

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1966

09.66.09

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

CURSO DE METODOLOGIA Y APLICACION
DE RADIOISOTOPOS

CENTELLEADORES LIQUIDOS

Maela Viirsoo

CENTELLEADORES LIQUIDOS

1.- Generalidades:

El uso de centelleadores líquidos data de 1950, año en que Reynolds y Kallman, independientemente, anunciaron que soluciones diluidas de sustancias fluorescentes en solventes aromáticos podían ser utilizadas para detectar radiaciones. Al principio los centelleadores líquidos fueron empleados en lugar de los cristales sólidos para detectar radiaciones penetrantes, pero pronto se vio que también servían para medir emisores beta, débiles.

Dado que la energía máxima de muchos emisores beta es baja, cualquier material absorbe sus radiaciones con facilidad y resulta difícil medirlas en estado sólido, ya que la muestra misma absorbe gran parte de ellas. La autoabsorción resulta menor si la muestra se disuelve junto con el centelleador en un solvente adecuado. Además, medir una muestra en solución significa tener prácticamente "geometría 4 π ", ya que los átomos que desintegran están completamente rodeados de moléculas del centelleador.

La medición de nucleídos radiactivos con contador de centelleo líquido no solamente provee gran sensibilidad y eficiencia, ofrece también otras ventajas, tales como que generalmente es más sencillo disolver un material dado, que preparar muestras sólidas adecuadas a las condiciones de medición, o llevarlos al estado gaseoso. Además se puede trabajar con volúmenes relativamente grandes.

Las desventajas más notables de esta técnica de medición serían las siguientes:

a) puede ocurrir que la muestra radiactiva sea insoluble en los solventes adecuados. Se recomienda entonces suspenderla en el líquido centelleador, con el consiguiente riesgo de que haya autoabsorción.

b) el instrumental requerido es complejo, y por ende, costoso.

Sin embargo en la gran mayoría de los casos, las ventajas de los centelleadores líquidos son mayores que sus inconvenientes.

2.- Funcionamiento del equipo:

En líneas generales los contadores de centelleo líquido trabajan de la siguiente manera: la muestra radiactiva se incorpora junto con el centelleador en un solvente adecuado y se coloca en el contador. Los destellos producidos por interacción de las partículas beta con el centelleador son detectados por un fotomultiplicador, o sistema de fotomultiplicadores, que convierte la energía luminosa en energía eléctrica. Los im-

pulsos que salen del fotomultiplicador son amplificados electrónicamente, de modo de resultar suficientemente grandes como para poder ser registrados y analizados (figura 1).

Los impulsos producidos por radiaciones beta débiles son de muy pequeña amplitud, de manera que resulta difícil diferenciarlos de los impulsos de ruido térmico que producen los fotomultiplicadores. Una forma de reducir estos impulsos térmicos es refrigerar todo el equipo contador. Otra solución es montar el recipiente con la muestra radiactiva entre dos fotomultiplicadores, unidos a un circuito electrónico de coincidencia, que acepta solamente los impulsos provenientes de ambas salidas. Los impulsos originados por ruido térmico son fortuitos y rara vez coinciden en el tiempo.

3.- La muestra:

La muestra que va a ser medida en un contador de centelleo líquido debe ser considerada como el conjunto de cuatro factores: el solvente, el centelleador, el material radiactivo y el recipiente.

a) El solvente debe permitir una buena transferencia de energía beta al centelleador, sin absorber en forma considerable los fotones producidos, lo cual significaría una disminución del tamaño de los impulsos a la salida del fotomultiplicador. Si se cumplen estas condiciones se dirá que el solvente no produce "quenching". Si por el contrario el solvente absorbe parte de la luz emitida por el centelleador hay "quenching de color" y si absorbe energía de las partículas beta, "quenching químico".

Otros requisitos que debe cumplir el solvente son: no congelar a la temperatura de operación y disolver el material radiactivo a medir. Para lograr esto último, a menudo se recurre a mezclas de distintos solventes: los más utilizados son hidrocarburos y éteres aromáticos.

Cuando no se dispone de un solvente adecuado se suspende la muestra finamente dividida en el solvente. En este caso se requiere además la presencia de un agente que tienda a producir un gel rígido y estable, en el que se introduce el material a medir por simple sacudimiento.

b) El centelleador convierte la energía de las partículas beta en energía luminosa (fotones). Distintas sustancias orgánicas fluorescentes pueden ser utilizadas, siempre que llenen las condiciones de ser solubles en el solvente elegido a la temperatura de trabajo, y no absorber la luz emitida ("autoquenching"). A veces se agrega a la sustancia fluorescente primaria un centelleador secundario, que tiene por objeto llevar la longitud de onda de la luz emitida por el centelleador primario a una zona del espectro donde el fotomultiplicador posea mayor sensibilidad. De esta manera se aumenta considerablemente la eficiencia de medición.

c) Los nucleidos radiactivos que más frecuentemente se miden con contador de centelleo líquido son emisores beta de baja energía:

nucleido	período de semidesintegración	energía beta máxima (MeV)
^3H	12,3 a	0,018
^{14}C	5700 a	0,155
^{35}S	87 d	0,168
^{45}Ca	163 d	0,26
^{59}Fe	45 d	0,46 ; 0,29
^{22}Na	2,6 a	0,58
^{36}Cl	4×10^5 a	0,71

Esto no excluye la posibilidad de medir emisores alfa o gamma con buena eficiencia en este tipo de equipo.

d) El recipiente que contiene el material radiactivo es un factor al que se debe conceder bastante importancia. Los de vidrio contienen ^{40}K , lo cual aumenta el fondo considerablemente. Los de polietileno resultan permeables a muchos solventes orgánicos después de cierto uso y los de cuarzo o vico son costosos. Es importante utilizar el mismo tipo de recipiente para una serie dada de mediciones, ya que las propiedades ópticas varían considerablemente de material a material.

