

24  
38

ANALISIS  
RADIOLOGICO  
DE  
FERTILIZANTES  
- QUIMICOS -  
- Y -  
SUS  
SUBPRODUCTOS

TESIS PROFESIONAL  
CRISTO PSARROS YUYUCU  
FACULTAD DE CIENCIAS  
FISICA  
UNAM  
1989

TESIS CON  
FALTA DE ORIGEN



Universidad Nacional  
Autónoma de México



## **UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso**

### **DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

## INDICE

INTRODUCCION.

PLANTEAMIENTO DEL PROBLEMA.

- a) Fertilizantes Químicos y sus Subproductos.
- b) Aspectos Radiológicos de los Subproductos.
- c) El Destino de los Subproductos.

BIBLIOGRAFIA.

II. ASPECTOS DE FISICA DE LA RADIACION.

- a) Radiactividad.
- b) Decaimiento Radiactivo.
- c) Interacción de la Radiación con la Materia.
  - A. Absorción de Partículas Cargadas; Alcance.
  - B. Interacción con Radiación Electromagnética.
    - i) Emisión  $\gamma$  y  $x$ .
    - ii) Efecto Fotoeléctrico.
    - iii) Efecto Compton.
    - iv) Producción de Pares.
- d) Aspectos de Seguridad Radiológica; unidades.
  - i) Seguridad Radiológica.
  - ii) Definiciones y Unidades.

BIBLIOGRAFIA.

### III. DETECCION DE LA RADIACION.

a) Detección de la Radiación.

b) Detección por Trazas en Sólidos.

- i) Generalidades.
- ii) Modelo de Formación.
- iii) Materiales Detectores.
- iv) Técnica de Revelado.
- v) Técnica de Conteo.

c) Detección por Medio de Espectroscopía Gamma.

- i) Detectores de Estado Sólido.
- ii) Analizadores de Altura de Pulsos.
  - 1) Analizador de Altura de Pulsos Monocanal.
  - 2) Analizador de altura de Pulsos Multicanal.
- iii) Espectrometría Gamma.

### BIBLIOGRAFIA.

### IV. METODO DE ANALISIS PROPUESTO E INSTRUMENTACION.

a) Detección por Medio de Trazas en Sólidos.

- i) Irradiación.
- ii) Grabado.
- iii) Sistema de Conteo.

b) Espectrometría Gamma Mediante el Analizador de altura de Pulsos Multicanal.

- i) Detección.
- ii) Análisis.

c) Ventajas.

### BIBLIOGRAFIA.

## V) PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL.

### i) Detección por Trazas.

- a) Preparación de los estándares.
- b) Calibración.
- c) Mediciones en muestras.

### ii) Espectrometría Gamma.

- a) Parámetros de Operación y Resolución.
- b) Preparación de los Estándares.
- c) Calibración.
- d) Mediciones en muestras.

## VI. RESULTADOS.

### a) Detección por Trazas.

### b) Espectrometría Gamma.

## VII. CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES.

## APENDICES.

A. METODO DE EVALUACION DE LA RESOLUCION DE PICOS PARA EL CASO DE LA ESPECROSCOPIA GAMMA.

B. METODO DE LA EVALUACION DE LA EFICIENCIA ABSOLUTA DE DETECCION.

C. EL METODO DE LOS MINIMOS CUADRADOS.

D. METODO DE EVALUACION DE LA ACTIVIDAD.

E. CONCENTRACION DE U Y Ra EN NITRATO DE URANILO.

F. FOTOGRAFIAS DE LA INSTRUMENTACION BASICA UTILIZADA.

## BIBLIOGRAFIA.

## BIBLIOGRAFIA GENERAL.

## INTRODUCCION.

Esta tesis tiene como objetivo proponer un método alternativo de análisis radiológico para fertilizantes químicos y sus subproductos.

En general, para la evaluación del contenido de uranio en fertilizantes se utiliza un procedimiento químico el cual, además de complicado, y lento, requiere de una instalación costosa.

En el presente trabajo se propone el método de detección por medio de trazas en sólidos (DTES), como otra opción a las técnicas ya existentes, pues resulta más simple, más rápido, se puede realizar "in situ" y a bajos costos.

Para propósitos de comparación y evaluación del método de DTES se usó paralelamente, el método de análisis de espectroscopía gamma mediante un analizador de altura de pulsos multicanal.

Como objetivo final se propone evaluar las posibles repercusiones ambientales que plantea la industria de fertilizantes y se establecieron las recomendaciones para la prevención de los posibles daños al medio ambiente.

Las muestras que se analizaron fueron: roca fosfórica, ácido fosfórico y yeso (en el capítulo I se presenta más información sobre estos materiales). El trabajo está dividido en 6 capítulos y

5 apéndices.

En el primer capítulo se presentan los aspectos básicos relacionados con la producción de fertilizantes químicos y se plantea la problemática originada por la industria en cuestión.

En el segundo capítulo se desarrollan los aspectos de la física de la radiación relacionados con el presente trabajo, como también los conceptos básicos relacionados con la seguridad radiológica y las unidades correspondientes.

En el tercer capítulo se presentan varios métodos de detección, poniendo atención en los utilizados en el este trabajo.

En el cuarto capítulo se presenta el método de análisis propuesto y la instrumentación asociada.

En el quinto capítulo se describe el procedimiento experimental, y se presentan los resultados relacionados con la calibración y las mediciones hechas en las muestras.

En el sexto capítulo se exhiben los resultados aquí obtenidos, comparados con otros similares de algunos otros países.

En el séptimo capítulo se presentan las conclusiones, y la evaluación del impacto ambiental, así como las recomendaciones que se creen pertinentes.

En los 5 apéndices se presenta el método de evaluación de la resolución de picos para el caso de la espectrometría gamma, el método de evaluación de la eficiencia absoluta de detección, el

método de los mínimos cuadrados, el método de evaluación de la actividad y el método mediante el cual se calculó la actividad de U y Ra en los estándares.



## I. PLANTEAMIENTO DEL PROBLEMA

### a) Fertilizantes Químicos y sus Subproductos.

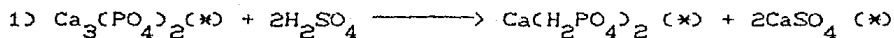
Desde hace millones de años se han venido formando depósitos naturales de roca fosfórica. La mayor parte de esta roca corresponde a la fosforita y la apatita, que contienen grandes cantidades de fosfato tricálcico  $[\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2]$ . Este representa el mineral básico para la producción de fertilizantes químicos.

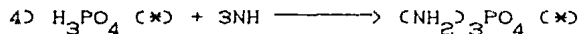
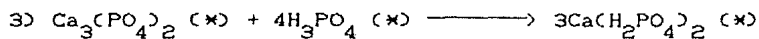
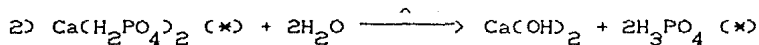
El fosfato tricálcico se somete a varios procesos antes de usarse para la producción de fertilizantes. En las figuras (I-1) e (I-2) se presentan dos tipos de procesamiento y de producción [2].

En el esquema de la fig. (I-1) el mineral mencionado es enriquecido por aglomeración, limpiado (flotación), y secado, y después calcinado a  $815^\circ\text{C}$  para expulsar algunos elementos orgánicos y radiactivos (Po-210).

Los productos comerciales son el ácido fosfórico  $(\text{H}_3\text{PO}_4)$ , superfosfato triple  $[\text{3Ca}(\text{H}_2\text{PO}_4)_2]$ , y fosfato de amonio  $[(\text{NH}_2)_3\text{PO}_4]$ . El subproducto principal es el yeso  $(\text{CaSO}_4)$ . Este se produce en grandes cantidades (como ejemplo se menciona la planta de Idaho, EUA, en la cual se producen  $1.25 \times 10^6$  ton/año [2]).

Las reacciones químicas relacionadas con este proceso de producción son:

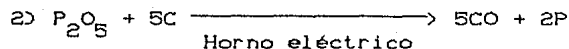
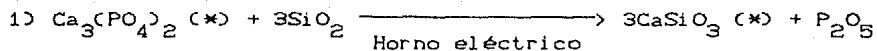




(\*) representa el compuesto de uranio ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ), que no se mezcla con los demás constituyentes de la reacción, haciéndose presente en todo el proceso químico y por lo tanto en los productos y subproductos finales.

En el esquema de la fig. (I-2) se tiene otro proceso en donde el fosfato tricálcico es calcinado a  $1315^\circ\text{C}$  y después fundido en hornos eléctricos. El producto principal es el fósforo (generalmente se obtiene como pentóxido de fósforo,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ), y como subproducto tenemos escoria ( $\text{CaSiO}_3$ ), de la que se obtienen asfalto, concreto y otros materiales. Mencionamos de nuevo la planta de Idano, EUA, en donde se producen  $2.4 \times 10^6$  toneladas de escoria por año [2].

Las reacciones químicas relacionadas con este proceso son:



Resumiendo, podemos decir que la producción de fertilizantes contribuye al aumento de la cantidad de elementos radiactivos en el medio ambiente [2][4].

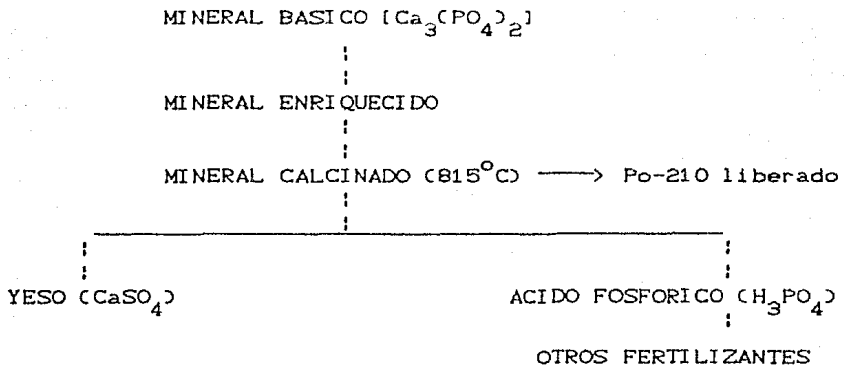


Fig. I-1: Representación esquemática del proceso de producción de una planta de ácido fosfórico.

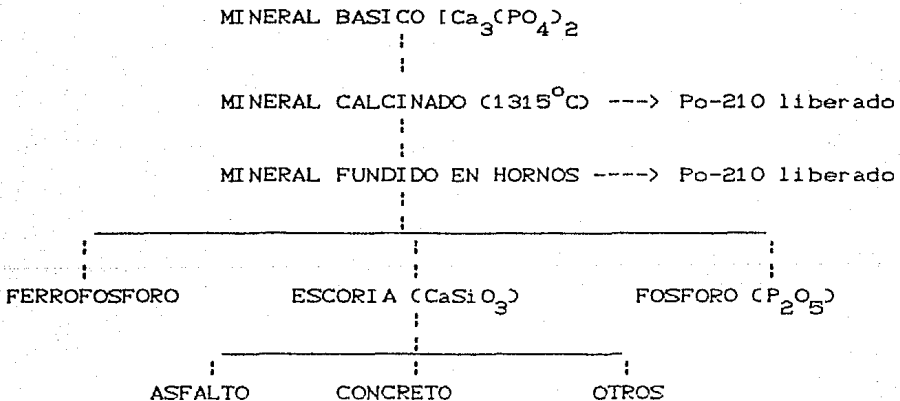


Fig. I-2: Presentación esquemática del proceso de producción de una planta de fósforo.

b) Aspectos Radiológicos de los Subproductos.

Como se mencionó en la parte anterior, la roca fosfórica (que contiene el mineral básico), se ha estado formando en la corteza terrestre y contiene elementos radiactivos de vida media larga, tales como U y Ra [1][4].

Por medio de análisis químicos de fluorimetría y arsenazo III se ha encontrado porciones significativas de  $U_3O_8$ : 1360 Beq U-238/Kg en roca fosfórica tamizada, 721 Beq U-238/Kg en yeso y 128 Beq U-238/lit de disolución en ácido fosfórico I y 13.32 Beq/lit de disolución en ácido fosfórico II. También, otros análisis basados en métodos radiológicos reportan una actividad considerable (tabla I-1), correspondiente, principalmente, a los subproductos obtenidos en la producción de fertilizantes químicos.

Material	Producción 1974 ( $\times 10^6$ tons)	Ra-226 (Ci) (anuales)	U-238(Ci) (anuales)
Mineral básico	142.1 (100%)	-----	-----
Min. procesado	37.0 (26.0%)	1398	1367
Asfalto (1)	39.0 (27.4%)	1590	1569
Arena (2)	60.1 (42.3%)	409	289
TOTAL	136.1 (95.7%)	3397	3245

Tabla I-1: [3].

(1) Basado en 2110 libras de asfalto producidas por tonelada de producto.

(2) Basado en 3250 libras de arena producidas por tonelada de producto.

En el esquema de la fig. (I-3) presentamos de nuevo el proceso de producción de ácido fosfórico y otros fertilizantes incluyendo las actividades de los elementos involucrados [3]. En el esquema de la fig. (I-4) se presenta de la misma forma el proceso de producción de fósforo y sus principales subproductos [3].

c) El Destino de los Subproductos y el Problema Correspondiente.

Principalmente el yeso (33 pCi/gr [3]), se acumula cerca del lugar o región de la producción [6]. Dado el volumen producido anualmente (aproximadamente  $2 \times 10^5$  toneladas [2]), se debe plantear una solución con respecto a su almacenamiento. En Pajaritos Ver., Méx., se produjeron en 1976,  $3.5 \times 10^5$  [10], toneladas de desecho.

El subproducto originado en el proceso de producción de fósforo es la escoria (56 pCi/gr [3]), que por ejemplo en EUA se utiliza para la producción de asfalto y concreto, evitándose el problema de acumulación como en el caso anterior. Sin embargo estos materiales constituyen fuentes de radiación las cuales deben controlarse (265 mCi/año por tonelada para el concreto [2]).

Dado que México es un importante productor de fertilizantes químicos (ver tabla I-2), es de interés que haya un análisis radiológico relacionado con la industria en cuestión.

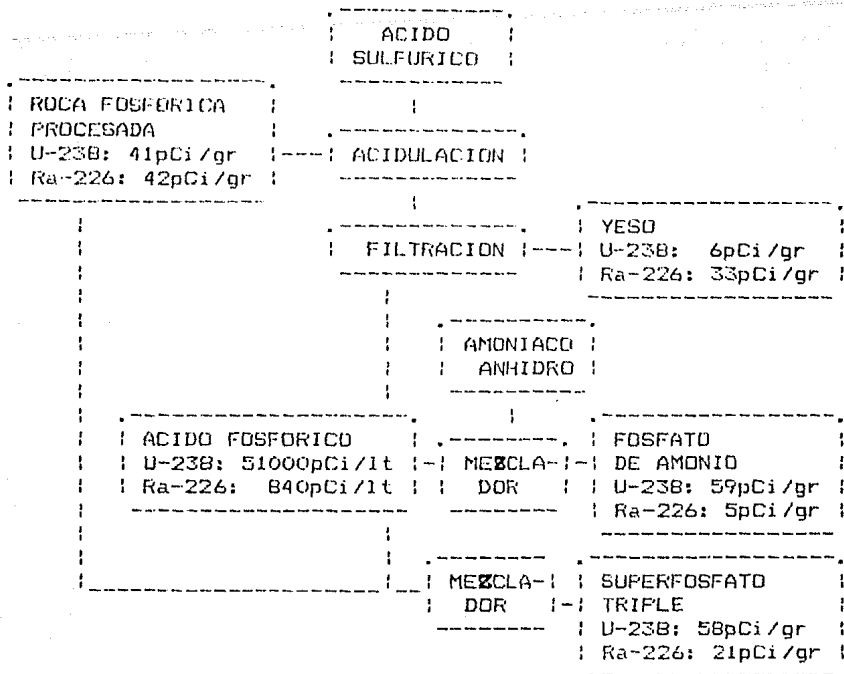


FIG. I-3 : Representación esquemática del proceso de producción de ácido fosfórico incluyendo las actividades correspondientes.

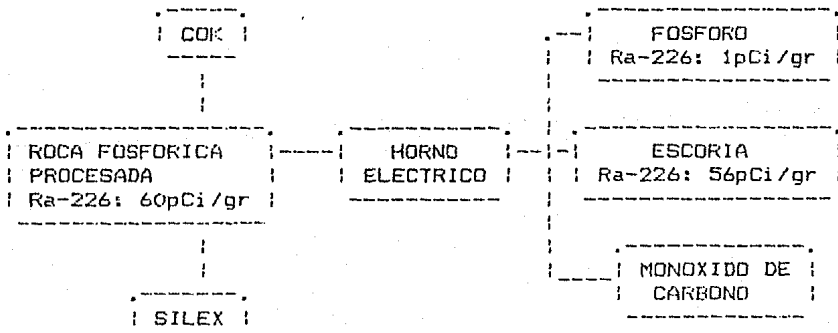


FIG. I-4 : Representación esquemática del proceso de producción de fósforo incluyendo las actividades correspondientes.

