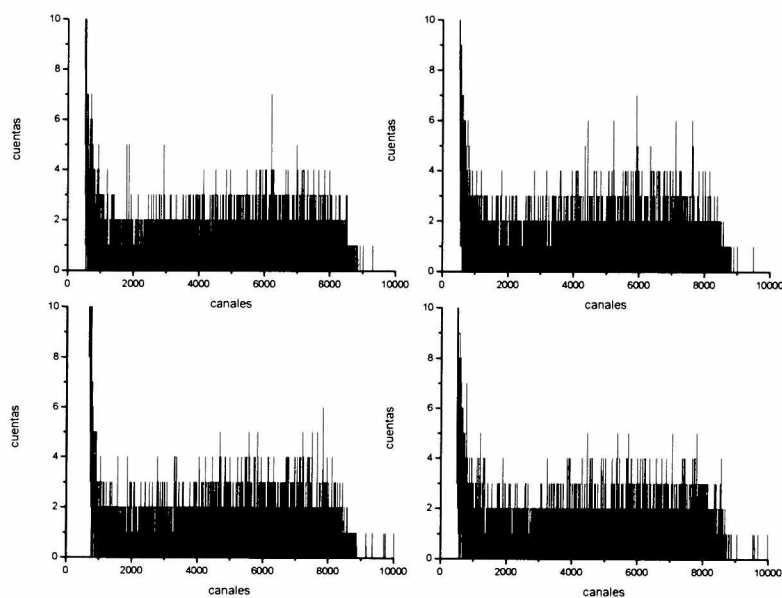


Figura A. Patrón de hisopo 26-22. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

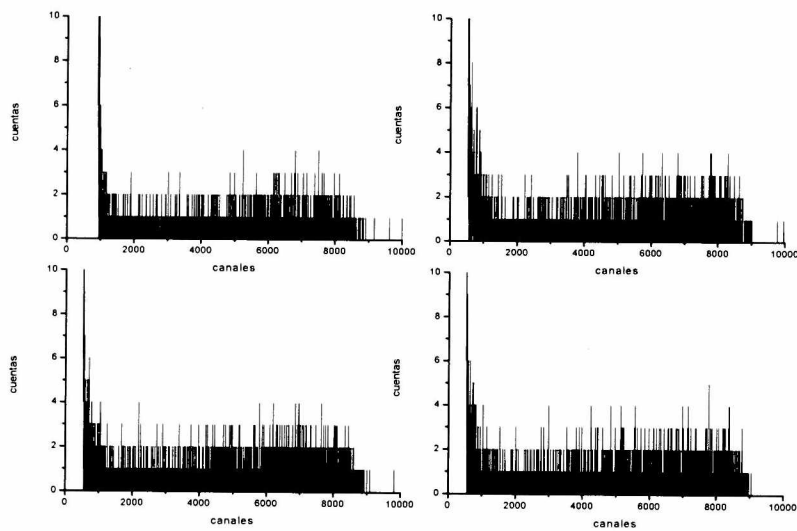


Figura B. Patrón de hisopo 27-22. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

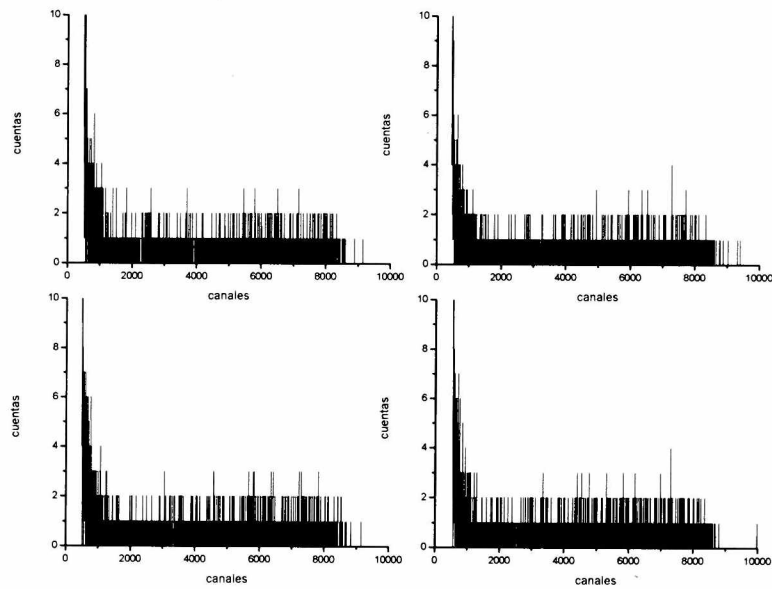


Figura C. Patrón de hisopo 28-22. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