4.- Análisis de alturas de impulsos:

El análisis de alturas de impulsos permite efectuar las siguientes operaciones con el contador de centelleo líquido:

- obtener un punto de operación muy estable.
- discriminar la mayor parte de los impulsos de fondo cuando se mide un nucleido dado.
- monitorear en forma continua la presencia de "quenching", o de impurezas.
- medir muestras marcadas con varios nucleidos.

El análisis de alturas de impulsos se basa en la suposición que al salir de los amplificadores los impulsos son proporcionales en altura (voltaje) a la energía de las radiaciones beta que los originaron. La figura 2 muestra el espectro ideal de impulsos

Los producidos por desintegración beta, a la entrada de los discriminadores A y A' (figura 1). Dada la proporcionalidad entre la energía de las partículas beta y el tamaño de los impulsos, se puede graficar en abscisas energías MeV o alturas de impulsos (voltios), indicando en ordenadas impulsos por minuto.

La constante de proporcionalidad entre altura de impulsos y energía de la partícula beta que la origina es función de la ganancia de la red amplificadora (preamplificador y amplificador) y de la tensión aplicada al fotomultiplicador. Este último parámetro no se ha tenido en cuenta en la figura 2; en cambio en la figura 3 está indicada una serie de curvas, cada una de las cuales representa el espectro de impulsos originado por un emisor beta, para distintas tensiones aplicadas al fotomultiplicador. La forma del espectro va variando a medida que aumenta la tensión aplicada: el punto en que la curva corta al eje de las abscisas se corre hacia los voltajes mayores (mayor altura de impulso), porque al aumentar la tensión hay más ganancia y los impulsos cercanos a la tensión de corte (energía máxima) se hacen cada vez mayores. Dado que el área encerrado por la curva debe mantenerse constante, (la actividad es un valor dado) la altura del pico de la curva se reduce.

Los impulsos que salen de los amplificadores A y A' (figura 1) se enfrentan con los discriminadores que tienen por objeto aceptar o rechazar los impulsos maypres en altura a un nivel dado. Disponiendo de tres discriminadores se logra que los impulsos de altura comprendida entre las tensiones de base fijadas por los discriminadores A y B sean registrados en un escalímetro ("escalímetro rojo"), mientras que los impulsos de altura mayor que B, pero menor que la tensión de base del discriminador C pasen a un segundo escalímetro ("Escalímetro verde") sin modificar las condiciones de operaciones del primero. Evidentemente los impulsos menores que la tensión fijada por el discriminador A y mayores que la tensión de C, son automáticamente rechazados. En la figura 4 se repite lo graficado en la figura 3, habiendo añadido los niveles de referencia de los discriminadores. El número de cuentas registrado por cada escalímetro viene dado por el área del espectro delimitado por los discriminadores. Cuando el control de "alta tensión" está en la posición 1 no se registran cuentas en ninguno de los dos escalímetros, porque el espectro está enteramente debajo de la base de A-A'. Para la posición 2 de "alta tensión" entra en el escalímetro rojo alrededor de 50% de los impulsos, mientras que en el escalímetro verde no se registra nada. En la posición 3 el escalímetro rojo cuenta aproximadamente 70% de los impulsos, pero el verde todavía no registra cuentas. Al pasar a la posición 4 el escalímetro verde comienza a contar, mientras que el número de cuentas en el rojo se mantiene casi constante con respecto al valor anterior. En la posición 5 las cuentas habrán disminuído en el escalímetro rojo y aumentado considerablemente en el verde. Si se sigue aumentando la tensión del fotomultiplicador, se observa que las cuentas registradas en el escalímetro rojo siguen disminuyendo, mientras que en el verde se llega a un valor máximo, para luego disminuir también. Es decir que gradualmente el espectro va pasando frente a una "ventana" o "canal": el número de cuentas aumenta primero, para luego disminuir. Si la "ventana" no tuviera

un límite superior, no se observaría esa disminución, sino que una vez alcanzado el máximo, el número de cuentas se mantendría aproximadamente constante. En la figura 5 está representada una serie de curvas para distintos anchos de "ventana".

En las condiciones normales de trabajo las tensiones de base de los discriminadores quedan fijadas y la alta tensión se ajusta de manera de obtener el número máximo de cuentas. Se dice entonces que se opera en el "punto de balance" o "punto de equilibrio". Este punto representa las condiciones óptimas de trabajo, no solamente porque se obtenga la máxima eficiencia de medición para esa "ventana", sino también porque la operación resulta más estable. Esto está demostrado en la figura 6, donde la curva llena corresponde a un espectro de impulsos obtenido con la alta tensión ajustada de manera de trabajar en el "punto de balance". La curva punteada muestra lo que ocurre cuando disminuye la ganancia, por ej. al bajar la tensión de líneas. Ambas curvas se entrecruzan en la parte central de la "ventana", mientras que hacia la izquierda aumenta el número de cuentas y hacia la derecha disminuye. Algo similar, pero a la inversa, ocurriría al haber un pequeño aumento de ganancia. Por lo tanto si se trabaja en el "punto de balance", la medición no es afectada por pequeñas variaciones de tensión.

Por otra parte la figura 6 sirve también para demostrar como se puede monitorear la presencia de "quenching". La curva llena corresponde a una muestra pura, sin "quenching", que para condiciones de trabajo tales que el escalímetro rojo registra lo correspondiente a la "ventana" A A'- B y el verde lo que corresponde a B-C, da una relación de actividades en las dos "ventanas" aproximadamente constante. Esa relación varía considerablemente si se produce "quenching", lo cual está indicado por la curva punteada.