Producto	Producción 1976 (Toneladas)
Superfosfato simple	290000
Superfosfato triple	216000
Fosfato de amonio	148000
TOTAL	654000

Tabla I-2: Producción de algunos fertilizantes en México [10].

En el presente trabajo se pone principal atención al yeso, que como se mencionó se produce por millones de toneladas.

En el siguiente capítulo se presentan los aspectos de la física de la radiación, necesarios para el desarrollo del presente trabajo.

#### BIBLIOGRAFIA.

1. Bolch, W.E., Whitney, E.D., Chhatre, R.M., and Roessler, C.E., "Uranium and Radium Concentration in Florida Phosphate Fractions by GELI Spectrometry", Proc. Health Phys. Society 10th Midyear Topical Symp., Natural Radioactivity in Man's Environment, p.400 (1976).

2. Boothe, G.F., "The Need for Radiation Controls in the Phosphate and Related Industries", Health Phys., Vol.32, pp. 285-290 (1977).

3. Guimond, R.J., "Radiation and Phosphate Industry - an overview", Proc. Health Phys. Society 10th Midyear Topical Symp. Natural Radioactivity in Man's Environment (1976).

4. Menzel, R.J., "Uranium, Radium and Thorium Content in Phosphate Rocks and Their Possible Hazard", J. Agr. Food Chem., Vol. 16, No 2, pp. 231-234 (1968).

5. Mills, W.A., Guimond, R.J., and Windham, S.T., "Radiation Exposures in the Florida Phosphate Industry", ORP/CSD-76 US EPA, pp. 1049-1052 (1976).

6. Roessler, C.E., Smith, Z.A., Bolch, W.E., and Prince, R.J., "Uranium and Radium 226 in Florida Phosphate Materials", Health Phys., Vol. 37, pp. 269-277 (1979).

7. Chopin, G.R., Jaffe, B., Summerlin, L., Jackson, L., "Química", Publicaciones Cultural S.A., México (1978).

8. Parkes, G.D., Meyor, J.W., "Química Inorgánica Moderna", CIA Editorial Continental S.A., México (1958).

9. Segura J.E., "Los Fertilizantes en México", Tesis Profesional, Facultad de Química, UNAM (1978).

10. Belle, J., "Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications", United States Atomic Energy Commission (1961).



## II. ASPECTOS DE FISICA DE LA RADIACION.

### a) Radiactividad.

#### i) Antecedentes históricos.

En la antigua Grecia, se habló por primera vez sobre la existencia del átomo, como el constituyente más pequeño de la materia.

"Desde fines de siglo pasado se pudo observar que cierto material de uranio había afectado de manera sorprendente una placa fotográfica, cuando se colocó el mineral sobre ella. Lo más interesante fué que la película estaba protegida con papel negro, para evitar posibles entradas de luz. Se había descubierto un nuevo tipo de radiación, que al parecer no "respetaba" ciertas barreras como la luz visible." [2].

Se demostró que este tipo de fenómenos están relacionados con una transmutación de elementos y la consecuente emisión de distintos tipos de radiación, tales como  $\alpha$  (nucleos de He),  $\beta$  (electrones), y emisión  $\gamma$  (forma muy energética de ondas electromagnéticas).

#### ii) Conceptos básicos y definiciones.

Un concepto importante, relacionado con el cambio de estructura en el núcleo, es la actividad. Si suponemos que tenemos un numero grande  $N$  de núcleos en un tiempo  $t$  dado y  $dN$  representa

el número de desintegraciones ocurridas durante el intervalo  $dt$ , definimos la actividad como:

$$A = - \frac{dN}{dt} \dots\dots\dots(\text{II-1})$$

expresada en des/seg, y representa la tasa de desintegraciones en los núcleos, los cuales tienden a disminuir conforme ocurren dichas desintegraciones en el tiempo. La unidad que se utilizaba para medir la actividad era el Curie (Ci) que corresponde a  $3.7 \times 10^{10}$  des/seg equivalente a un gramo de radio. A partir de 1985 la unidad utilizada es el Beq definido como 1 des/seg.

Concideremos ahora que  $\lambda$  representa la probabilidad de desintegración por unidad de tiempo llamada *constante de decaimiento*; si suponemos  $N$  núcleos idénticos y además un intervalo de tiempo menor que  $1/\lambda$ , la actividad puede expresarse como:

$$A = \lambda N \dots\dots\dots(\text{II-2})$$

en donde  $\lambda$  tiene por unidad el  $\text{seg}^{-1}$ . De (II-1) y (II-2) se tiene que:

$$\lambda = - \frac{1}{N} \frac{dN}{dt} \dots\dots\dots(\text{II-3})$$

b) Decaimiento Radiactivo.

De la ecuación (II-3) obtenemos que:

$$- \lambda dt = dN/N$$

Si resolvemos la ecuación, suponiendo que en  $t=0$  existen  $N_0$  núcleos, se obtiene que:

$$N = N_0 \exp (-\lambda t) \dots\dots\dots(II-4)$$

Si multiplicamos por  $\lambda$  y tomamos en cuenta (II-3), obtenemos que:

$$A = A_0 \exp (-\lambda t) \dots\dots\dots(II-5)$$

en donde  $A_0$  es la actividad de la substancia en  $t=0$  (el instante cuando empiezan las desintegraciones).

Otro concepto importante es el de la vida media ( $T_{1/2}$ ), que representa el tiempo transcurido para el cual el número de núcleos de una substancia, a través del decaimiento radiactivo, se reduce a la mitad. También podemos decir que representa el tiempo para el cual la actividad se reduce a la mitad de la inicial.

Cuando  $t=T_{1/2}$ , entonces  $N = N_0/2$ . Substituyendo a la ecuación

(II-4) se obtiene que:

$$T_{1/2} = \ln(2) / \lambda \dots\dots\dots(II-6)$$

Cuando un núcleo decae (se llama núcleo progenitor) y se convierte en otro núcleo (se llama núcleo hijo), que también puede ser radiactivo y decaer en otro elemento (supongamos estable), planteamos la siguiente ecuación diferencial:

$$dN_H / dt = \lambda_P N_P - \lambda_H N_H \dots\dots\dots(II-7)$$

en donde  $\lambda_P$  y  $\lambda_H$  son las constantes de decaimiento del padre y del hijo respectivamente, y con la condición inicial:  $N=0$  en  $t=0$ .

Multiplicando por el factor integrante  $\exp(\lambda_H t)$  e integrando se obtiene que:

$$N_H = N_0[\lambda_P / (\lambda_H - \lambda_P)] [\exp(-\lambda_P t) - \exp(-\lambda_H t)] \dots(II-8)$$

Si  $T_{1/2_P} \gg T_{1/2_H}$ , entonces  $\lambda_H \gg \lambda_P$  y por tanto  $\lambda_H - \lambda_P \cong \lambda_H$ .

Si consideramos, además, valores pequeños de  $t$ , entonces  $\exp(-\lambda_P t) \cong 1$  y en consecuencia la ecuación (II-8) se convierte

en:

$$N_H = N_0 (\lambda_P / \lambda_H) [1 - \exp(-\lambda_H t)] \dots\dots\dots(II-9)$$

El caso más interesante es cuando t es muy grande; para esto  $\exp(-\lambda_H t) \cong 0$  y entonces la ecuación (II-9) se convierte en :

$$N_0 \lambda_P = N_H \lambda_H \dots\dots\dots(II-10)$$

La ecuación anterior representa la condición llamada equilibrio secular. Para tiempos muy grandes, resulta, entonces que la actividad del hijo se iguala a la del progenitor. Esta condición se cumple aún cuando en el decaimiento intervienen más de dos elementos.

H. Bateman obtuvo la ecuación general de decaimiento y crecimiento de las substancias radiactivas (para n generaciones). Tenemos que:

$$N_n = N_0 [h_1 \exp(-\lambda_1 t) + \dots + h_n \exp(-\lambda_n t)] \dots\dots(II-11).$$

Los factores  $h_1, \dots, h_n$  se dan por las siguientes ecuaciones:

$$\begin{aligned}
 h_1 &= \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_n - \lambda_1} \right) \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_1} \right) \cdots \left( \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_1} \right) \\
 h_2 &= \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \right) \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_n - \lambda_2} \right) \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \right) \cdots \left( \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_2} \right) \\
 &\quad \vdots \\
 h_n &= \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_n} \right) \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_n} \right) \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_n} \right) \cdots \left( \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_n} \right)
 \end{aligned}
 \quad \dots \text{(II-12)}$$

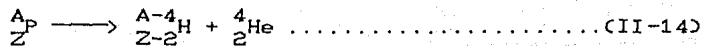
con la condición inicial:  $N=0$  en  $t=0$ . Esta condición nos da además, que:

$$h_1 + h_2 + \dots + h_n = 0 \dots \dots \dots \text{(II-13)}$$

Como se mencionó anteriormente los núclidos emiten partículas  $\alpha$  y  $\beta$  o radiación  $\gamma$ . Tenemos cinco procesos de decaimiento radiactivo en donde se involucran este tipo de radiaciones, que presentamos a continuación.

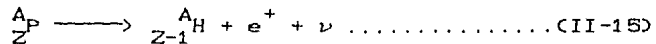
i) Decaimiento  $\alpha$ .

El proceso de decaimiento  $\alpha$  se puede expresar por medio de la siguiente reacción:

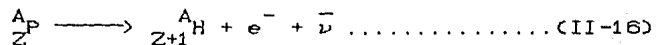


ii) Decaimiento  $\beta^+$  y  $\beta^-$ .

Las ecuaciones correspondiente a estos dos procesos de decaimiento son:



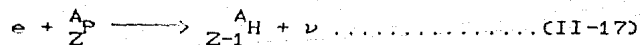
en donde  $e^+$  es el positrón y  $\nu$  el neutrino, y además,



en donde  $e^-$  es el electrón y  $\bar{\nu}$  es el antineutrino.

iii) Captura Electrónica.

En la captura electrónica el núcleo padre absorbe un electrón, generalmente de las capas más cercanas al núcleo. Los electrones se reacomodan en el nuevo núcleo y se tiene un protón menos. Esto se presenta como sigue:



iv) Emisión  $\gamma$ .

En muchos de los procesos de decaimiento radiactivo se puede producir un núcleo hijo en un estado excitado; también puede

ocurrir que un núcleo sea removido de su estado base a un estado excitado si se bombardea con partículas o bien con fotones. Un modo para que regrese a su estado base, es emitiendo radiación  $\gamma$ . Tenemos la siguiente reacción:



En la tabla II-1 se presentan 14 elementos radiactivos naturales. Los primeros once decaen en hijos estables, pero los últimos tres, Th-232, U-238 y U-235, decaen en hijos que a su vez son radiactivos y se forman así largas series de decaimiento hasta llegar a un núcleo estable.

NUCLIDO	VIDA MEDIA (AÑOS)	DECAIMIENTO
K-40	$1.2 \times 10^9$	HIJO ESTABLE
V-50	$4.0 \times 10^{14}$	"
Rb-87	$6.2 \times 10^{10}$	"
In-115	$6.0 \times 10^{14}$	"
La-138	$1.0 \times 10^{11}$	"
Ce-142	$5.0 \times 10^{15}$	"
Nb-144	$3.0 \times 10^{15}$	"
Sm-147	$1.2 \times 10^{11}$	"
Lu-176	$5.0 \times 10^{10}$	"
Re-187	$4.0 \times 10^{12}$	"
Pt-192	$1.0 \times 10^{15}$	"
Th-232	$1.4 \times 10^{10}$	CADENA
U-235	$7.1 \times 10^8$	"
U-238	$4.5 \times 10^9$	"

Tabla II-1 [2].



En la tabla II-2 se presentan, en resumen, algunos datos sobre las cuatro series radiactivas.

NOMBRE DE LA SERIE	NUCLIDO INICIAL	$T_{1/2}$	NUCLIDO FINAL
TORIO	Th-232	$1.4 \times 10^{10}$	Pb-208
NEPTUNIO	Np-237	$2.2 \times 10^6$	Bi-209
URANIO	U-238	$4.5 \times 10^9$	Pb-206
ACTINIO	U-235	$7.1 \times 10^8$	Pb-207

Tabla II-2 (2).

En las fig. (II-1) y (II-2) se presentan las series de U-235 y U-238 , respectivamente; estas son las series que nos interesan principalmente en este trabajo.

c) Interacción de la Radiación con la Materia.

A) Absorción de Partículas Cargadas; Alcance.

Al penetrar partículas cargadas y pesadas a través de un material dado, la energía transferida  $dE$  por unidad de recorrido  $dX$  está dada por la siguiente expresión:

$$-(dE/dX) = 4\pi e^4 Z^2 N_B / mv^2 \dots\dots\dots (II-19)$$

en donde  $B = Z [ \ln(2mv^2/I) - \ln(1-\beta^2) - \beta^2 ] \dots\dots\dots (II-20)$

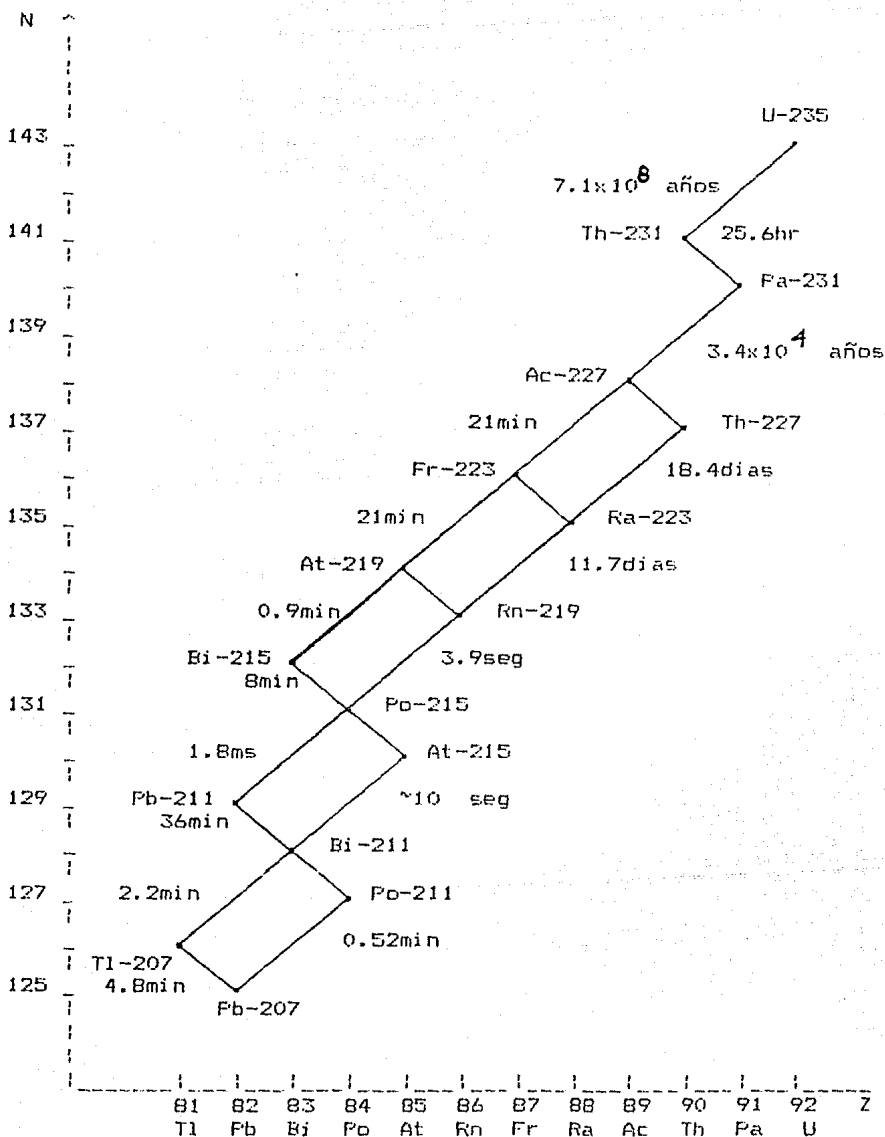


FIG. II-1 : Representación gráfica de la serie de decaimiento del actinio (U-235).