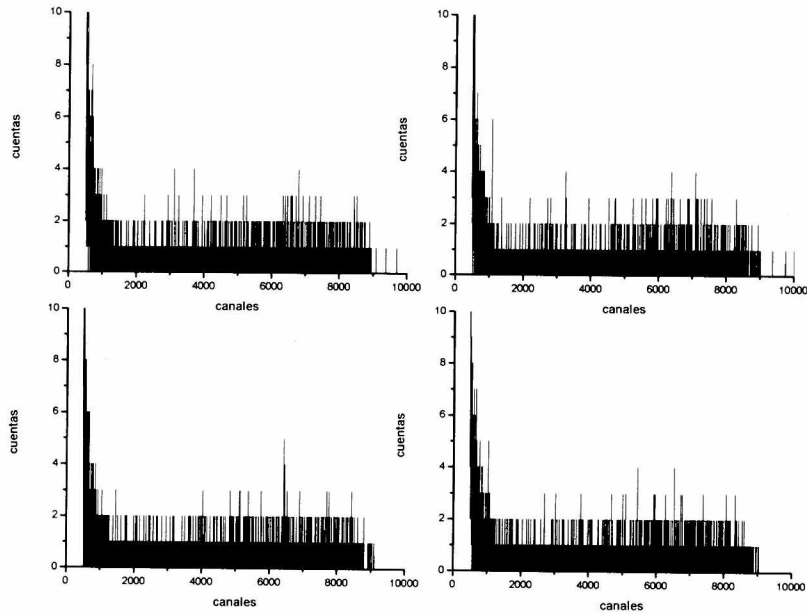


Figura D. Patrón de hisopo 29-22. Aproximadamente en el canal 8000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

ANEXO IV: espectros de patrones medidos con contador proporcional

A continuación se muestran, a modo de ejemplo, dos (2) espectros de cada patrón obtenidos con un detector gaseoso contador proporcional.

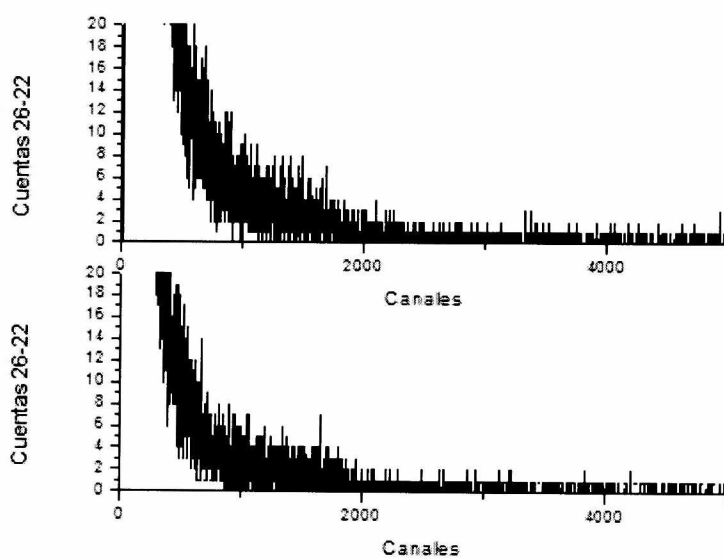


Figura E. Patrón de hisopo 26-22. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

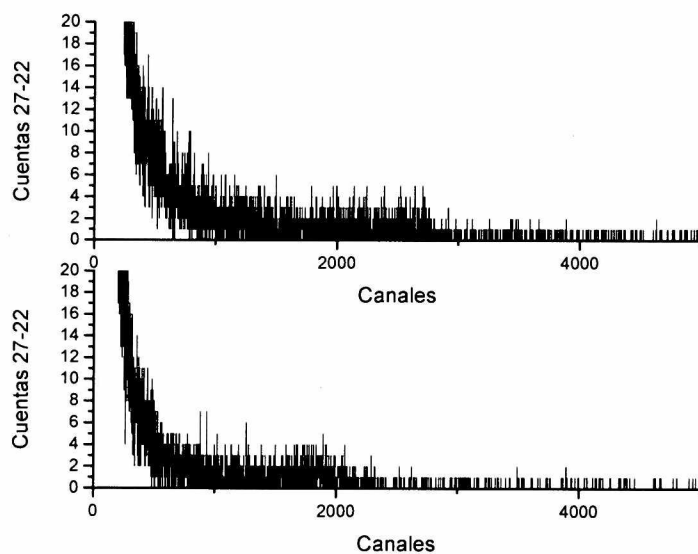


Figura F. Patrón de hisopo 27-22. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV,

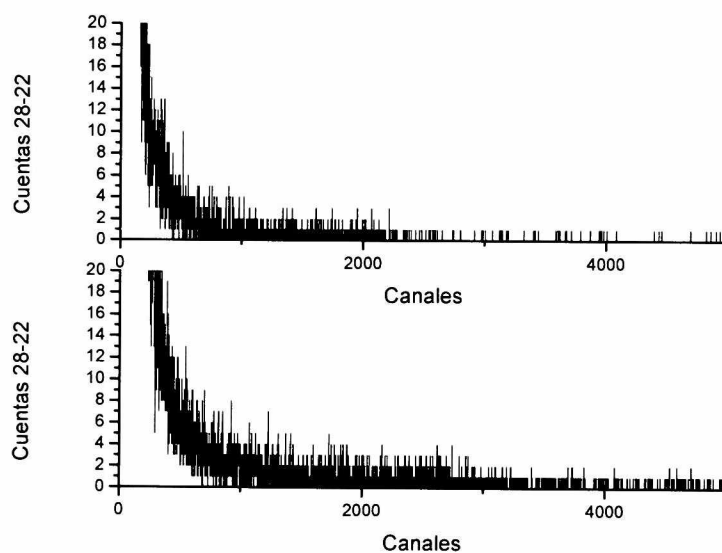


Figura G. Patrón de hisopo 28-22. Aproximadamente en el canal 2000 se observa la energía máxima de la partícula alfa: 5,48 MeV.

AGRADECIMIENTOS

Mario Rossi

María Clara Ferrari

Christian Balpardo

Sebastián Consorti

Sandra Siri

Docentes del Instituto Dan Beninson