La medición de muestras marcadas con dos nucleídos es otra de las operaciones que se basa en el análisis de alturas de impulsos. La alta tensión se ajusta de manera que uno de los nucleídos sea contado con buena eficiencia en una "ventana" y con baja eficiencia en la otra, mientras que para el otro nucleído estas condiciones se cumplen en forma inversa. Conociendo la eficiencia con que se miden estos nucleídos en cada "ventana", por comparación con patrones de los mismos, se puede dosar la cantidad de material radiactivo presente, resolviendo un sistema de dos ecuaciones. En la figura 7 se tiene un espectro ideal de impulsos de una mezcla de dos emisores beta débiles. Si en el escalímetro rojo se registran las cuentas de A A' a B y en el verde las de B a C, la actividad medida en el escalímetro rojo será:

$$A_r = a_1 e_{1r} + a_2 e_{2r} \quad (1)$$

y la actividad medida en el escalímetro verde:

$$A_v = a_1 e_{1v} + a_2 e_{2v} \quad (2)$$

siendo:

a_1 : actividad del nucleído 1

a_2 : actividad del nucleído 2

e_{1r} : eficiencia de medición del nucleído 1 en el escalímetro rojo

e_{2r} : eficiencia de medición del nucleído 2 en el escalímetro rojo

e_{1v} : eficiencia de medición del nucleído 1 en el escalímetro verde

e_{2v} : eficiencia de medición del nucleído 2 en el escalímetro verde.

Resolviendo el sistema de ecuaciones (1) y (2) se tiene:

$$a_1 = \frac{A_r - A_v \frac{e_{2r}}{e_{2v}}}{e_{1r} - e_{1v} \frac{e_{2r}}{e_{2v}}} \qquad a_2 = \frac{A_r - A_v \frac{e_{1r}}{e_{1v}}}{e_{2r} - e_{2v} \frac{e_{1r}}{e_{1v}}}$$

Siendo ambas expresiones relaciones de diferencias, los errores resultan considerables si se trabaja con cantidades que difieren poco entre sí. El grado de separación de los dos nucleídos es función de la diferencia entre sus energías beta máximas; se obtiene buenos resultados si la relación de energías es de cinco a uno, pero no conviene medir muestras doblemente marcadas con nucleídos de energías parecidas.

Un método alternativo para dosar una muestra doblemente marcada sería comprendido o expandiendo el espectro de impulsos por ajuste de la alta tensión: tal como está demostrado en la figura 8 para un valor bajo de alta tensión y en la figura 9 para un valor alto de la misma. Mediante el uso de patrones se determina la eficiencia de medición en cada caso. También es válido lo que se dijo con respecto al error en el caso anterior: si los espectros de los impulsos de los dos nucleídos no están suficientemente separados, al procesar los datos se tendrá que restar números parecidos, lo cual llevaría a resultados pequeños en magnitud y de escaso valor significativo.

5.- Corrección del "quenching".

La incorporación de una muestra radiactiva, sobre todo si se trata de material

biológico a la solución centelleadora produce "quenching", reduciendo la eficiencia de la medición. Resulta por consiguiente necesario aplicar correcciones si se quiere conocer la actividad absoluta de una muestra, o si se quiere comparar muestras que se miden con distinta eficiencia.

Hay distintos métodos para efectuar correcciones de "quenching", los más difundidos son el método del standard interno y el método de relación de canales.

a) Método del standard interno: La muestra se prepara por duplicado y se agrega una cantidad conocida de nucleído con el que se trabaja a una de ellas ("standard interno"). La diferencia entre las mediciones obtenidas para ambas muestras corresponde al standard interno y permite calcular la eficiencia de medición para las condiciones de trabajo utilizadas. Una variante consiste en medir la misma muestra antes y después de agregarle el standard interno.

Teóricamente las condiciones de medición no deberían variar cuando se agrega el standard interno. Esto se logra con más facilidad cuando se preparan muestras por duplicado, que cuando se mide la misma muestra con y sin standard interno. La composición física y química del standard debería ser muy similar a la de la muestra, y su agregado no debería alterar en forma significativa el volumen total que se mide; cuando se preparan muestras por duplicado para agregar standard interno a una de ellas, conviene añadir el mismo volumen de una solución no radiactiva a la otra.

b) Método de relación de canales: se usa cuando se dispone de un equipo con por lo menos dos "canales", capaz de efectuar análisis de alturas de impulsos. La eficiencia de medición se toma como la relación de los valores obtenidos en un "canal" con respecto a los del otro.

Los dos "canales" se fijan de manera de cubrir casi totalmente el espectro de impulsos, con un número de cuentas aproximadamente igual en ambos "canales" para una muestra sin "quenching". Se prepara una serie de muestras con igual cantidad de solución radiactiva y cantidades crecientes de una sustancia que produzca "quenching", en forma similar a la que se quiere estudiar. Con los datos de medición se prepara un gráfico con la relación de los dos "canales" en función de la eficiencia suma en ambos. La eficiencia de medición de una muestra dada se lee directamente del gráfico.

El método de relación de canales tiene varias ventajas sobre el método del standard interno: se reduce el manipuleo de la muestra que no es medida más que una sola vez, la muestra es recuperable y la medición puede ser repetida, ya que no se agrega material extraño.

Ultimamente algunos equipos vienen previstos de un standard externo para corregir "quenching". Se trata de una fuente emisor gamma que automáticamente es contada después de cada muestra. La radiación gamma produce por efecto compton destellos luminosos que son afectados por sustancias que producen "quenching" en forma parecida a lo que ocurre con los destellos originados por la radiación beta de la muestra que se mide. -

Obras consultadas:

"Liquid Scintillation Counting" C.G. Bell y F. Newton Hayes (editores) Pergamon Press 1958. -

"Packard Technical Bulletins" No. 1 al 16. Packard Instrument Co. Inc. 1963-1966. -

"Catalog 100: Instruments for Radioactivity Measurement and Chromatography" Packard Instrument Co., Inc. 1966. -