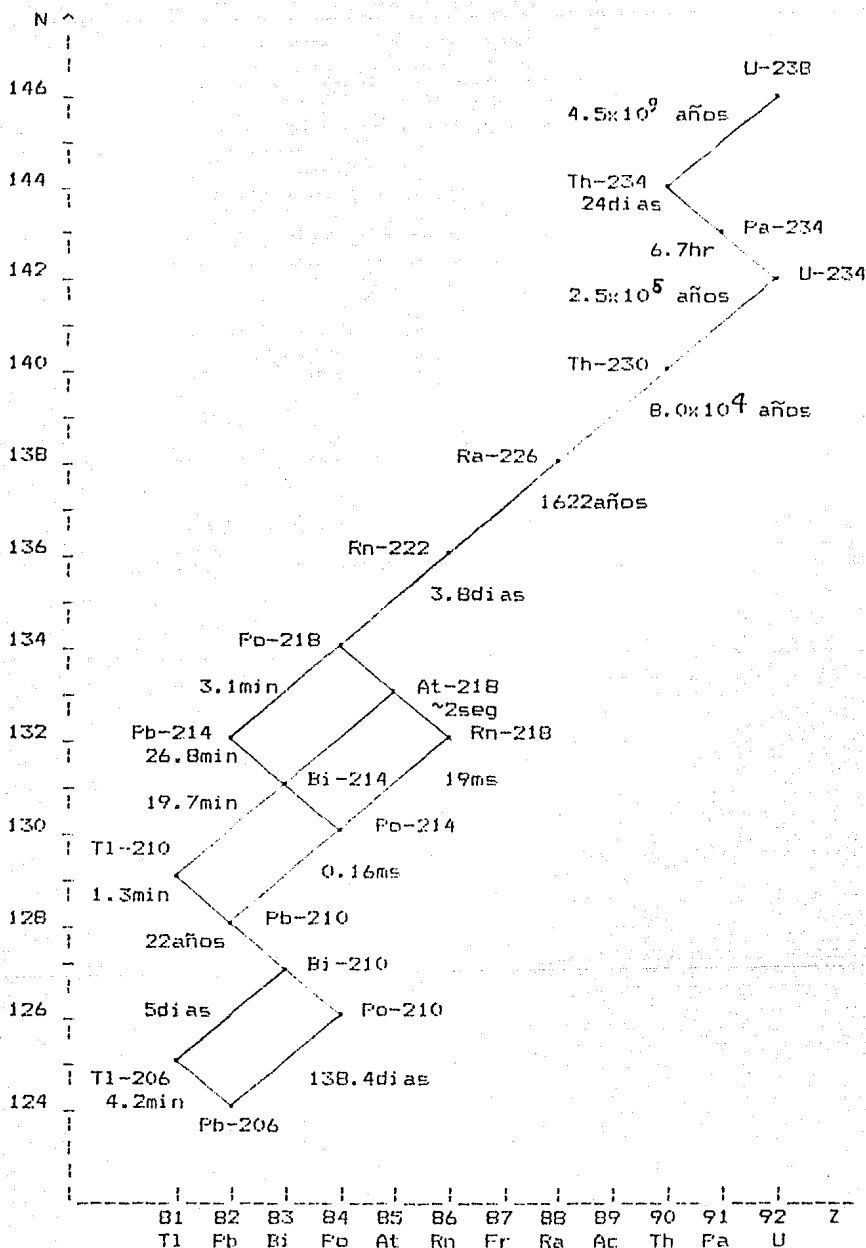


FIG. 11-2 : Representación gráfica de la serie de decaimiento del uranio (U-238).

En estas dos expresiones,  $e$  y  $m$  representan la carga y la masa electrónica respectivamente;  $E$ ,  $ze$  y  $v$  representan la energía cinética, la carga y la velocidad de la partícula incidente;  $N$  es el número de átomos del absorbedor por  $\text{cm}^3$ ,  $Z$  el número atómico del mismo y  $\beta=v/c$  el factor relativista estandar.

El potencial medio de excitación e ionización del absorbedor es (I). Es un coeficiente que se obtiene experimentalmente para cada elemento.

Los protones y otras partículas pesadas (por ejemplo  $\alpha$ ), inicialmente monoenergéticas, no recorren siempre la misma distancia en un medio dado, antes de llegar al reposo. Esta variación llamada *straggling* es un resultado de la naturaleza estadística de la pérdida de energía por ionización.

El proceso de pérdida de energía por parte de las partículas incidentes ocurre por medio de pequeñas transferencias de energía, de distintas magnitudes, en el material del blanco.

Experimentalmente se pueden obtener, para partículas  $\alpha$ , gráficas como la de la fig. (II-3), en donde se obtiene el alcance. El alcance es la distancia que recorre una partícula en cierto medio antes de llegar al reposo. Tenemos que:

$$R = R_1 - R_0 \dots\dots\dots \text{(II-21)}$$

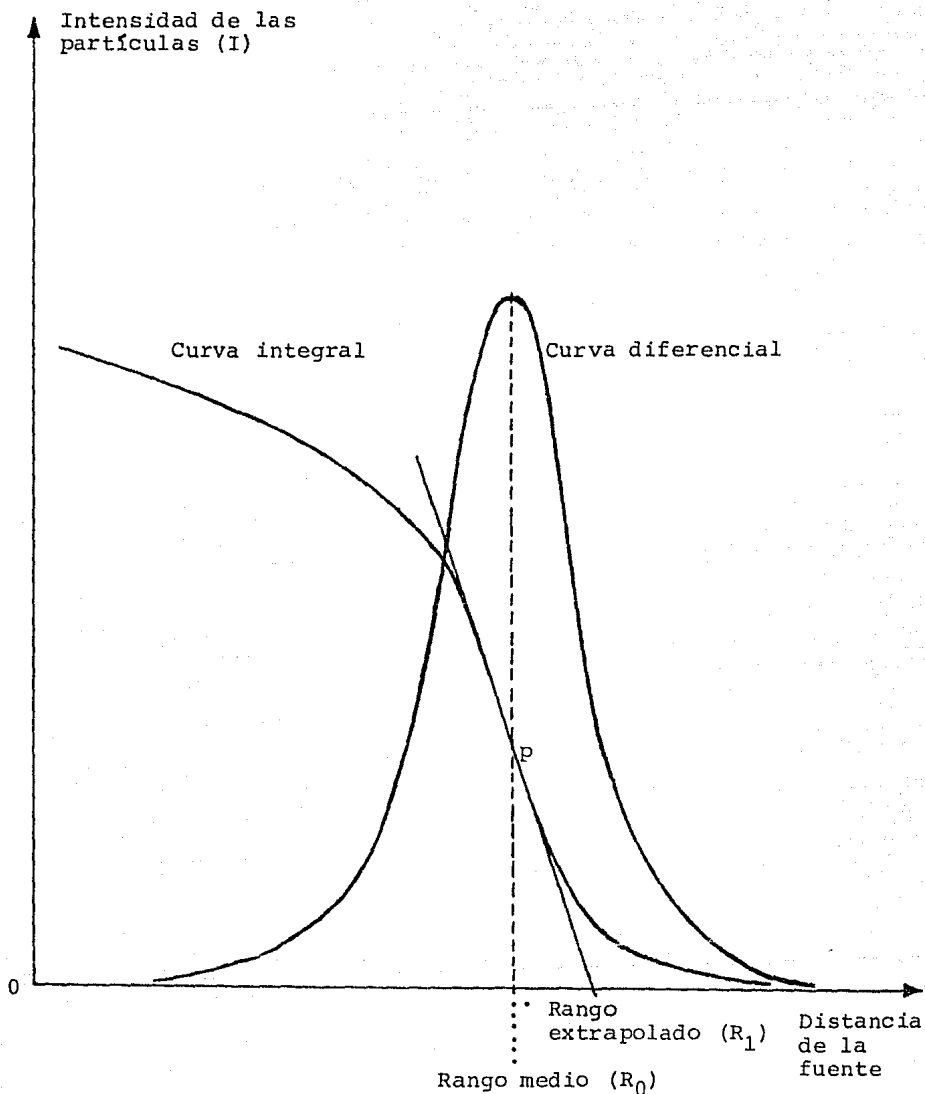


FIG 11-3 : Curva integral para el caso del paso de partículas a través de aire. Se presenta, también, la curva diferencial la cual se utiliza para obtener gráficamente el rango medio  $R_0$ ; la pendiente en el punto P nos proporciona el rango extrapolado.

en donde  $R_1$  es el alcance extrapolado y  $R_0$  el alcance medio.

El alcance medio  $R_0$  se puede obtener a partir de la siguiente ecuación integral:

$$R_0 = \int_0^{E_1} \frac{dE_1}{dE/dX} \dots\dots\dots (II-22)$$

en donde  $E_1$  es la energía cinética de la partícula incidente y  $dE/dX$  proviene de (II-19) y (II-20).

Una relación empírica para  $R_0$  que nos proporciona una dispersión menor que el 1% para partículas  $\alpha$  de 4 a 11 MeV es:

$$R_0 = (0.005 E + 0.285) E^{3/2} \dots\dots\dots (II-23)$$

B. Interacción con Radiación Electromagnética.

i) Radiación  $\gamma$  y  $x$ .

Las radiaciones  $\gamma$  y  $x$  difieren solamente en su origen; la primera se produce en las reacciones nucleares y en el decaimiento radiactivo, y la segunda a nivel atómico por excitación o emplazamiento de los electrones de su órbita o por la desaceleración de ellos. Por lo demás, sus interacciones con la materia son indistintas para una u otra.

Este tipo de radiaciones consiste en fotones con energía dada por la siguiente ecuación:

$$E = h\nu = hc/\lambda \dots\dots\dots(\text{II-24})$$

en donde h es la constante de Planck, c la velocidad de la luz,  $\nu$  la frecuencia de la radiación y  $\lambda$  su longitud de onda.

La emisión de radiación  $\gamma$  representa un mecanismo por medio del cual se remueve la energía de excitación de los núcleos. Los estados excitados nucleares son causados por medio del decaimiento de radioisótopos o de transmutaciones nucleares inducidas.

La excitación o emplazamiento de los electrones de su órbita, relacionados con la radiación X, puede darse de distintos modos, como por ejemplo por medio de colisiones inelásticas con otros electrones, el fenómeno de conversión interna o el proceso de captura electrónica. La energía necesaria para que los electrones removidos regresen a su estado base aparece como fotones de radiación X, conocida como radiación fluorescente.

La interacción de estas radiaciones se da principalmente, a través de tres mecanismos: el efecto fotoeléctrico, el efecto y la producción de pares.

Las radiación  $\gamma$  se atenúa al pasar por medio de distintos

materiales absorbedores. La atenuación de la intensidad de estas radiaciones se expresa por la siguiente ecuación:

$$I = I_0 \exp(-\mu d) \dots\dots\dots(\text{II-25})$$

en donde  $I_0$  es la intensidad inicial de los fotones (antes de pasar por el material absorbedor),  $I$  la intensidad final (después de pasar por el material absorbedor),  $d$  es el espesor del absorbedor y  $\mu$  el coeficiente de absorción lineal total.

El alcance medio para estas radiaciones es:

$$R_0 = \frac{\int_0^{\infty} x \exp(-\mu x) \mu dx}{\int_0^{\infty} \exp(-\mu x) \mu dx} \dots\dots\dots(\text{II-26})$$

ii) Efecto Fotoeléctrico.

En el efecto fotoeléctrico un fotón es absorbido por un átomo, al chocar con él y se tiene como consecuencia la emisión de un electrón (fig. II-4).

La emisión de electrones no depende de la intensidad de la radiación incidente sino de su frecuencia (la energía de la



radiación depende de dicha frecuencia).

Si se supone que  $E=h\nu$  entonces podemos llegar a la conclusión de que la energía máxima de los electrones emitidos se da por la siguiente ecuación:

$$K_{\max} = h\nu - \phi \dots\dots\dots(\text{II-27})$$

en donde  $\nu$  es la frecuencia de la radiación incidente y  $\phi$  la función de trabajo relacionada con la "resistencia" que oponen los distintos materiales a la emisión de los electrones correspondientes.

La función de trabajo representa la energía mínima requerida para extraer un electrón de la superficie del metal. Cuando  $K_{\max}$  es igual a cero entonces  $\nu=\nu_0$ , que representa la frecuencia umbral, la cual es la mínima para empezar a extraer electrones; entonces:

$$\phi = h\nu_0 \dots\dots\dots(\text{II-28})$$

iii) Efecto Compton.

En este caso un fotón es dispersado al chocar con un electrón (fig. II-5). De la conservación de la energía y el momento se puede obtener que:

$$\lambda' - \lambda = (h/m_0c)(1 - \cos\varphi) \dots\dots\dots(II-29)$$

en donde  $\lambda$  y  $\lambda'$  son las longitudes de onda del fotón incidente y del fotón dispersado respectivamente,  $m_0$ , la masa del electrón en reposo y  $\varphi$ , el ángulo de dispersión del fotón.

iv) Producción de Pares.

Si un fotón muy energético interacciona con un núcleo pesado, ocurre en las cercanías de este el fenómeno llamado producción de pares, en el cual se obtienen, simultáneamente, un electrón y un positrón (fig. II-6). El fotón transfiere una cantidad de energía al núcleo que a su vez se deshace de ella por medio de la producción de un electrón y un positrón. Este fenómeno ocurre para fotones altamente energéticos.

Los tres fenómenos descritos anteriormente representan la interacción de la radiación electromagnética con la materia. A continuación exponemos los aspectos básicos de la seguridad radiológica con sus unidades correspondientes.

d) Aspectos de Seguridad Radiológica y Unidades.

i) Seguridad Radiológica.

El hombre siempre ha estado expuesto a niveles de radiación

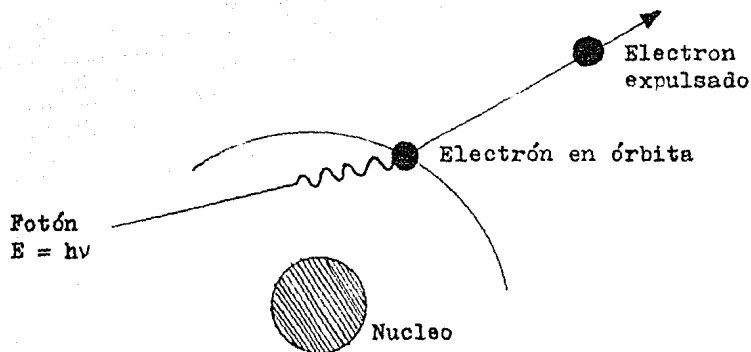


FIG. 11-4 : Efecto fotoeléctrico.

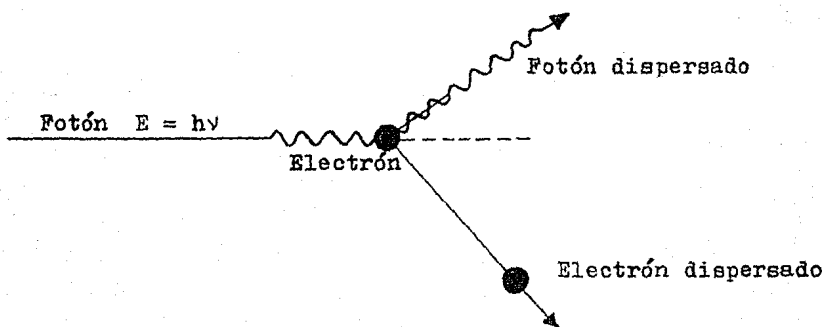


FIG. 11-5 : Efecto Compton.

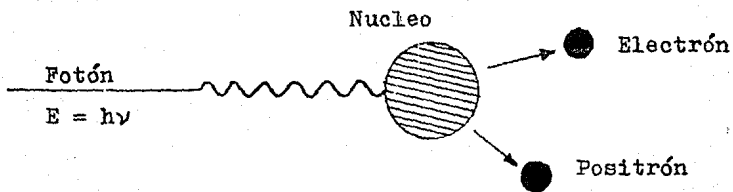


FIG. 11-6 : Producción de pares.

provenientes de su entorno natural (minerales con contenido de elementos radiactivos en la corteza terrestre, radiación cósmica, radiación solar); sin embargo, con la intensificación del uso de la energía atómica y en general la utilización de radioisótopos en distintas áreas de la actividad humana, se han alterado y se alteran los niveles mencionados de exposición.

El objeto de la seguridad radiológica consiste en la protección de los seres vivos, sus descendientes y el ambiente, de los riesgos generados por las actividades, que a causa de las características de ciertos materiales o dispositivos, implican la exposición a radiaciones ionizantes.

Una de las tareas fundamentales de la seguridad radiológica es la vigilancia de los niveles de exposición para personas del público y trabajadores ocupacionalmente expuestos, de tal manera que estos se mantengan por debajo de los valores que implican un riesgo para la salud. Una de las actividades importantes es la generación de medidas de protección especialmente para el personal ocupacionalmente expuesto.

Un material radiactivo libera su energía sobrante emitiendo partículas o fotones, que pueden transferirla al medio circundante por medio de la ionización o excitación; como veremos en el capítulo de DETECCIÓN DE LA RADIACION, la ionización de un gas sirve para la evaluación de los niveles de radiación.

Tomando como base este fenómeno se definen ciertas unidades utilizadas en la seguridad radiológica.

ii) Definiciones y Unidades.

1) La *dosis absorbida* D es la cantidad de energía que cede la radiación a un material al ser este expuesto a ella. D se define como:

$$D = d\bar{E}/dm$$

en donde  $d\bar{E}$  es la *energía media impartida* en un elemento de volumen de masa dm; la unidad utilizada es el grey definida como la cantidad de cualquier radiación que deposita 1 joule de energía en un Kg de material:

$$1 \text{ grey} = 1\text{J/Kg.}$$

2) La *exposición* X es la cantidad de energía que la radiación electromagnética deposita en el aire y su unidad correspondiente es el Roentgen (R). El R se define como la cantidad de radiación gamma que en  $1 \text{ cm}^3$  de aire seco en condiciones normales produce una unidad electrostática de carga; de este modo la radiación gamma deposita  $5.432 \times 10^{13}$  eV en cada gramo de aire. Por lo tanto X se puede expresar como sigue:

$$X = dQ/dm$$

en donde dQ es el valor absoluto de la carga total de iones del

mismo signo producidos en el aire, cuando todos los electrones liberados por fotones, en una unidad de masa dm, se frenan completamente. Se tiene que:

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/Kg.}$$

La rapidez de dosis de exposición es es la velocidad con la que la radiación electromagnética deposita su energía en cualquier material y se expresa como:

$$\dot{X} = dX/dt$$

con la unidad correspondiente de mR/hr.  $\dot{X}$  se relaciona fácilmente con la actividad de una fuente puntual si se conoce la constante específica  $\Gamma$  de la radiación y (dependiendo de elemento considerado); tenemos que:

$$\dot{X} = \Gamma A (1/d^2) \dots\dots\dots(\text{II-30})$$

en donde A es la actividad de la muestra y d la distancia entre la fuente y el punto de interés.

Además, la siguiente ecuación relaciona la dosis absorbida con la exposición X; se tiene que:

$$D = K X \dots\dots\dots(\text{II-31})$$

en donde  $K$  es la energía absorbida por un gramo de aire a presión y temperatura ambiente, expuesto a un  $R$ , o a  $1 \text{ C/Kg}$ , dependiendo de las unidades:  $K = 0.869 \text{ erg/gr R}$  o  $37.7 \text{ erg/gr(C/Kg)}$ .

En seguridad radiológica es necesaria una relación numérica bien definida entre la dosis absorbida y el efecto biológico producido. La dosis absorbida es insuficiente para predecir la severidad o probabilidad del efecto bajo condiciones no especificadas; por esto se ha introducido otra cantidad que interrelaciona mejor con los efectos más importantes:

3) La *dosis equivalente* se define como:

$$H = D (Q)$$

endonde  $D$  es la *dosis absorbida* y  $(Q)$  el factor de calidad; la unidad correspondiente es el Sv (Sievert) y se tiene que:

$$1 \text{ Sv} = 1 \text{ Grey } (QF).$$

Además, la *rapidez de dosis equivalente* es la velocidad con la que la radiación deposita su energía en el tejido humano dañándolo. Tenemos que:

$$\overset{\circ}{H} = D \overset{\circ}{(Q)}$$

con la unidad correspondiente de Sv/seg o equivalentes.

Durante el trabajo normal el personal ocupacionalmente expuesto no debe recibir un equivalente mayor que  $0.05 \text{ Sv/año}$  [9]

lo que se traduce a 0.024 mSv/hr si se toma en cuenta que se trabaja 40 hr/semana y 52 semanas/año. Si además consideramos que QF para la radiación y es 1, entonces la rapidez de exposición X no debe ser mayor que 2.5 mR/hr (esto se obtiene por medio de la ec. II-31).

Por otro lado X varía con respecto a la distancia como ya se mencionó. La distancia de una fuente radiactiva debe ser tal que no dificulte el trabajo aumentando así el tiempo, como tampoco ser de un valor menor que el que hace que X sea mayor que el valor mencionado.

Los efectos de la radiación ionizante pueden clasificarse de dos maneras: *no estocásticos* son aquellos que se producen a partir de una dosis umbral y aumentan agudamente con la dosis; en la tabla II-4 se presenta la dosis umbral para algunos de estos efectos, cuando la irradiación es a cuerpo total:

DOSIS ABSORVIDA (Grey)	EFEECTO
> de 0.10	Rupturas cromosómicas en células sanguíneas, difíciles de detectar.
> de 0.25	Cambios sanguíneos.
> de 0.50	Probable retención momentánea de la espermatogénesis.
> de 1.00	Síndrome de radiación probable.
> de 2.00	Síndrome grave de radiación.
> de 4.00	50% probabilidad de muerte.
> de 6.00	100% probabilidad de muerte.

Tabla II-4: Dosis umbral para algunos efectos no estocásticos [9].



Los efectos *estocásticos* son probabilísticos, es decir, un aumento de la dosis conduce a un aumento de la frecuencia con la que aparece un efecto en un grupo de personas, pero no se puede determinar *a priori* que una dosis dada produzca con seguridad un efecto en una persona dada. Además, debe tenerse en cuenta que la mayoría de estos efectos existen normalmente en poblaciones no irradiadas. Los efectos mencionados se dividen en cuatro grupos: inducción de leucemia, inducción de otros cánceres, enfermedades hereditarias y acortamiento de la vida.

En el siguiente capítulo se presentan los aspectos básicos relacionados con la detección de la radiación, y los métodos correspondientes. Se pone más atención en el caso del analizador de altura de pulsos multicanal y la espectrometría gamma, como también en el caso de detección por medio de trazas en sólidos, ya que son los métodos utilizados en el presente trabajo.

#### BIBLIOGRAFIA.

1. Beiser, A., "Perspectives of Modern Physics", McGraw-Hill Kogakusha, LTD., Tokyo (1969).
2. Acosta, V., Cowan, C.L., Graham, B.J., "Curso de Física Moderna", Ed. HARLA, México (1975).
3. Melissinos, A.C., "Experiments in Modern Physics", Academic Press, London (1966).

4. Evans, R.D., "The Atomic Nucleus", McGraw-Hill, N.Y. (1955).

5. Enge, H., "Introduction to Nuclear Physics", Reading / Addison Wesley (1966).

6. Price, W.J., "Nuclear Radiation Detection", McGraw-Hill, N.Y. (1958).

7. Knoll, G.F., "Radiation detection and Measurement", Ed. John Wiley & Sons, N.Y. (1979).

8. Allison, S.K., Warshaw, S.D., "Passage of Heavy Particles Through Matter", Reviews of Modern Physics, Vol. 37, No. 4, p. 779 (1953).

9. Espinosa, G., Avila, O., Castillo, F., Vargas, C., "Introducción a la Instrumentación Nuclear", IFUNAM, México (1979).

### III. DETECCION DE LA RADIACION.

#### a) Detección de la Radiación.

La detección de la radiación representa el conjunto de la metodología experimental relacionada con el registro de todo tipo de partículas y radiaciones electromagnéticas, producidas a causa de la transmutación de los núcleos de los distintos radioisótopos.

La interacción de las partículas y radiaciones electromagnéticas con la materia se lleva a cabo de distintas formas. El conocimiento de la manera por medio de la cual se da esta interacción ha permitido el desarrollo de los instrumentos necesarios de detección: los detectores.

Un detector de radiación es un dispositivo que, aprovechando los fenómenos de la interacción de aquella con la materia, nos permite obtener señales eléctricas o de imagen (como en el caso de trazas), las cuales, analizadas adecuadamente proporcionan información sobre la causa que las originó.

Algunos ejemplos de detectores de radiación son:

- i) Detectores de ionización en gas.
- ii) Detectores de centelleo.
- iii) Detectores termoluminiscentes.
- iv) Detectores de estado sólido.
- v) Detectores por trazas en sólidos.

Como en el presente trabajo se utilizan los detectores de trazas en sólidos (DTES) y los detectores semiconductores, vamos a dar una descripción de ellos.

b) Detección por Trazas en Sólidos.

i) Generalidades.

El método de detección por medio de DTES es relativamente nuevo; el principio se basa en el hecho de que partículas pesadas, a su paso en ciertos materiales dieléctricos, provocan "daños" llamados trazas latentes.

Para comprender la formación de trazas en sólidos es necesario conocer el medio por el cual los iones pesados transfieren su energía.

Los efectos de la interacción de la partícula con el detector son los siguientes:

- 1) Excitación de los electrones a altos niveles de energía o,
- 2) Expulsión de los electrones de sus átomos (ionización) [7].

Para polímeros, la desexcitación que sigue al proceso 1) produce rompimiento de cadenas moleculares, en tanto que en cualquier sólido el proceso 2) crea centros de carga; surgen electrones llamados rayos *delta*, que pueden producir excitación e ionización adicional si tienen energía suficiente [7].

La ionización y excitación primarias ocurren cerca de la trayectoria del ión mientras que las secundarias se extienden a través de distancias radiales del centro de la traza (algunas micras).

ii) Modelo de Formación de Trazas.

Los modelos de formación de trazas se han clasificado por el tipo de material ya sea inorgánico o bien orgánico. En este trabajo utilizamos un detector de material orgánico y así centramos nuestra atención a modelos de formación correspondientes a este tipo de materiales. Un modelo satisfactorio para estos detectores es el de *Pérdida Restringida de Energía* o REL.

Este modelo, sugerido por E.V. Benton, considera que es posible describir el daño en plásticos tomando en cuenta únicamente la parte de la pérdida de energía debida a los rayos  $\delta$  de energía  $E_0$  moderadamente baja. La pérdida restringida de energía está dada por [7]:

$$\left[ \frac{dE}{dx} \right]_{E < E_0} = \frac{2\pi n_e e^4}{\beta^2 m_e c^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 E_0}{I^2} \right) - \beta^2 - \delta - U \right] \dots (III-1)$$

en donde  $n_e$  es el número de electrones por  $\text{cm}^3$  en el detector,  $m_e$

es la masa de electrón,  $I$  el potencial de ionización medio,  $\delta$  es la corrección por efecto de polarización del medio a velocidades relativistas y  $U$  la corrección de bajas velocidades.

Debido a que son iones rápidos, una gran fracción de los rayos  $\delta$  tiene alta energía, por lo que  $(dE/dx)_{E < E_0}$  es una pequeña fracción de la pérdida de energía total a altas energías y tiene su máximo a bajas energías.

Recientemente se ha tomado  $E_0 = 350$  eV como la máxima energía de los rayos  $\delta$ . Se tiene que, este modelo es lo suficientemente bueno para caracterizar el comportamiento del grabado de las zonas de daño producidas por los iones en detectores poliméricos [7].

### iii) Materiales Detectores.

Los materiales aislantes con una resistividad mayor que  $2000 \text{ ohm/cm}^2$ , son adecuados para este método. De estos los polímeros son más sensibles que los materiales inorgánicos. En la tabla III-1 se presentan distintos DTES poliméricos con su composición atómica y su sensibilidad relativa a la ionización mínima por ión.

Centrando nuestra atención en los polímeros (el detector que se utilizó es de este tipo), damos algunas características relevantes que deben tener como DTES:

a) Sensibilidad a las partículas de interés e insensibilidad para fotones y partículas de otras energías.

DETECTOR	COMPOSICION ATOMICA	IONIZACION MINIMA POR ION
Ally diglycol (CR-39)	$C_{12}H_{18}O_7$	1.0 MeV He-4
A-policonato Bisphenol (lexano, makrofol)	$C_{16}H_{14}O_3$	0.3 MeV He-4
Polypropyleno	$CH_2$	1.0 MeV He-4
Polymethacralato (plexiglas)	$C_5H_8O_7$	3.0 MeV He-4
Acetato de celulosa	$C_{12}H_{18}O_7$	-----
Triacetato de celulosa (triafol-D)	$C_3H_4O_2$	-----
Nitrato de celulosa (darcel)	$C_6H_8O_9N_2$	0.55 MeV H-1

Tabla III-1: [7].

b) Transparencia después del grabado, para obtener lecturas precisas de número de trazas.

c) Composición y morfología constante para un grabado uniforme.

En el presente trabajo utilizamos el polímero carbonato allyl diglycol, fabricado por Pershore Mouldings Ltd., Pershore England, cuyo nombre comercial es CR-39, y tiene las siguientes características:

1) Gran claridad. Su índice de refracción a 20°C es 1.504 el cual es un poco menor que el del vidrio (1.52).

2) Estabilidad de sus propiedades ópticas.

3) Transmisión de la luz en un 89-92%.  
4) Gran resistencia a altas temperaturas.  
5) Insensibilidad a la radiación gamma.  
6) Los hidróxidos alcaloides son agentes convenientes para grabarlo.

7) Alta sensibilidad a partículas cargadas.

8) Bajo umbral de detección. Se ha encontrado que es de  $(z/\beta) = 9$  en tanto que el de nitrato de celulosa es de  $(z/\beta) = 30$  y el de lexano es de  $(z/\beta) = 60$  a 65.

Estas características lo convierten en uno de los DTES más adecuados, de ahí que lo eligiéramos.

iv) Técnica de revelado.

El daño producido por las partículas incidentes permanece en estado latente hasta que se emplea un procedimiento que lo revela. La información obtenida depende del método del revelado.

Una técnica que ha dado buenos resultados para gran variedad de materiales dieléctricos tales como minerales, vidrios inorgánicos naturales o artificiales y especialmente en polímeros orgánicos es la técnica por eliminación del material dañado. Dentro de esta técnica se encuentran el grabado químico y el grabado electroquímico.



### 1) Grabado químico.

Los reactivos químicos usados más frecuentemente para revelar trazas en plásticos son: NaOH,  $\text{KMnO}_4$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , Y KOH. En un material dado la velocidad de grabado depende de los siguientes parámetros: tipo y velocidad de la partícula cargada; composición química del atacante; temperatura, y concentración del grabador.

### 2) Grabado electroquímico.

El grabado electroquímico se obtiene cuando a los DTES se les aplica un campo eléctrico de corriente alterna a una frecuencia durante el grabado químico. El detector se coloca separando en dos una cámara que contiene el reactivo químico de un lado y agua con NaCl del otro; A ambos lados de la cámara se dispone de electrodos.

Es recomendable grabar químicamente el detector antes de aplicar el grabado electroquímico ya que la densidad de fondo disminuye puesto que al hacerlo se remueven los defectos del material y la superposición de trazas es mínima.

### v) Técnica de conteo.

La información básica necesaria para muchos de los estudios por trazas consiste en mediciones de la densidad de trazas. El método más directo para contarlas es utilizar un microscopio

óptico con una rejilla calibrada y/o un lector de microfichas con una pantalla cuadrículada calibrada contandose el número de trazas en una serie de campos de observación.

En el presente trabajo se utilizó un lector de microfichas para el método de conteo ya que es una técnica directa y confiable de lectura de las trazas.

c) Detección por Medio de Espectroscopía Gamma.

i) Detectores de estado sólido.

Los detectores semiconductores constituyen, relativamente, un método moderno. Podemos decir que representan una de las partes más importantes para un sistema de espectroscopía gamma.

Mencionamos dos de ellos: El detector de germanio-litio (GE-LI), y el de germanio hiperpuro (HPGE), también llamado detector de germanio intrínseco. Ambos funcionan como detectores a muy bajas temperaturas, por lo que pueden dañarse si se les aplica el alto voltaje estando a temperaturas más altas que lo normal. El detector de HPGE puede llegar a estar a temperatura ambiente sin dañarse siempre y cuando no se le aplique el alto voltaje. Esto constituye una gran ventaja con respecto al detector de GE-LI, el cual sí se llega a dañar a dicha temperatura.

El enfriamiento se consigue por medio de un recipiente aislado adiabáticamente, con una válvula de seguridad (dewar), donde se

introduce nitrógeno líquido lograndose así la temperatura de operación del detector. Una barra de cobre está colocada en el recipiente con la cual el detector está en contacto en la parte superior de ella (dedo frío).

La detección se logra por medio de la ionización que se produce en la región de la unión de los dos semiconductores que forman el detector, al incidir radiación sobre él. Podemos tener eficiencias de hasta el 15%, siendo esta la máxima para el rango de energías de 100 a 400 KeV.