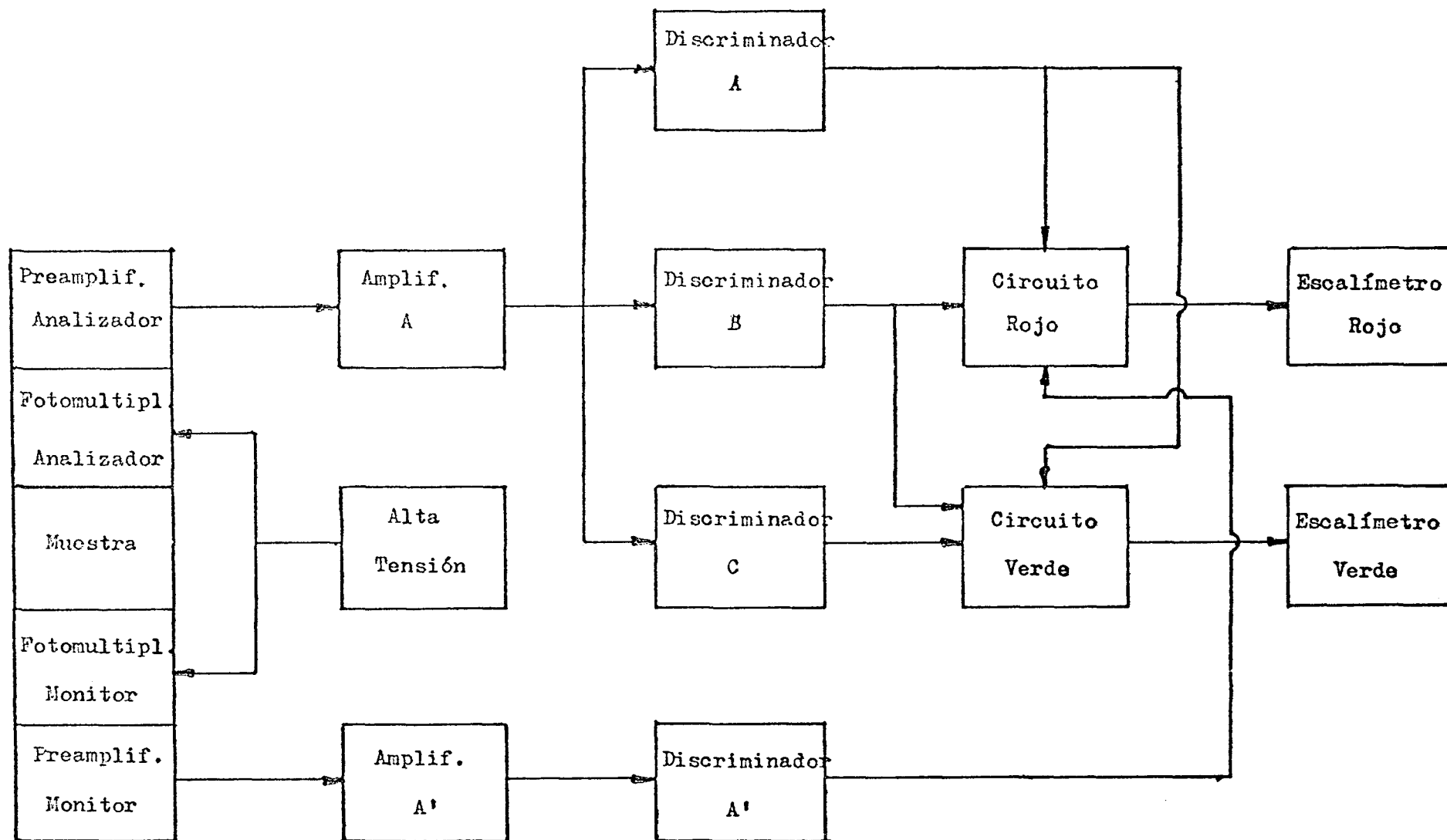


FIGURA 1 : Esquema de un Espectrómetro de Centelleo Líquido TRI CARB

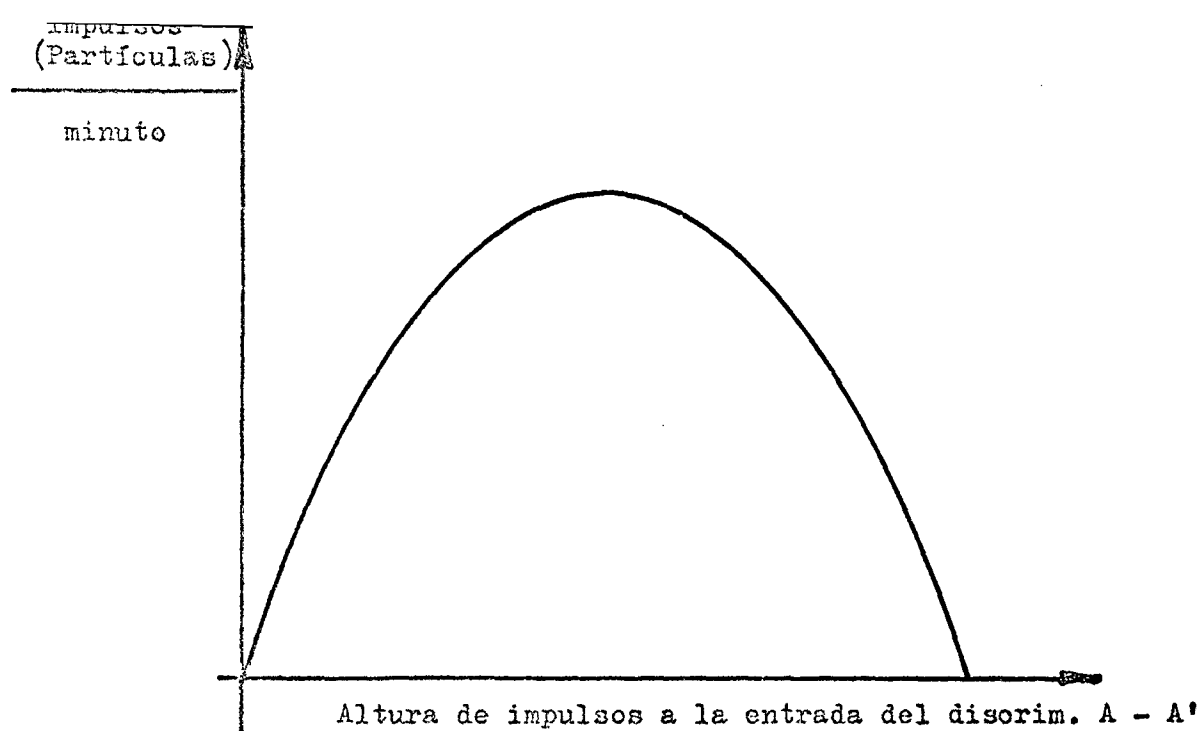


FIGURA 2: Espectro ideal de impulsos a la entrada de los discriminadores A - A' (Energía partículas β)