Los detectores de este tipo se acoplan a sistemas analizadores más complejos que un contador y que a continuación presentamos, y nos permiten un análisis no solo cuantitativo (conteo), sino también cualitativo, (la radiación incidente puede ser indintificada a través de su energía).

#### ii) Analizadores de Altura de Pulsos.

En esta parte vamos a referirnos a sistemas de conteo que están relacionados con los detectores mencionados anteriormente.

##### 1) Analizador de Altura de Pulsos Monocanal.

En la figura (III-1) se presenta esquemáticamente el analizador de altura de pulsos monocanal incluyendo la parte de amplificación. Básicamente consiste en un sistema de dos discriminadores, un sistema de coincidencia y el contador.

El preamplificador juega el papel de acoplamiento entre el detector y los demás dispositivos electrónicos y además mejora la relación señal/ruido (a favor de la señal).

La señal obtenida llega al amplificador de tal manera que pueda dirigirse ya amplificada, al analizador de altura de pulsos monocanal.

Los discriminadores I y II cumplen con la función de formar el llamado ancho de ventana. Esta "ventana" nos permite seleccionar los pulsos de acuerdo a su amplitud y por ende su energía.

Conviene tener un ancho de ventana lo más pequeño posible y recorrerlo a intervalos pequeños para obtener así una buena resolución (de esta hablaremos con detalle más adelante, en la parte de espectrometría gamma).

Con los datos obtenidos se puede construir una gráfica de N (Número de cuentas), vs. tamaño de pulso (voltaje); posteriormente, utilizando una escala apropiada de energía, podemos convertir este voltaje en energía y obtener lo que se llama un espectro (también hablaremos con detalle en la parte de espectrometría).

Este sistema, como ya dijimos, no solo nos proporciona información cuantitativa, sino también cualitativa, lo cual es una gran ventaja. Además, con un sistema así, se puede detectar una amplia gama de radiación electromagnética.

## 2) Analizador de Altura de Pulsos Multicanal.

Aquí vamos a describir el sistema analizador multicanal. Dicho sistema se representa esquemáticamente en la fig. (III-2). El preamplificador, el alto voltaje y el amplificador tienen la función, descrita en la parte del analizador monocanal. Aquí la parte que nos interesa es, principalmente, desde el analizador multicanal (MCA), en adelante; Los elementos principales del MCA son el convertidor analógico-digital, el codificador y la memoria.

El convertidor analógico-digital es una parte importante del sistema en cuestión; los pulsos generados en el detector son, analógicos y por lo tanto hay que convertirlos en digitales.

Los pulsos antes de entrar al convertidor pasan por un sistema de compuerta que se encarga del control del flujo de estos. Luego, cada pulso, pasa al convertidor y de ahí va al codificador. Este ordena los pulsos (ya digitales), para depositarlos en la memoria, en cada uno de los canales de ella.

A la memoria se le puede entrelazar con una computadora y/o una impresora. Por medio de la computadora podemos analizar más fácilmente los datos obtenidos.

Hay que mencionar que, a través del sistema que describimos, se obtiene una gráfica (fig. III-3), de N (número de cuentas) vs No. de canal.

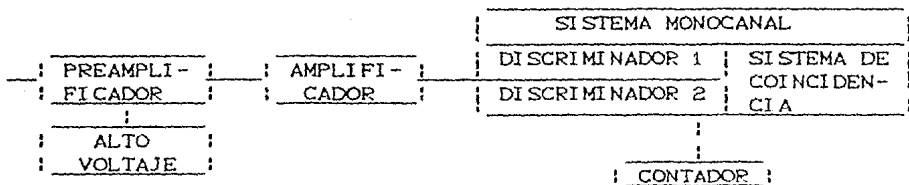


FIG. III-1: Representación esquemática del sistema analizador de altura de pulsos monocanal.

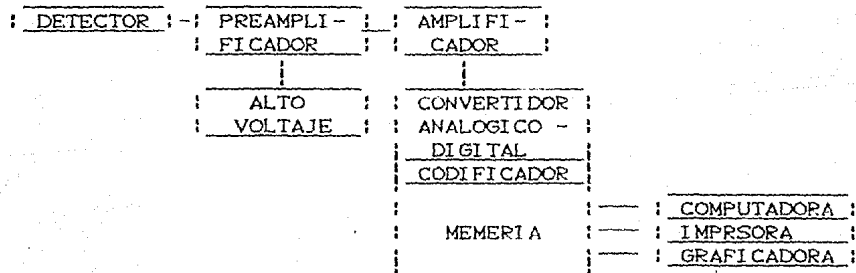


FIG. III-2: Representación gráfica del sistema analizador de altura de pulsos multicanal.

iii) Espectrometría gamma.

Nosotros podemos obtener una transformación lineal entre el No. de canal y la energía mediante el análisis de fuentes de

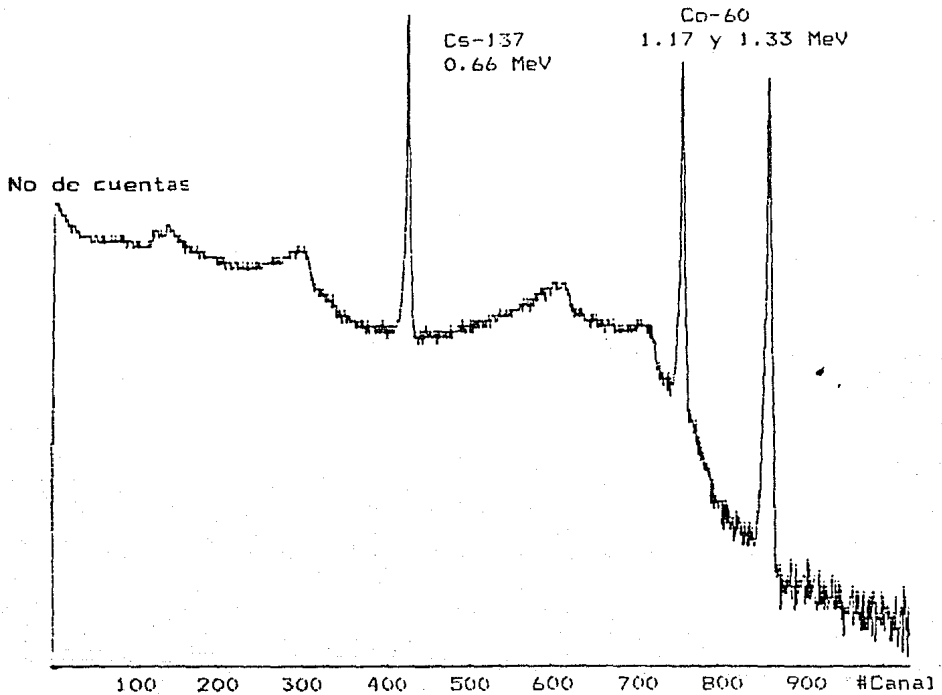


Fig. III-4: Espectro obtenido por medio de un analizador de altura de pulsos multicanal para el caso de las fuentes de calibración de Cs-137 y Co-60.

emisión conocida y así transformar la gráfica III-3 en N vs E. Este tipo de gráfica se denomina espectro.

La manera de calibrar a energías se hace colocando una escala lineal de ella en la parte ocupada por la escala de N. Si conocemos al menos tres energías para ciertos canales (esto se obtiene si analizamos una muestra de emisión conocida), podemos obtener una recta, donde el eje de las y's representa la energía (E) y el eje de las x's representa el No. de canal. Así, tenemos que:

$$E = m(\text{No. C}) + b \dots\dots\dots(\text{III-1})$$

Utilizando la ecuación (III-1) se puede obtener la correspondencia numérica entre el No. canal y E. Esta es una recta de calibración que nos sirve para detectar otras fuentes desconocidas.

Aquí consideramos oportuno mencionar un concepto importante, la resolución de picos: esta es la habilidad de nuestro sistema para diferenciar dos energías muy cercanas entre sí.

Los picos tienen cierto ancho por lo que dos energías muy cercanas se pueden presentar en un mismo canal; si la resolución no es buena se nos presentará este problema para muchas energías detectadas por nuestro sistema.



En el siguiente capítulo exponemos el método de análisis propuesto y la instrumentación correspondiente.

#### BIBLIOGRAFIA.

1. Price, W.J., "Nuclear Radiation Detection", McGraw-Hill, N.Y. (1958).
2. Melissinos, A.C., "Experiments in Modern Physics", Academic Press, London (1966).
3. Knoll, G.F., "Radiation Detection and Measurement", Ed. John Wiley & Sons, N.Y. (1979).
4. Wilkinson, D.H., "Ionization Chambers and Counters", Cambridge University Press (1950).
5. Birk, G.F., "Scintillation Counters", Pergamon Press, Oxford (1953).
6. Fleicher, R.L., Price, T.B., Walker, R.M., "Nuclear Tracks in Solids", University of California Press, Berkeley (1975).
7. Camboa, M.I., "Determinación de Uranio en Agua por detectores por Trazas en Sólidos (DTES)", Tesis Profesional, Facultad de Ciencias, UNAM (1983).
8. Lopez, E., "Automatización de un Sistema Analizador Multicanal", Tesis Profesional, Facultad de Ciencias, UNAM (1986).

#### IV) METODO DE ANALISIS PROPUESTO E INSTRUMENTACION.

En el presente estudio se utilizó el método de detección por medio de trazas en sólidos. Para fines de comparación se llevó a cabo un análisis de espectrometría gamma. Ambos se detallan a continuación.

##### a) Detección por Medio de Trazas en Sólidos.

Como detector se empleo el polímero carbonato allyl diglycol cuyas características, descritas en el capítulo anterior, son adecuadas para nuestro objetivo. Del CR-39 se obtienen hojas de 20 x 11 mm con un espesor de 600  $\mu\text{m}$ .

Al ser irradiados los detectores se forman zonas de daño las cuales se hacen visibles, utilizando el grabado químico, por medio de un ataque preferencial hasta que las trazas sean de dimensiones dentro de la gamma de un microscopio óptico. Para aumentar aun más el tamaño de las trazas se usa el grabado electroquímico.

##### i) Irradiación.

En el caso de líquidos la irradiación se llevó a cabo por inmersión de los detectores en soluciones de nitrato de uranilo (de actividad conocida de uranio) o muestras acuosas de ácido

fosfórico. El uso de nitratos se debe a que el uranio no es soluble en agua por lo que es necesario un compuesto químico.

En el caso de sólidos la irradiación se llevó a cabo colocando los detectores en contacto con la superficie de mezclas homogéneas de yeso reactivo (al 99%) con nitrato de uranio y de muestras en polvo (roca fosfórica tamizada y yeso).

Tanto las soluciones y las mezclas como las muestras fueron cubiertas para prevenir contaminación además de evitar evaporaciones y mantener la concentración constante.

#### ii) Grabado.

Los detectores se grabaron mediante dos procedimientos, primero fueron grabados químicamente para hacer visible el daño y después electroquímicamente para aumentar el tamaño de la traza que puede ser hasta 50 veces mayor que en el grabado químico convencional.

Para el grabado químico del detector se utilizó una solución de hidróxido de potasio (KOH), 6N a 60 °C, que degrada químicamente las moléculas, rompiendo las ligaduras únicamente en la interfase líquido-sólido.

Todos los detectores fueron grabados por inmersión durante el mismo tiempo y la misma temperatura y posteriormente lavados para

desactivar los efectos de la acción del agente grabador. Luego fueron atacados electroquímicamente por una solución de KOH 6N, por una cara. En el esquema de la figura IV-1 se presenta el sistema del grabado electroquímico:

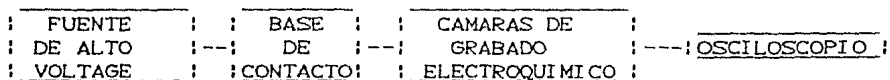


Fig. IV-1: Representación esquemática del grabado electroquímico.

Se utilizó una señal senoidal a una frecuencia fija (2000 Hz), aplicando un voltaje constante en el detector (3600 V<sub>pp</sub>). Un osciloscopio se usó para medir la frecuencia de la señal y el voltaje durante todo el proceso. El grabado se realizó a temperatura ambiente.

### iii) Sistema de Conteo.

Las trazas se contaron con un lector de microfichas marca Datagraphix Inc. modelo Datamate 100 con un aumento de 17x al cual se le colocó en la pantalla una mica cuadrículada calibrada para facilitar el conteo. Se hicieron 12 lecturas sobre 3 áreas distintas del detector y luego se promediaron para encontrar el número de trazas por cm<sup>2</sup>, con su desviación estándar correspondiente.

Resumiendo, se presenta una lista de la instrumentación empleada:

1. Irradiación.

Soluciones y mezclas de nitrato de uranilo con yeso reactivo (al 99%) para el caso de estándares sólidos y acuosos.

Portadores para la irradiación (fig. IV-5 y foto A), fabricadas en nuestro laboratorio.

2. Grabado químico.

Soluciones de KOH 6N.

Horno eléctrico MARCA BLUE M, MOD. SW-17TA.

Portadores para el grabado químico (fig. IV-4 y foto B), fabricadas en nuestro laboratorio.

Balanza granataria MARCA OHAUS de 2610 gr de capacidad.

3. Grabado Electroquímico.

El sistema de grabado electroquímico está compuesto por: a) Fuente de alto voltaje fabricada en el Departamento de Electrónica del IFUNAM (foto D); b) Cámaras de grabado electroquímico fabricadas en el Taller Mecánico del IFUNAM (fig. IV-2 y foto C); c) Base de contacto donde se colocan las cámaras (fig. IV-3 y foto E). d) Osciloscopio MARCA GOULD, MOD. OS 255.

4. Sistema de Conteo.

Lector de microfichas MARCA DATAGRAPHIX, MOD. DATAMATE 100 (foto F).

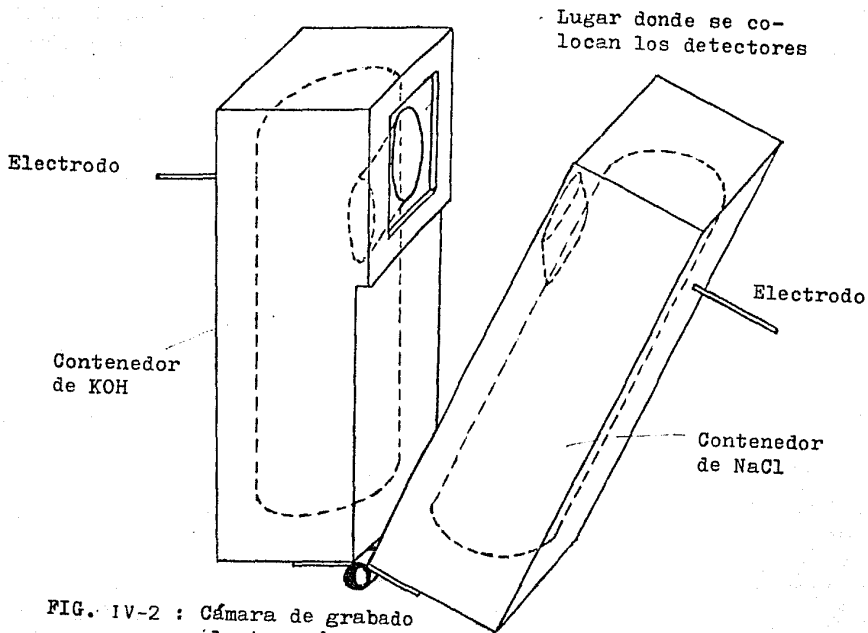


FIG. 1V-2 : Cámara de grabado electroquímico.

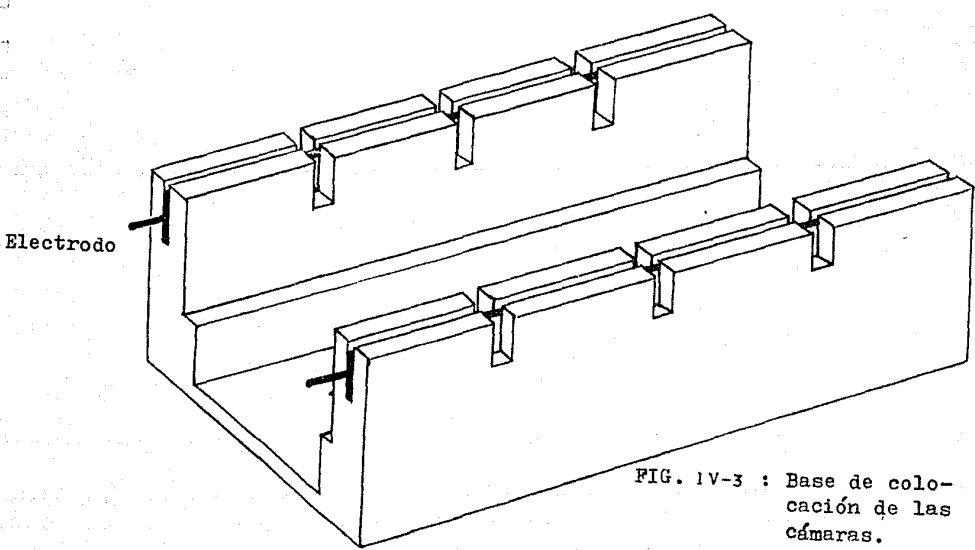


FIG. 1V-3 : Base de colocación de las cámaras.