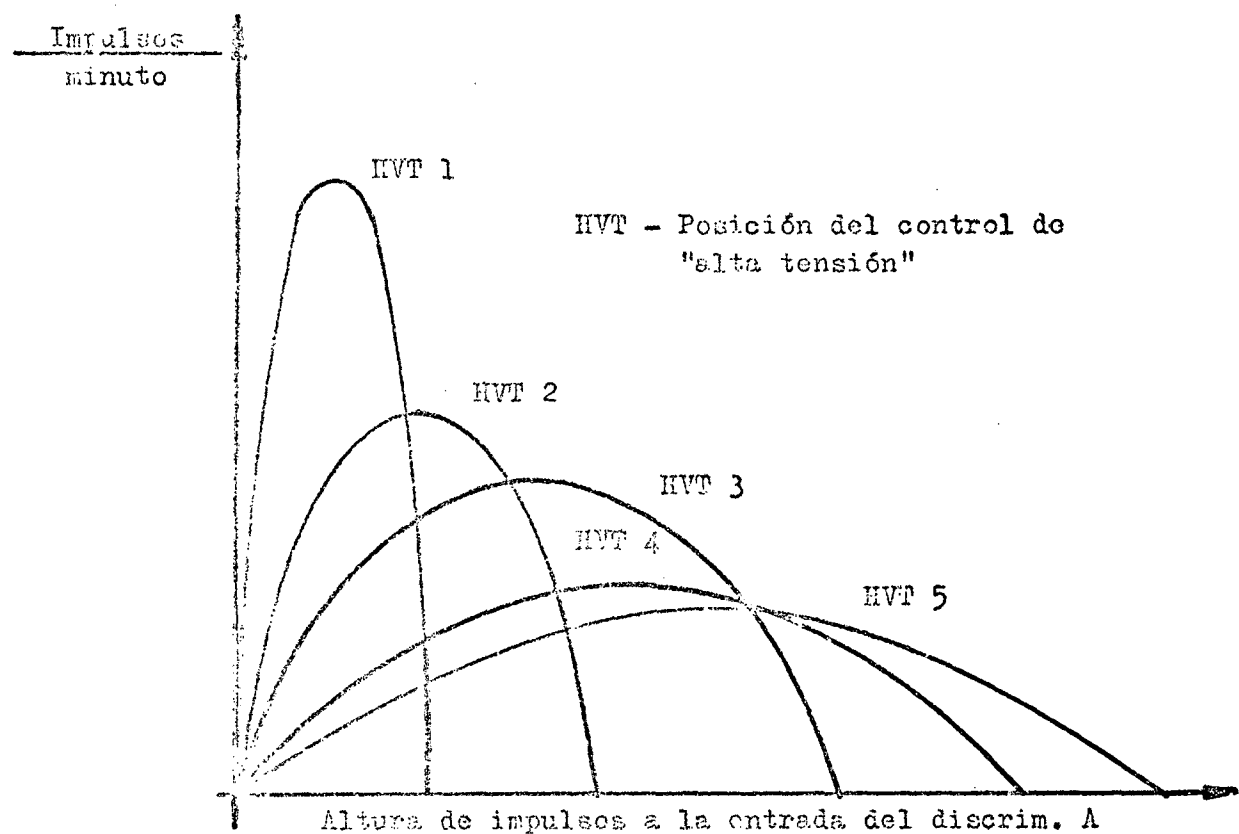


FIGURA 3: Espectro ideal de impulsos a la entrada del discriminador A, producidas por desintegración β , para distintas posiciones del control de "alta tensión".-

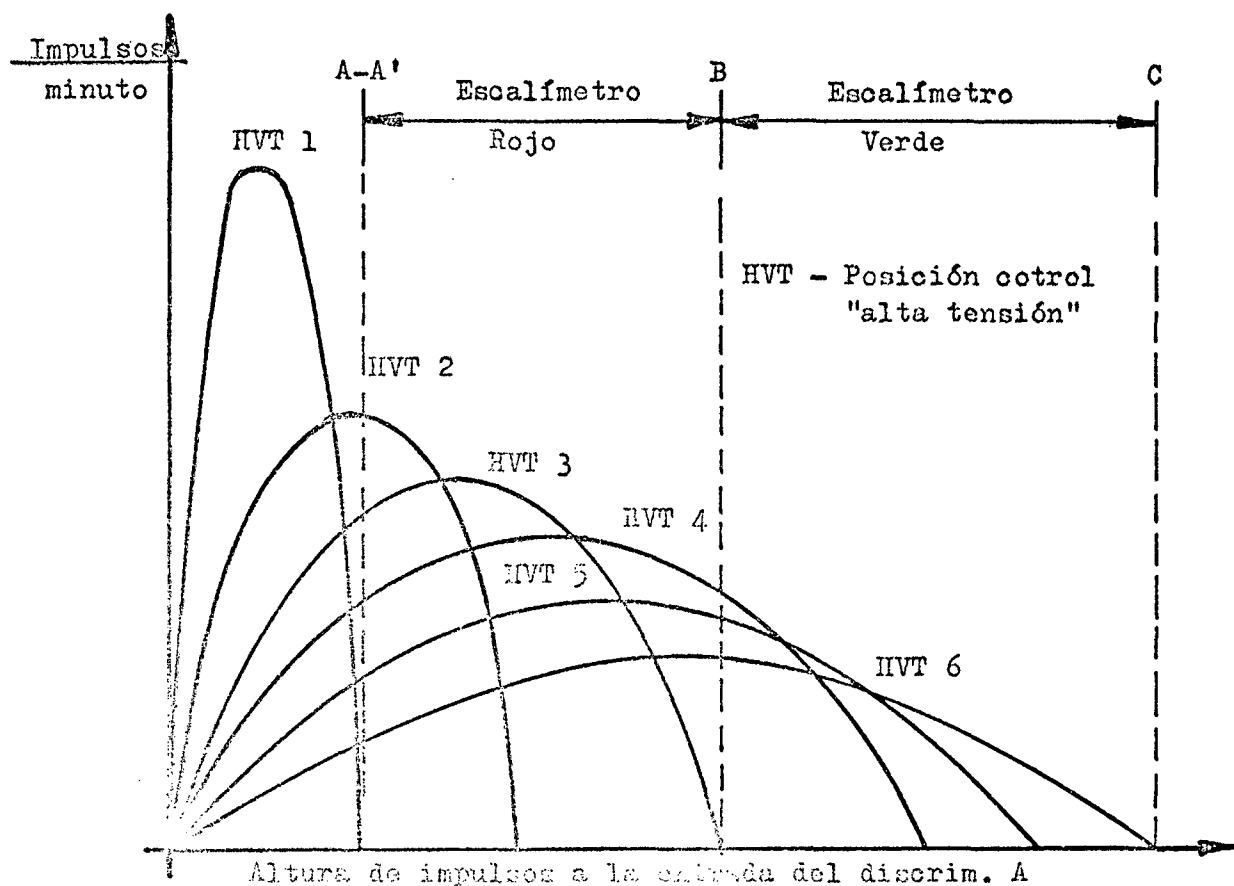


FIGURA 4: Espectro ideal de impulsos a la entrada del discriminador A, producido por desintegración β .-