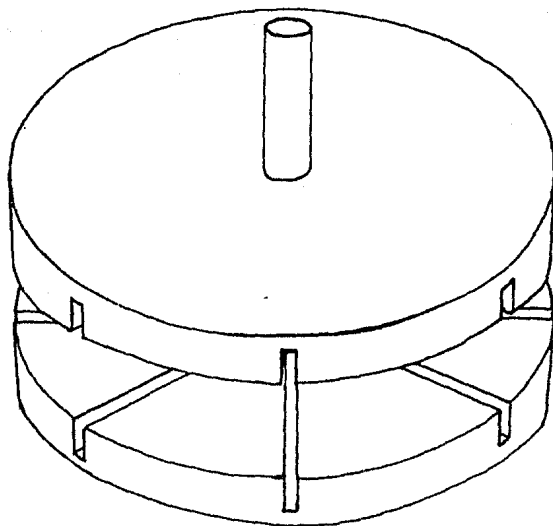


FIG. IV-4 : Portador para grabado químico con capacidad para 16 detectores.

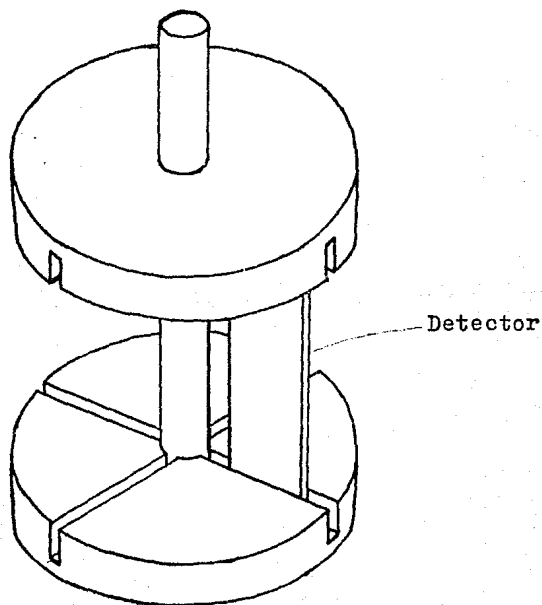


FIG. IV-5 : Portador para irradiación con capacidad para 4 detectores.

También contamos con toda una serie de instrumentos pequeños tales como pinzas, matraces, etc. que constituyeron parte útil de la infraestructura experimental.

b) Espectroscopía Gamma.

Como detector se utilizó el de germanio hiperpuro MARCA ORTEC MOD. GEM-08180G cuyas características son las siguientes [6]:

1. Eficiencia relativa de fotopico  $\geq 8\%$ .
2. Resolución FWHW (KeV) para Co-60 (1.332 MeV)  $\leq 1.80$ .
3. Tamaño: 44.5 mm de diámetro y 34,4 mm de longitud.
4. Volumen activo: 58.4 cc.
5. Relación de pico a compton  $\geq 44.1$ .

El detector se encuentra en la parte superior de una barra de cobre que a su vez está sumergida en nitrógeno líquido (dedo frio). De esta manera se logra la temperatura de operación del detector.

La señal obtenida es procesada por un sistema de análisis multicanal (MCA) y la información es almacenada a una computadora. El alto voltaje aplicado al detector se obtiene con una fuente de alto voltaje marca ORTEC modelo 459 y es de 3500 V.

i) Detección.

La detección en el caso de los líquidos se lleva a cabo en



soluciones de agua destilada con nitrato de uranilo (de la misma manera que en el método de trazas), y en muestras acuosas (ácido fosfórico), colocando los recipientes que las contienen en la parte superior del detector.

En el caso de los sólidos la detección se lleva a cabo en mezclas de yeso reactivo (al 99%), con nitrato de uranilo (como en el caso de las trazas), y en muestras en polvo que se colocan en la parte superior del detector, dentro de sus recipientes (como en los líquidos).

#### ii) Análisis.

La señal obtenida es amplificada por un amplificador marca ORTEC modelo 570. Luego pasa al analizador de altura de pulsos multicanal marca TRACOR NORTHERN modelo ECON II SERIES y se almacena a la memoria. El tiempo de análisis es de 5000 seg que representa un tiempo no muy largo pero sí adecuado para nuestro propósito.

Una vez obtenido el espectro la información se almacena en una computadora marca CROMEMCO modelo 18644CS-1; de estos datos podemos hacer uso cuando queramos.

Resumiendo, se presenta una lista de la instrumentación empleada:

## 1. Detección.

Detector de germanio hiperpuro MARCA ORTEC MOD. GEM-08180G (foto HD).

Fuente de alto voltaje MARCA ORTEC, MOD. 459.

## 2. Análisis.

Amplificador MARCA ORTEC, MOD. 570.

Analizador de altura de pulsos multicanal MARCA TRACOR NORTHEN, MOD. ECON II SERIES (foto G).

Computadora MARCA CROMEMCO, MOD. 18644CS-1 (foto G).

Impresora MARCA Z, MOD. 1000.

Tanto para el método de trazas como en espectrometría gamma se utilizó una Balanza analítica MARCA SANTORIUS, MOD. 2006 MP para la preparación de las soluciones y mezclas de nitrato de uranilo.

En el siguiente capítulo exponemos el procedimiento experimental (aplicando la metodología expuesta anteriormente).

## BIBLIOGRAFIA.

1. Price, W.J., "Nuclear Radiation Detection", McGraw-Hill, N.Y. (1958).

2. Knoll, G.F., "Radiation Detection and Measurement", Ed. John Wiley & Sons, N.Y. (1979).

3. Nix, D.W., Powers, R.P., Kanipe, L.G., "Application of Germanium Detectors to Environmental Monitoring", USEPA (1979).

4. Lopez, E., "Automatización de un Sistema Analizador Multicanal", Tesis Profesional, Facultad de Ciencias, UNAM (1986).

5. High-Purity Germanium (HPGe) Coaxial Detector Systems, Operating and Service Manual.

## V. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL Y MEDICIONES.

ii) Detección por Medio de Trazas en Sólidos.

a) Preparación de los estándares.

Los estándares sólidos se obtienen mezclando 200 gr de yeso reactivo al 99% con 0.5, 0.1 y 0.01 gr de nitrato de uranilo respectivamente (la mezcla se revuelve lo más posible y se tamiza 5 veces para obtener la mejor homogeneización posible). Obtenemos así las concentraciones de 2.5, 0.5 y 0.05 gr/Kg.

En el caso de los líquidos se diluyen 0.02, 0.01 y 0.0027 gr de nitrato de uranilo en 500 ml de agua destilada respectivamente. La dilución se homogeneiza utilizando un agitador magnético. Obtenemos así las concentraciones de 0.04, 0.02 y 0.0054 gr/lit correspondientes a los estándares acuosos.

b) Calibración.

Para la irradiación, en el caso de los líquidos, los detectores se sumergen en la solución, colocados en los portadores contruidos para esto (fig. IV-5). En el caso de los sólidos los detectores se colocan a contacto con la superficie del estándar. La irradiación fué de 5 días en total. Después de esto se procedió a realizar el grabado químico: los detectores se sumergen en una

solución de KOH 6N, a 60°C, durante 5 horas. En el grabado electroquímico los detectores se someten a una diferencia de potencial de 3600 Volt (V<sub>pp</sub>) y a 2000 Hz, a través de una solución de KOH 6N por una cara y de NaCl en la otra, durante 5 horas, utilizando las cámaras de grabado electroquímico (fig. IV-2).

Posteriormente se llevó a cabo el conteo de las trazas utilizando el lector de microfichas. A la pantalla del lector se colocó una hoja transparente cuadrículada, calibrada en relación al aumento obtenido; la división mínima es de 1  $\mu\text{m}^2$  y máxima de 1  $\text{mm}^2$ , con un total de 12 divisiones de 1  $\text{mm}^2$ . Se obtuvo una lectura por separado, para cada división, tomando luego el promedio, para llegar a la lectura final con su desviación estándar correspondiente. Utilizando la ecuación A-3 se obtiene la eficiencia  $\%$  para el método de trazas. Los resultados se resumen en las tablas V-1 y V-2:

Actividad del estándar (Beq)	No. de trazas ( $\text{T}/\text{cm}^2$ )	Y (%)	$\%$ (%)
2902.7	6500		0.0005
580.5	1100	100	0.0002
58.1	800		0.0004
Fondo	700		-----
Eficiencia promedio $\%$		:	0.00037 $\pm$ 0.00015

Tabla V-1: Eficiencia para estándares sólidos.

Actividad del estándar (Beq)	No. de trazas (T/cm <sup>2</sup> )	Y (%)	ε (%)
116.1	1800		0.00219
58.0	1100	100	0.00160
15.6	800		0.00148
Fondo	700		-----
Eficiencia promedio ε :		0.00176 ± 0.00038	

Tabla V-2: Eficiencia para estándares acuosos.

En las tablas anteriores (Y) es el rendimiento y ε la eficiencia absoluta de detección.

Para obtener las rectas de calibración utilizamos las tablas 1 y 2 en donde la actividad se presenta en Beq/Kg (en el caso de estándares sólidos), o Beq/lt (en el caso de estándares acuosos).

Actividad del estándar (Beq/Kg)	No. de trazas (T/cm <sup>2</sup> )
14513.7	6500 ± 700
2902.7	1100 ± 300
290.3	800 ± 400
FONDO	700 ± 300

Tabla V-3: Mediciones para estándares sólidos.

Actividad del estándar (Beq/lt)	No. de trazas (T/cm <sup>2</sup> )
232.22	1800 ± 500
116.11	1100 ± 400
31.34	800 ± 200
FONDO	700 ± 300

Tabla V-4: Mediciones para estándares acuosos.

Las rectas de calibración obtenidas por medio de mínimos cuadrados se presentan en la tabla V-5:

Tipo de estándar	Ecuación de la recta	C. de C.	$S_y$	$S_m$	$S_b$
Sólido	0.41 A - 232.0	0.99	456.42	0.0385	284.74
Líquido	4.73 A - 49.3	0.99	86.61	0.4815	62.95

Tabla V-5: Rectas de calibración para estándares sólidos y acuosos.

En estas rectas A es la actividad del estándar, C. de C. el coeficiente de correlación, y,  $S_y$ ,  $S_m$  y  $S_b$  las desviaciones estándares de la abscisa, de la pendiente y de la intersección con la abscisa respectivamente. Las rectas anteriores se presentan en las gráficas V-1 y V-2.

c) Mediciones en muestras.

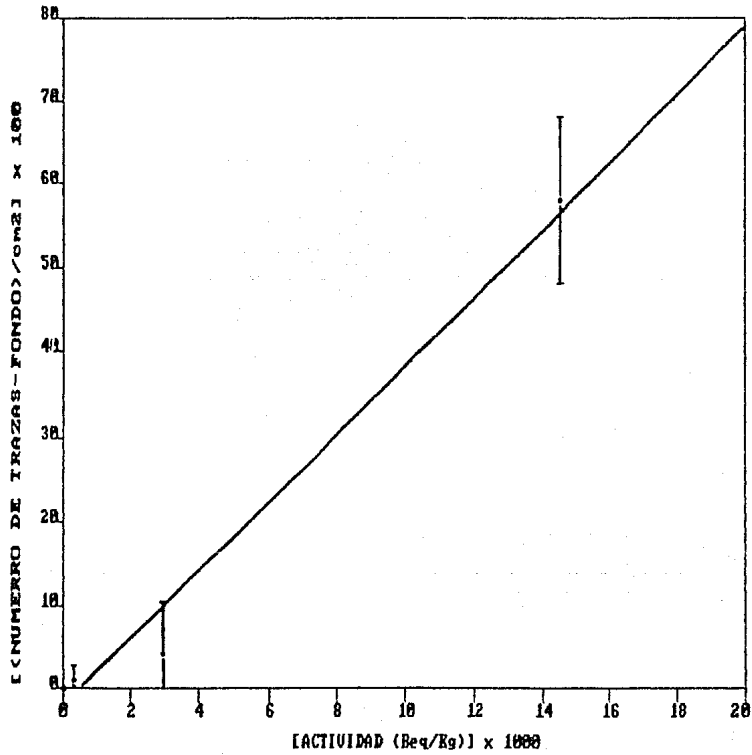
Se colocaron detectores en ácido fosfórico (sumergidos), roca fosfórica y yeso, se irradiaron 5 días y se llevó a cabo el mismo procedimiento que en el caso de los estándares con respecto al grabado químico y electroquímico. Las mediciones se presentan en la siguiente tabla:

Muestra	Masa de la muestra (gr)	No. de trazas ( $T/cm^2$ )
Roca fosfórica I	1148.1	1100 ± 400
Roca fosfórica II	231.5	900 ± 400
Yeso	302.3	800 ± 300
Acido fosfórico I (*)	900.0	1400 ± 300
Acido fosfórico II (*)	900.0	700 ± 300

Tabla V-6: Mediciones de trazas para muestras.

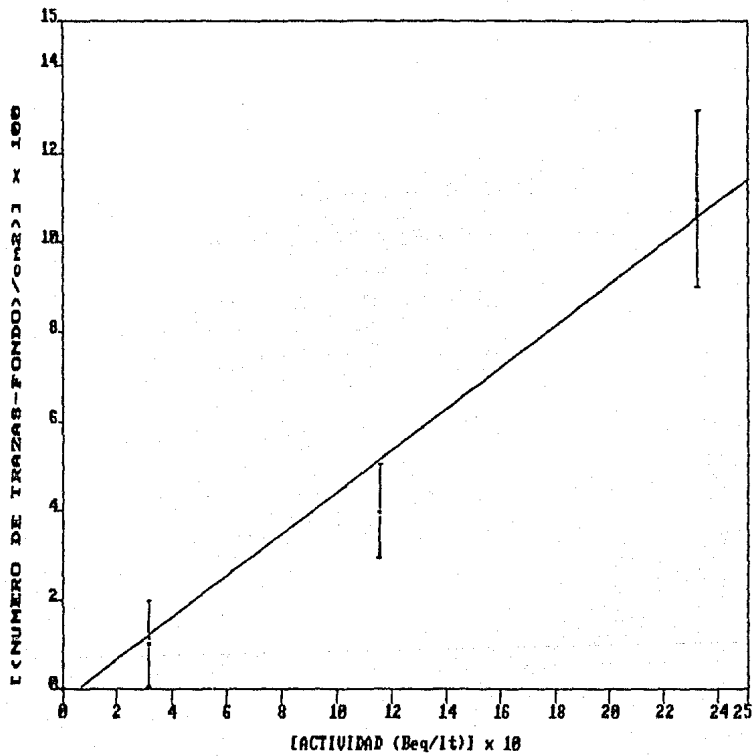
(\*) El ácido fosfórico se reporta en ml.

GRAFICA V-1: ESTANDARES SOLIDOS





GRAFICA U-2: ESTANDARES ACUOSOS



1) Espectrometría Gamma.

a) Parámetros de operación y resolución.

Los parámetros de operación del equipo son:

ALTO VOLTAJE Y AMPLIFICADOR	
Alto voltaje:	3500 Volt
Amplificador	
Ganancia fina:	0.946
Ganancia gruesa:	20
Polaridad:	Positiva
Tiempo de formación:	1 $\mu$ seg

ANALIZADOR MULTICANAL	
LLD	0.8
ULD	10
Ganancia	10
Tiempo de conteo	5000 seg.

La resolución de nuestro sistema se obtiene utilizando la fuente de calibración de Co-60 y la ecuación A-1. Tenemos que:

$$R (\text{Co-60: } 1332 \text{ KeV}) = 1.85.$$

b) Preparación de los estándares.

Los estándares sólidos son los mismos que se utilizaron para el caso de trazas, con la diferencia que se prepara uno más: el de 5 gr de nitrato de uranilo en 200 gr de yeso reactivo al 99% Cel

estándar de 0.05 gr/Kg no se utiliza por ser una concentración muy baja. Obtenemos así las concentraciones de 25, 2.5 y 0.5 gr/Kg.