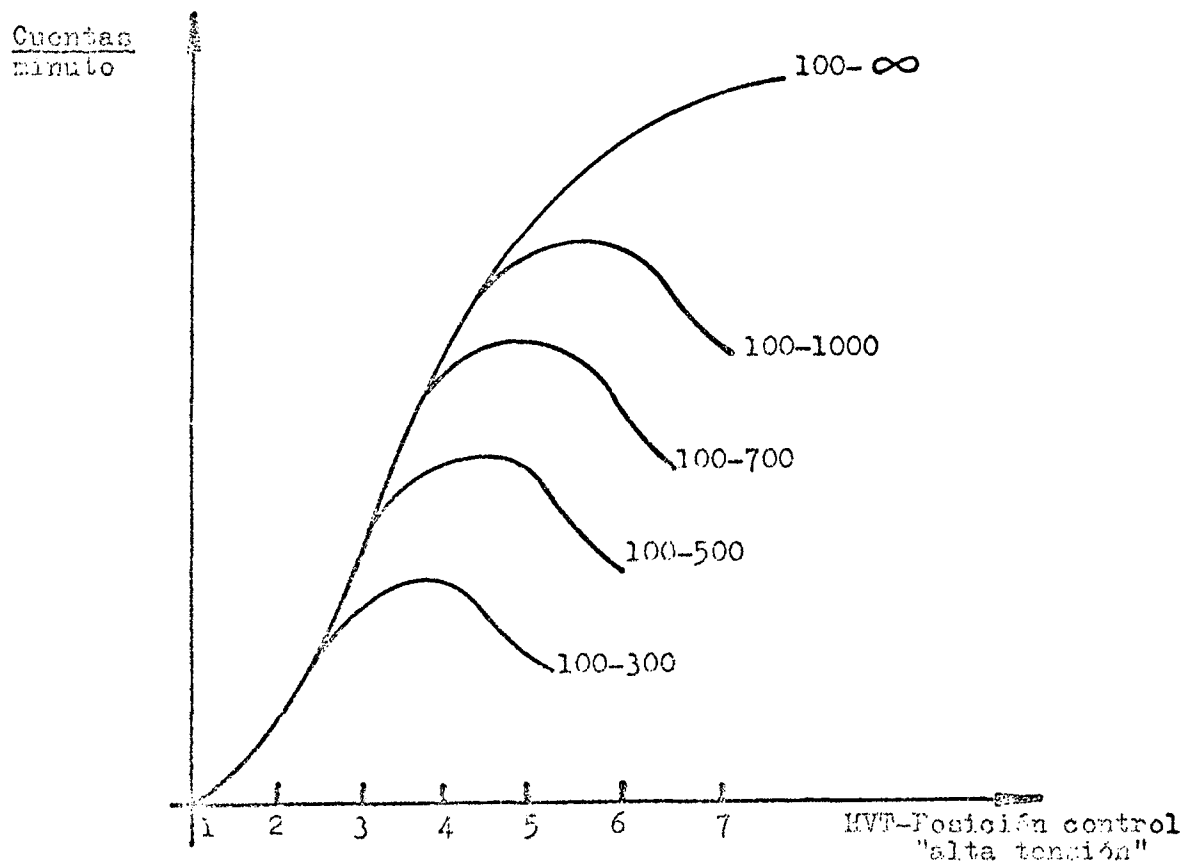


FIGURA 5: Serie de curvas para distintos anchos de "ventana".-

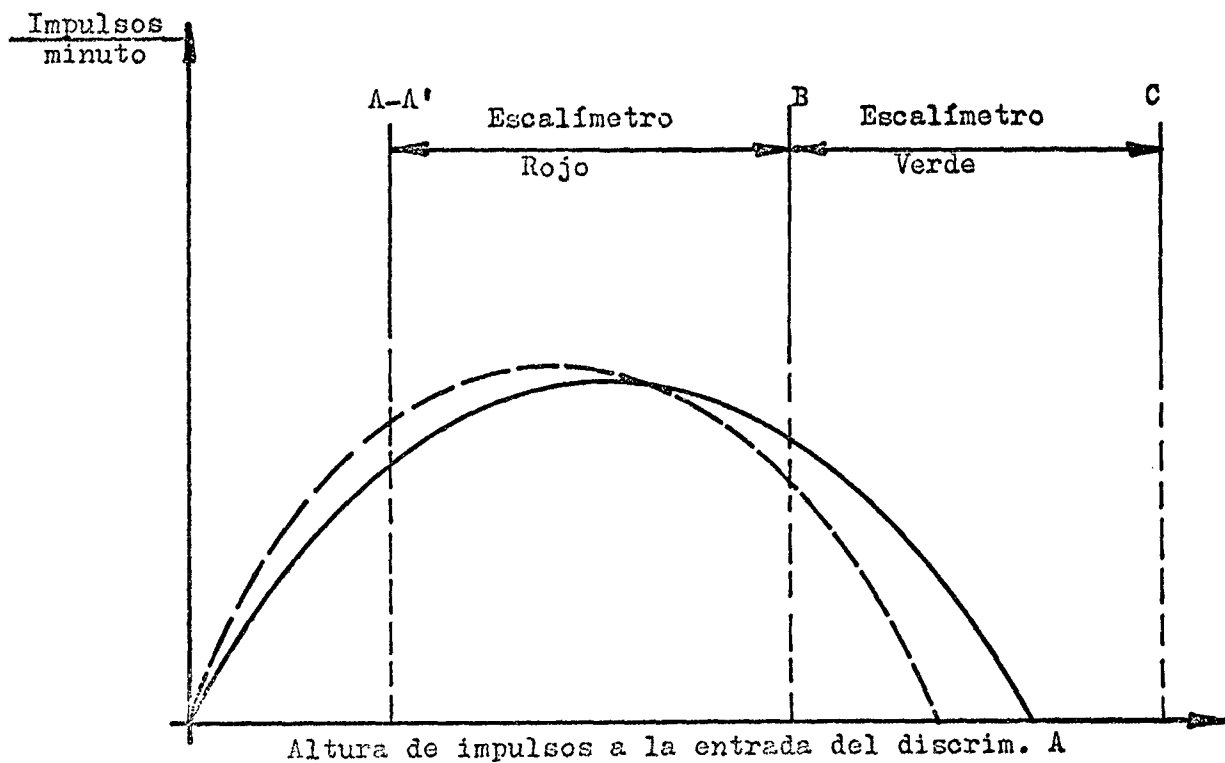


FIGURA 6: Desplazamiento del espectro de impulsos.-

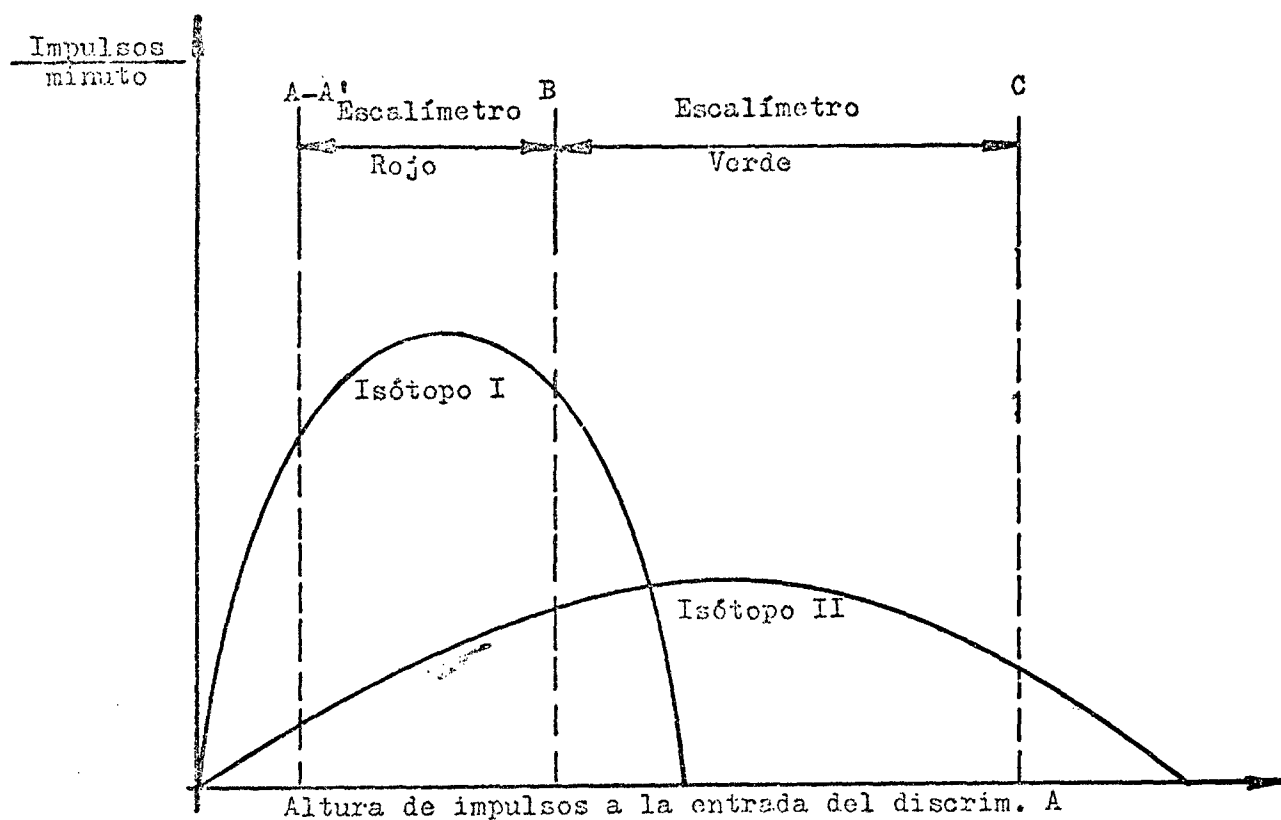


FIGURA 7: Espectro ideal de impulsos a la entrada del discriminador A, producidos por desintegración β de 2 isótopos.-