Para los estándares acuosos se diluyen 10, 5, 2.5, 1.25 y 0.625 gr de nitrato de uranilo en 500 ml de agua destilada respectivamente (de la misma manera que en trazas la dilución se logra utilizando un agitador magnético).

c) Calibración.

Para obtener los patrones de calibración correspondientes a uranio y radio se utilizan las energías de emisión de 93 KeV del Th-234 (hijo inmediato de U-238 que llega a equilibrio secular con él a los 2 años, aproximadamente).

Una vez obtenidos los espectros correspondientes se obtuvo la eficiencia absoluta (Ec. A-4) de nuestro sistema, para el caso de los estándares sólidos. Los resultados se presentan en la siguiente tabla:

Actividad del estándar (Beq)	$N_I$ E/5000 seg	Y (%)	ε (%)
	Th-234		
29027.5	128223 ± 799		2.18
2902.7	14811 ± 271	4	2.28
580.5	4328 ± 147		2.34
Fondo		1617 ± 89	
$\epsilon_{\text{prom}} (\%) (\text{Th}/234) = 2.27 \pm 0.081$			

Tabla V-7: Eficiencia para estándares sólidos.

Para el caso de los estándares acuosos se obtuvo la siguiente tabla:

Actividad del estándar (Beq)	$N_I E/5000 \text{ seg}$	Y (%)	$\bar{x}$ (%)
	Th-234		
58055.0	166450 ± 914	4	1.42
29027.5	84675 ± 651		1.43
14513.7	43100 ± 463		1.43
7256.9	22842 ± 343		1.46
3628.4	10732 ± 231		1.48
Fondo	1617 ± 89		
$\bar{x}_{\text{prom}}$ (%) (Th-234) = 1.44 ± 0.025			

Tabla V-8: Eficiencia para estándares acuosos.

Para obtener las rectas de calibración utilizamos los datos de las tablas 7 y 8, con la diferencia que convertimos la actividad presentada, en Beq/Kg (en el caso de los sólidos), o Beq/lit (en el caso de los líquidos). Obtenemos las siguientes tablas:

Actividad del estándar (Beq)	$N_I E/5000 \text{ seg}$
	Th-234
145137.5	128223 ± 799
14513.5	14611 ± 271
2902.5	4328 ± 147
Fondo	1617 ± 89

Tabla V-9: Datos utilizados para obtener la calibración en sólidos.

Actividad del estándar (Beq)	$N_I$ E/5000 seg
	Th-234
116110.0	166450 ± 914
58055.0	84675 ± 651
29027.5	43100 ± 463
14513.7	22842 ± 343
7256.9	10732 ± 231
Fondo	1617 ± 89

Tabla V-10: Datos utilizados para obtener la la calibración en líquidos.

De las tablas V-9 y V-10 se obtuvieron las siguientes rectas de calibración para Th-234 y Ra-226:

Elemento	Ec. recta	C. de C.	$S_y$	$S_m$	$S_b$
Sólidos	0.87 A + 235.37	1.00	283.33	0.0023	170.59
Líquidos	1.42 A - 69.56	1.00	733.23	0.0075	11.06

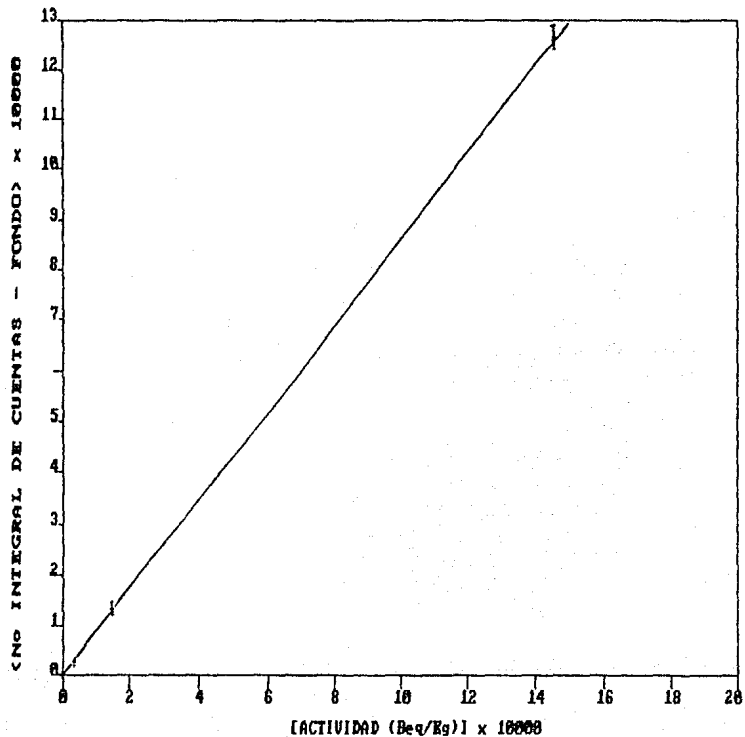
Tabla V-11: Rectas de calibración para Th-234.

Las rectas anteriores se presentan en las gráficas V-3 y V-4.

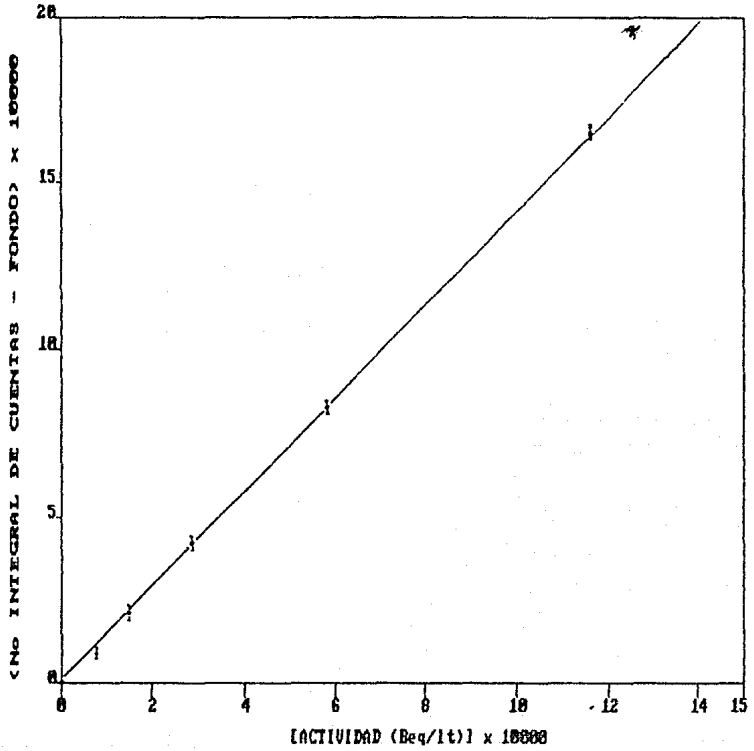
d) Mediciones en Muestras.

Las mediciones para el caso de las muestras se presentan en la siguiente tabla:

GRAFICA U-3: ESTANDARES SOLIDOS



GRAFICA U-4: ESTANDARES LIQUIDOS



Muestra	Masa de la muestra (gr)	NIM
		Th-234
Roca fosfórica I	1148.1	10070 ± 225
Roca fosfórica II	231.5	2832 ± 119
Yeso	302.3	2954 ± 127
Acido fosfórico I (*)	900.0	1943 ± 83
Acido fosfórico II (*)	900.0	1634 ± 73

Tabla V-18: Mediciones en muestras.  
(\*) Se reporta en ml.

En el siguiente capítulo se presentan los resultados correspondientes a la actividad de las muestras.



## VI. RESULTADOS.

### a) Detección por Medio de Trazas en Sólidos.

En el caso de trazas no es necesario efectuar normalización aunque tengamos muestras de masa diferente dado que ella no es importante después de cierto valor si tomamos en cuenta el alcance de las partículas  $\alpha$ . Así, por medio de las ecuaciones A-13 y A-14 y los resultados del capítulo anterior se obtiene la siguiente tabla:

MATERIAL	U-238 (Beq/Kg)	U-238 (%)
ROCA FOSFORICA I (*)	1541.5 ± 595.3	0.0120
ROCA FOSFORICA II (*)	1053.7 ± 549.5	0.0090
YESO	809.7 ± 315.9	0.0070
ACIDO FOSFORICO I (**)	167.8 ± 24.1	0.0010
ACIDO FOSFORICO II (**)	16.8 ± 11.9	0.0001

Tabla VI-1: Resultados correspondientes a trazas.

(\*) Mineral procesado.

(\*\*) La concentración se reporta en Beq/lit.

### a) Espectrometría Gamma.

Para la evaluación final utilizamos las ecuaciones A-15, A-16 y los resultados del capítulo anterior. Además, hay que tomar en

cuenta que los rayos gamma tienen un alcance considerable, por lo cual hay que tomar en cuenta la cantidad de material utilizado para el análisis; en nuestro caso la cantidad relacionada con los estándares es la misma (200 gr para sólidos y 500 ml para acuosos). Sin embargo, para las muestras no se utilizó una cantidad unitaria, por lo que es necesario efectuar una normalización de los resultados que obtenemos de las rectas de calibración. Dicha normalización representa la relación entre la masa de los estándares y la masa de las muestras. Así hay que multiplicar el resultado inicial por el factor de:

$$f = \text{masa del estándar} / \text{masa de la muestra.}$$

para el caso de los sólidos y también:

$$f = \text{volumen del estándar} / \text{volumen de la muestra.}$$

para el caso de los líquidos.

En la tabla VI-2 se presenta de forma resumida, la evaluación mencionada:

MATERIAL	U-238 (Beq/Kg)
ROCA FOSFORICA I (*)	1647.2 ± 11.3
ROCA FOSFORICA II (*)	972.8 ± 142.2
YESO	837.7 ± 103.0
ACIDO FOSFORICO I (**)	154.7 ± 7.5
ACIDO FOSFORICO II (**)	33.9 ± 10.8

Tabla VI-2: Resultados correspondientes a espectrometría gamma.  
 (\*) Mineral procesado.  
 (\*\*) La concentración se reporta en Beq/lt.

En la tabla VI-3 presentamos resultados de investigaciones en Estados Unidos, por medio de espectroscopía gamma:

MATERIAL	U-238 (Beq/Kg)
ROCA FOSFORICA (*)	1517
ACIDO FOSFORICO (**)	1887
YESO	222

Tabla VI-3: Resultados relativos a fertilizantes: Guimond, R. J., "Radiation and Phosphate Industry an Overview", Proc. Health Phys. Society 10h Midyear Topical Symp. Nat. Radioactivity in Man's Environment (1976).

En la siguiente tabla se presentan resultados para las mismas muestras, por medio de análisis químicos:

MATERIAL	U-238 (Beq/kg)
ROCA FOSFORICA I	1360.0
ROCA FOSFORICA II	----
YESO	721.4
ACIDO FOSFORICO I	128.9
ACIDO FOSFORICO II	13.3

Tabla VI-4: Resultados para U-238 por medio de análisis químicos.

En el siguiente capítulo se presentan algunas conclusiones relacionadas con los resultados, como también recomendaciones implicadas por los mismos.

## VII. CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES.

De los resultados obtenidos por medio del análisis de trazas en sólidos podemos concluir que:

1) El método de detección por medio de trazas en sólidos puede ser aplicable a compuestos de fertilizantes o desechos de ellos, sean sólidos o acuosos.

2) Tomando en cuenta lo anterior el método expuesto puede servir para evaluaciones relacionadas con la industria de construcción, relacionada con el uso de materiales de desechos de la industria de fertilizantes.

Considerando los resultados para el yeso (que es el desecho principal) se pueden obtener las recomendaciones de seguridad radiológica en base a tres factores básicos: distancia, tiempo y blindaje.

En cuanto al primer factor, para no rebasar el valor de 2.5 mR/hr de exposición, de debe estar a una distancia mínima de 8.34 m desde el lugar de los desechos (este valor se obtiene utilizando la ecuación II-30 y considerando una cantidad de desecho de  $10^5$  toneladas; la  $\Gamma$  correspondiente a la energía de

emisión de Th-234 es  $0.7949 \text{ R cm}^2 / \text{mCi hr}$ .

Se recomienda cercar la cantidad de desechos mencionada con un radio mínimo de 10 m. Además, si tomamos en cuenta que el valor de  $10^5$  toneladas corresponde a la producción de 1976, entonces esta distancia debería modificarse en la actualidad.

En cuando al tiempo, se desprende de lo anterior que no se puede permanecer más de 1 hr a una distancia menor que 8.5 m desde el lugar de los desechos por lo que no se debe permitir la entrada al área cercada por tiempos prolongados.

En cuando al blindaje, considerando que estos desechos son volátiles (polvo), se debe evitar que se esparzan, por lo que se recomienda depositarlos en lugares cerrados. Si no se ocupan para la construcción se recomienda que se utilicen para crear su propio cementerio el cual debe ser un lugar cerrado, de tal manera que se evite su esparcimiento y se disminuya la ionización en el medio.

Resumiendo, se recomienda:

1. Que se tenga control a los materiales de desechos.
2. Evitar la volatilización y esparcimiento de los desechos tomando medidas como las expuestas anteriormente.
3. Evitar acumulaciones de desechos en un solo lugar.
4. Evitar el derrame al mar como también en ríos, lagunas o lagos.
5. El control de estos desperdicios se sugiere que sea:

- a. Mediante su utilización como materiales de construcción en zonas no habitadas.
- o b. Mediante el establecimiento de un procedimiento para la creación de un cementerio de dichos desechos, teniendo en cuenta que no se afecten los mantos acuíferos o el desarrollo agrícola y ganadero.

Por último, con respecto al procedimiento experimental podemos recomendar:

a) Detección por medio de trazas.

1. Que se controle lo mejor posible el pH de la solución de KOH utilizado para el grabado químico y electroquímico.

2. Que se lleve a cabo la mejor homogeneización posible cuando se diluya o mezcle nitrato de uranilo con sustancias acuosas y/o sólidas.

b) Espectrometría gamma.

1. Que se utilicen los recipientes especiales para el caso de muestras y estándares acuosas, los cuales cubren la mayor parte del detector, obteniéndose así una mayor eficiencia en la detección.

2. Que el rango de calibración incluya los valores esperados de actividad en las muestras.

Por otro lado, para fines de comparación, recomendamos que se utilicen los mismos estándares para distintos métodos de análisis.

## A P E N D I C E S



APENDICE A. METODO DE EVALUACION DE LA RESOLUCION PARA EL CASO  
DE ESPECTROMETRIA GAMMA.

La resolución se obtiene considerando el ancho del pico a la mitad de su altura (FWHM). Este ancho se calcula restando los números de canal inicial y final a la mitad de él y dividiendo por la número de canal correspondiente al punto máximo del pico. Se obtiene que:

$$R = [(NoC_f - NoC_i) / NoC_o] \times 100 \dots\dots\dots(A-1)$$

en donde  $NoC_i$  es el canal inicial a la mitad del pico,  $NoC_f$  el canal final a la mitad del pico y  $NoC_o$  el canal correspondiente al punto máximo del pico.

B. METODO DE EVALUACION DE LA EFICIENCIA ABSOLUTA DE DETECCION.

La eficiencia absoluta  $\epsilon$  es la relación entre el número de eventos registrados (detectados), y el número de eventos originados por la fuente. Entonces tenemos que:

$$\epsilon = (\text{No eventos registrados}/t) / (\text{No de eventos producidos}/t)$$

y además  $\text{No de eventos producidos} = A y$

y por tanto  $\epsilon = N / A y \dots\dots\dots(A-2)$

en donde N es el No. de eventos registrados en el tiempo t, A la actividad de la muestra y (y) el rendimiento (proporción de núclidos que dan lugar a partículas  $\alpha$  o a radiación  $\gamma$ ).

La ecuación A-2 es aplicable, tanto a espectrometría  $\gamma$  como también a trazas a través de un patrón de actividad conocida. De esta manera la ecuación anterior se convierte en:

$$\epsilon = N_E / A_E y$$

Restando el fondo obtenemos las siguientes ecuaciones correspondientes a la detección por medio de trazas y a la

espectroscopía gamma respectivamente:

1) Trazas.

$$\xi = (NoT_E - NoT_F) / A_E \text{ y } \dots\dots\dots(A-3)$$

en donde  $NoT_E$  es el No. de trazas por unidad de área/t del estándar,  $NoT_F$  el No. de trazas de fondo/t por la misma unidad de área,  $A_E$  la actividad del estándar y  $\gamma$  el rendimiento.

2) Espectrometría  $\gamma$ .

$$\xi = (N_{I_E} - F_I) / A_E \text{ y } \dots\dots\dots(A-4)$$

en donde  $N_{I_E}$  es el No. integral de cuentas/t del estándar,  $F_I$  el No. integral de cuentas/t del fondo y  $A_E$  la actividad del estándar.

Se puede obtener una eficiencia correspondiente a cada estándar y a partir de estas sacar la eficiencia promedio con su respectiva desviación estándar; esta se obtiene por medio de la siguiente ecuación:

$$S_\xi = \left[ \sum (\xi_i - \xi_{prom})^2 / (n-1) \right]^{1/2} \dots\dots\dots(A-5)$$

en donde  $\xi_i$  representa las eficiencias obtenidas para cada estándar y  $\xi_{prom}$  la eficiencia promedio.

APENDICE C: EL METODO DE LOS MINIMOS CUADRADOS.

Para el ajuste de rectas usamos el método de los mínimos cuadrados que tiene como objetivo encontrar la recta (teórica) que más se ajusta (o sea con el mínimo error), a los puntos experimentales. Específicamente, se obtienen la pendiente, la intersección al origen y las desviaciones estándares correspondientes. Así, tenemos que:

$$m = \frac{n \sum x y - \sum x \sum y}{n \sum x^2 - \left[ \sum x \right]^2} \dots\dots\dots(A-6)$$

$$b = \frac{\sum y \sum x^2 - \sum x \sum x y}{n \sum x^2 - \left[ \sum x \right]^2} \dots\dots\dots(A-7)$$

La desviación estándar asociada al eje de las y's es:

$$S_y = \left[ \sum (\delta y)^2 / (n-2) \right]^{1/2} \dots\dots\dots(A-8)$$

con  $\delta y = y - (mx + b) \dots\dots\dots(A-9)$

Entonces, la desviación estandar para la pendiente y la

abscisa serán:

$$S_m = S_y \left[ \frac{n}{n \sum x^2 - (\sum x)^2} \right]^{1/2} \dots\dots\dots (A-10)$$

$$S_b = S_b \left[ \frac{\sum x^2}{n \sum x^2 - (\sum x)^2} \right]^{1/2} \dots\dots\dots (A-11)$$

Por otro lado el coeficiente de correlación (C.de C.) se da por la siguiente ecuación:

$$r^2 = \frac{n \left( m \sum x y + b \sum y \right) - (\sum y)^2}{n \sum y^2 - (\sum y)^2} \dots\dots\dots (A-12)$$

D. METODO DE EVALUACION DE LA ACTIVIDAD EN MUESTRAS.

a) Detección por Trazas en Sólidos.

Por medio de los estándares se puede obtener una recta de calibración de la forma:

$$\text{NoT}_E - \text{NoT}_F = m A_E + b$$

en donde  $A_E$  es la actividad específica de nitrato de uranilo en el estándar,  $m$  la pendiente y  $b$  la intersección con la abscisa. Despejando  $A_E$  y considerando que la eficiencia para la muestra es similar a la del estándar, se obtiene que:

$$A_M = (\text{NoT}_M - \text{NoT}_F - b) / m \dots\dots\dots(\text{CA-13})$$

Como conocemos la actividad del U-238 en los estándares se puede inferir directamente la actividad del mismo en la muestra.

El error correspondiente a A-13 se obtiene a través de la derivada; tenemos que:

$$\delta A_M = \pm \left| \frac{(m)(\delta \text{NoT}_M - \delta \text{NoT}_F - \delta b) - (\text{NoT}_M - \text{NoT}_F - b)(\delta m)}{m^2} \right| \dots\dots(\text{CA-14})$$

b) Espectrometría Gamma.

De la misma forma que en trazas, se puede obtener una recta de calibración por medio de los estándares de la forma:

$$N_{I_E} - F_I = m A_E + b$$

en donde  $A_E$  es la actividad específica del estándar (C/Kg o C/t),  $m$  la pendiente y  $b$  la intersección con la abscisa. Despejando  $A_E$  y considerando que la eficiencia para la muestra es similar a la del estándar, se obtiene que:

$$A_M = (N_{I_M} - F_I - b) / m \dots\dots\dots(A-15)$$

Como conocemos la actividad del U-238 en los estándares se puede inferir directamente la actividad de los mismos en la muestra (se obtiene una recta de calibración para el U-238). El error correspondiente a IV-15 se obtiene a través de la derivada; tenemos que:

$$\delta A_M = \pm \left| \frac{(m)(\delta N_{I_M} - \delta F_I - \delta b) - (N_{I_M} - F_I - b)(\delta m)}{m^2} \right| \dots\dots(A-16)$$

APENDICE E: CONCENTRACION DE U-238 EN LOS ESTANDARES.

Es necesario conocer la cantidad de U contenida en los estándares; para esto nos basamos en la composición química del nitrato de uranilo que es la siguiente:  $UO_2(NO_3)_2 + 6H_2O$ ; entonces tenemos que:

U :::	1 x 238 = 238 = 47.41%
O :::	14 x 16 = 224 = 44.62%
N :::	2 x 14 = 28 = 5.57%
H :::	12 x 12 = 12 = 2.39%
TOTAL = 502 = 100.0%	

El U está constituido por U-234, U-235 y U-238 en las proporciones de 0.006%, 0.71% y 99.28% respectivamente. Entonces, 100 gr de nitrato de uranilo contienen 47.41 gr de U y por lo tanto  $2.8446 \times 10^{-3}$  gr de U-234, 0.3366 gr de U-235 y 47.0587 gr de U-238.

Consecuentemente, 1 gr de nitrato de uranilo contiene:

$2.8446 \times 10^{-5}$	gr de U-234	.....
$3.3666 \times 10^{-2}$	gr de U-235	.....(A-17)
0.4706	gr de U-238	.....

Tomando en cuenta los resultados anteriores, tenemos que:

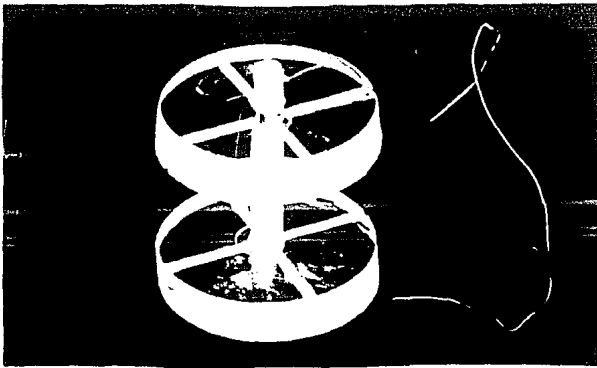


$N = 1.1911 \times 10^{21}$  átomos / gr de (N.R) (concentración actual)

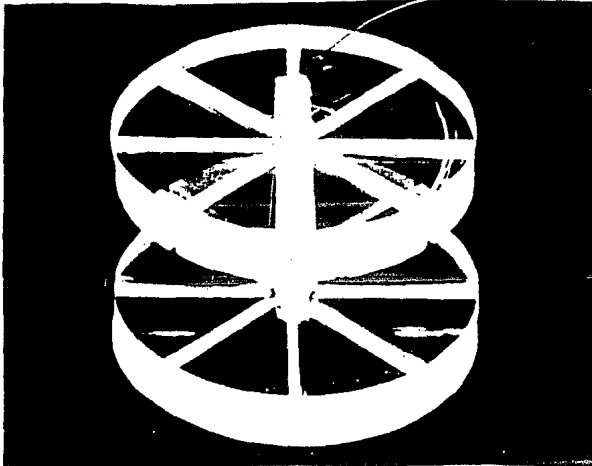
Entonces, en un gramo de nitrato de uranilo tenemos una actividad correspondiente al U-238 de:

5806.31 Beq

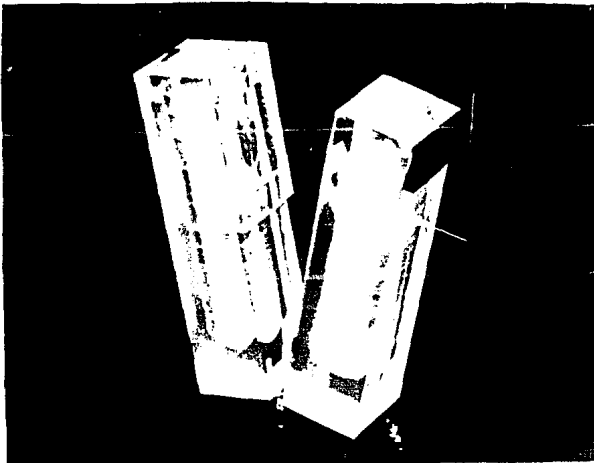
APENDICE F: FOTOGRAFIAS DE LA INSTRUMENTACION BASICA  
UTILIZADA.



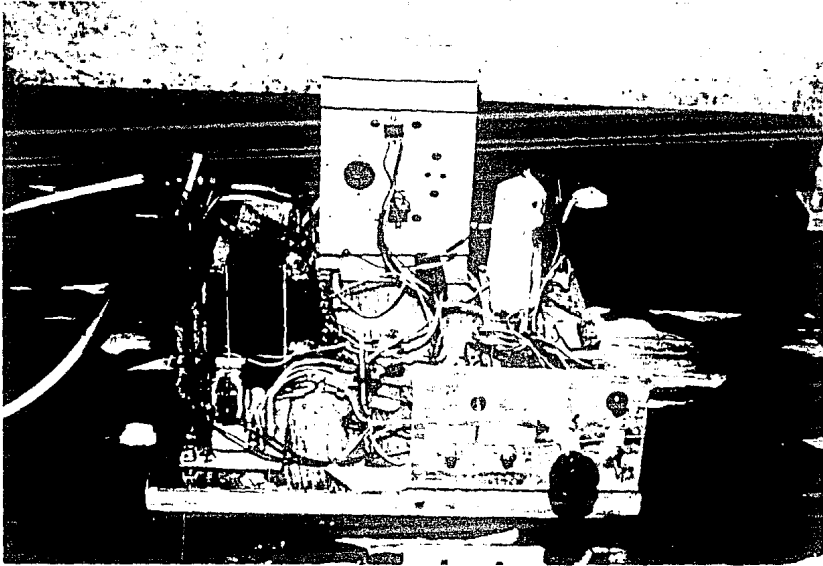
A. Portador de irradiación con capacidad para 4 detectores.



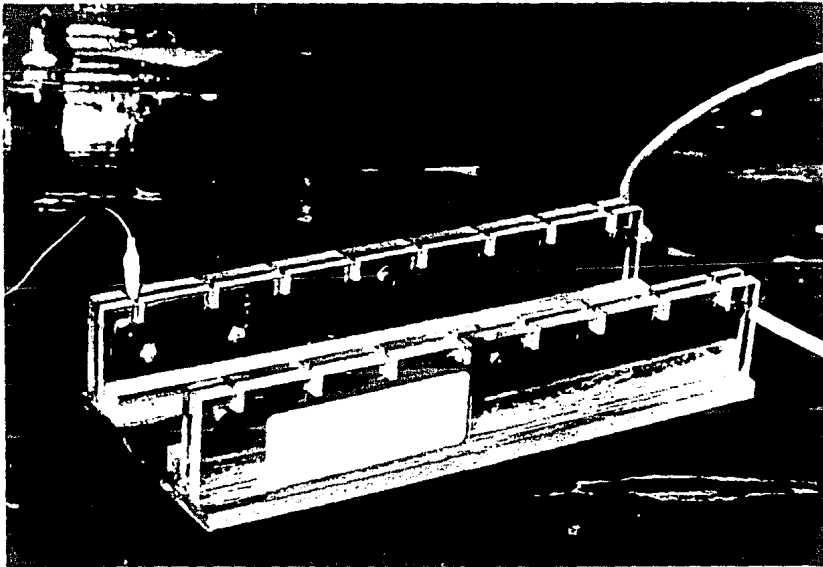
B. Portador de grabado químico con capacidad para 16 detectores.



C. Cámara de grabado electroquímico.



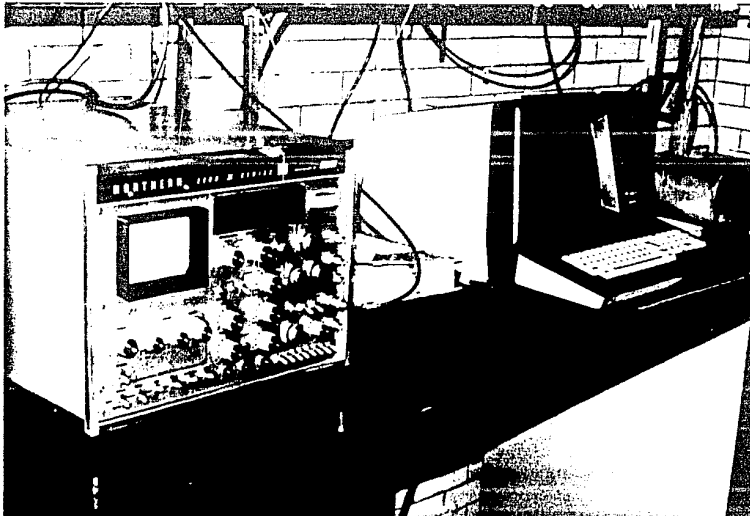
D. Fuente de alto voltaje para el grabado electroquímico.



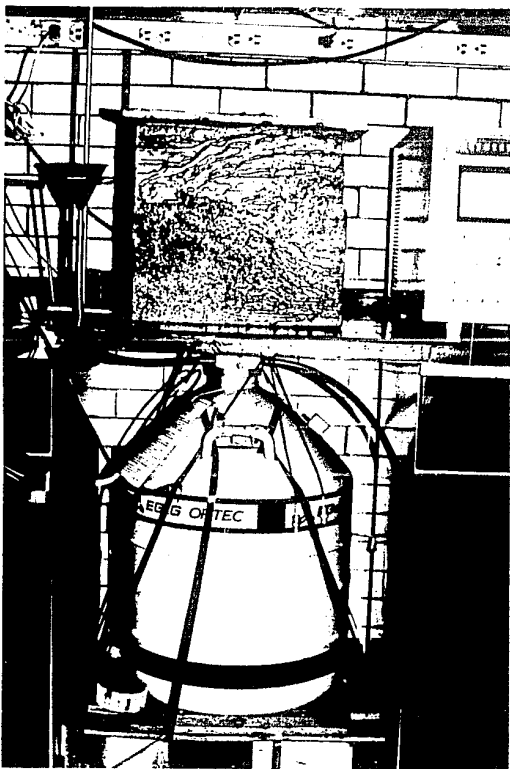
E. Base de contacto para las cámaras de grabado electroquímico.



F. Lector de microfichas.



G. Analizador de altura de pulsos multicanal con salida a computadora.



H. Recipiente de enfriamiento para el detector de  $HPGe$ ; en la parte superior se ve el blindaje de plomo que rodea al detector.

## BIBLIOGRAFIA.

1. Price, W.J., "Nuclear Radiation Detection", McGraw-Hill, N.Y. (1958).
2. Knoll, G.F., "Radiation Detection and Measurement", Ed. John Wiley & Sons, N.Y. (1979).
3. Nix, D.W., Powers, R.P., Kanipe, L.G., "Application of Germanium Detectors to Environmental Monitoring", USEPA (1979).
4. Camboa, M.I., "Determinación de Uranio en Agua por detectores por Trazas en Sólidos (DTES)", Tesis Profesional, Facultad de Ciencias, UNAM (1983).
5. Lopez, E., "Automatización de un Sistema Analizador Multicanal", Tesis Profesional, Facultad de Ciencias, UNAM (1986).
6. Baird, D.C., "Experimentation: An Introduction to Measurement Theory and Experiment Design", Prentice-Hall, Inc., New Jersey, U.S.A. (1962).
7. Canavos, G.C. "Probabilidad y Estadística; Aplicaciones y Métodos", McGraw-Hill, México (1933).
8. Haber, A., Runyun, P.R., "Estadística General", Fondo Educativo Interamericano, México (1973).
9. Meyer, P.L., "Probabilidad y Aplicaciones Estadísticas", Fondo Educativo Interamericano, México (1973).

## BIBLIOGRAFIA GENERAL.

1. Faires, F.A., y Panks, B.H., "Radioisótopos, Técnicas de Laboratorio", Ed. Universitaria de Buenos Aires (1960).
2. Overman, R.T., y Clark, H.M., "Radioisotope Techniques", McGraw-Hill Co., N.Y. (1960).
3. Duncan, J.F., y Clark, G.B., "Isotopes in Chemistry", Clarendon Press, Oxford (1968).
4. Chase, G.D., y Rabinowitz, J.L., "Principles of Radioisotope Methodology", Burgess Publishers Co. (1968).
5. Shell, A.H., "Nuclear Instruments and their Uses", Vol.1, John Wiley & Sons (1962).