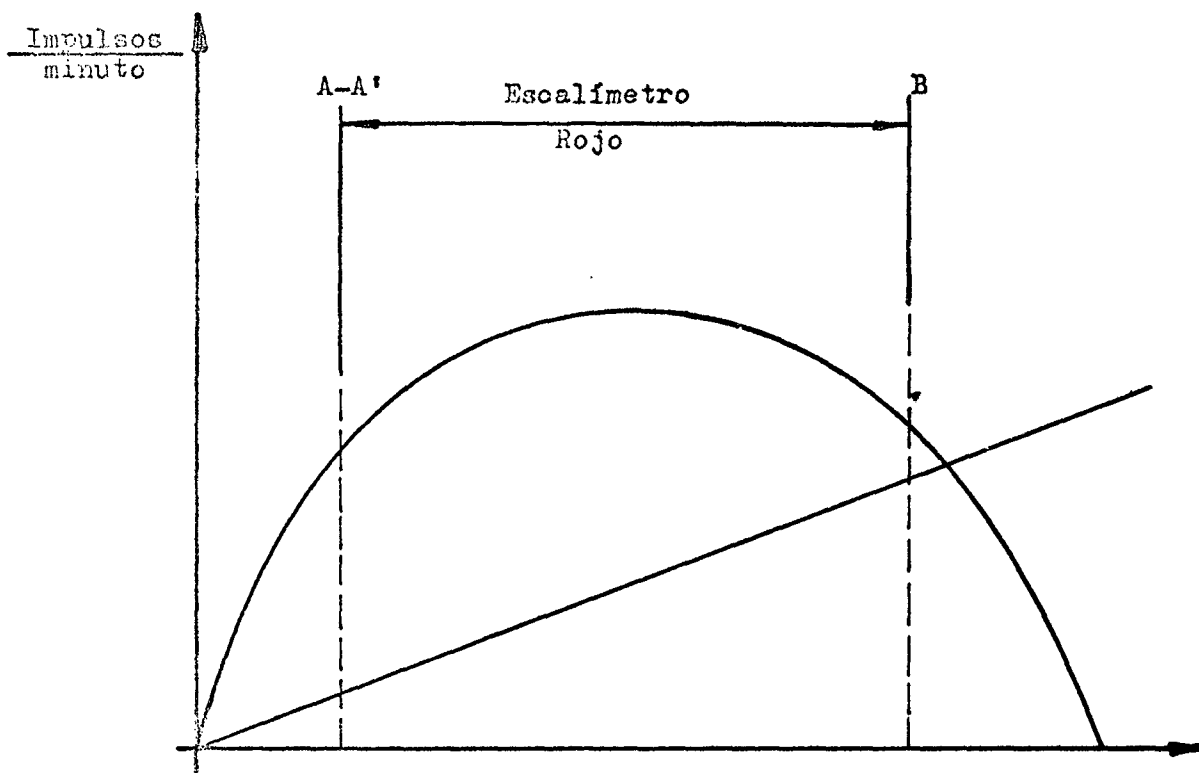


FIGURA 8: Espectro ideal de impulsos a la entrada del discriminador A, producido por desintegración β , para bajos valores de alta tensión.-

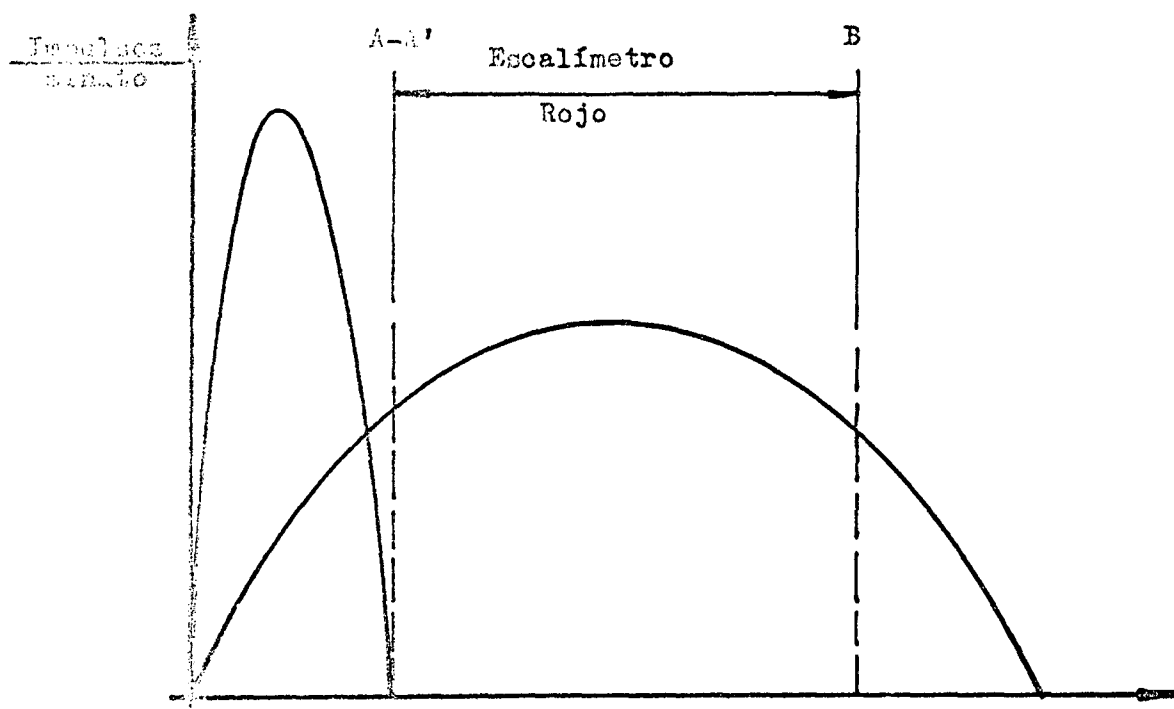


FIGURA 9: Espectro ideal de impulsos a la entrada del discriminador A, producido por desintegración β , para altos valores de alta tensión.-