

N° 79  
251



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO

FACULTAD DE QUIMICA

"DETERMINACION DE AZUFRE EN CARBON POR RAYOS GAMMA DE CAPTURA"



EXAMEN PROFESIONALES  
FAC. DE QUIMICA

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TITULO DE :

INGENIERO QUIMICO

P R E S E N T A

GLORIA RODRIGUEZ HUERTA

MEXICO, D.F.

1992

**TESIS CON  
FALLA DE ORIGEN**





## **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.

DETERMINACION DE AZUFRE EN CARBON POR RAYOS GAMMA DE  
CAPTURA.

INDICE

	PAG.
INTRODUCCION	9
CAPITULO 1	
1.- FUNDAMENTOS TEORICOS	11
1.1 Ionización Especifica	11
1.2 Interacción de las radiaciones electromagnéticas con la materia.	12
a Efecto Fotoeléctrico	13
b Efecto Compton	18
c Producción de Pares	20
1.3 Interacción de neutrones con la materia.	22
a Dispersión Elástica ( n, n )	22
b Dispersión Inelástica ( n, n ) ( n, n $\gamma$ ) ( n, 2n )	22
c Captura Simple ( n, $\gamma$ )	23
d Emisión de partículas cargadas ( n, p ) ( n, d ) ( n, $\alpha$ ) etc.	23
e Fisión ( n, F )	23
1.4 Fuentes de Neutrones	24
a Fisión Espontánea	24
b Reacciones ( $\alpha$ , n )	24

c	Reacciones ( $\gamma$ , n)	26
d	Reacciones con partículas Cargadas Aceleradas	26
1.5	Neutrones	27
a	Sección Eficaz	28
b	Neutrones Térmicos	29
1.6	Dispersión Elástica e Inelástica	31
1.7	Captura Radiactiva	36
1.8	Rayos Gamma de Captura	37
1.9	Norma Técnica Ecológica	41

## **CAPITULO 2**

<b>2</b>	<b>METODO EXPERIMENTAL</b>	<b>43</b>
2.1	Detectores de Centelleo	43
a	Generalidades	43
b	Sustancias Luminiscentes	47
c	Tiempo de Respuesta	50
d	Fotomultiplicadores	50
e	Espectroscopia $\gamma$ con detectores de centelleo	52
2.2	Detector de Estado Sólido	58
a	Generalidades	58
b	Principios de operación y diseño	59
c	Resolución del detector	63
d	Eficiencia de detección	65
2.3	Sistema de Detección	66

2.4	Calibración del Sistema de Detección	69
2.5	Análisis Vía Húmeda	71
2.6	Arreglo Experimental	72

### **CAPITULO 3**

3	<b>RESULTADOS EXPERIMENTALES</b>	78
3.1	Blindaje del Detector.	78
3.2	Blindaje de la Fuente	79
3.3	Distancia Fuente-Muestra-Detector	81
3.4	Calibración del Espectrómetro y Medidas de Fondo	81
3.5	Muestras	82
3.6	Reproducibilidad	84
3.7	Variación del Tiempo	89
3.8	Curva de Calibración del Azufre.	89

### **CAPITULO 4**

4	<b>CONCLUSIONES</b>	93
---	---------------------	----

5	<b>BIBLIOGRAFIA</b>	95
---	---------------------	----

## INTRODUCCION

En los últimos veinte años se ha agudizado en todo el mundo el problema de la lluvia ácida. El origen de esta lluvia es la mezcla de la humedad de la atmósfera con los gases de combustión del petróleo y del carbón.

En general estos dos combustibles tienen porcentajes variables de azufre; sería deseable quemar combustibles con bajos porcentajes de azufre, sin embargo, los métodos tradicionales para determinar estos porcentajes son muy lentos ; por lo que es necesario producir un método analítico rápido, preciso, confiable y representativo.

Estas condiciones las llena un método analítico relativamente nuevo, basado en la espectrometría de rayos gamma de captura, " Prompt-Gamma Neutron Activation Analysis" (PGNAA), debido a interacciones del neutrón con el núcleo de los elementos contenidos en el material analizado.

Los experimentos bien definidos de laboratorio son una parte necesaria para cualquier proyecto que desee optimizar la técnica PGNAA para la determinación en línea del contenido de Azufre en Carbón. Las medidas reportadas aquí

fueron diseñadas para estudiar el efecto de varios parámetros operacionales para un sistema de diseño óptimo.

Otro objetivo del trabajo de tesis es describir un dispositivo experimental basado en una fuente de neutrones isotópica (Am/Be) ; informa en medidas de sensibilidad, límites de detección, y demostrar la posibilidad de construir un arreglo experimental de prompt-gamma útil y fácil.

## CAPITULO 1

### 1.- FUNDAMENTOS TEORICOS

#### 1.1 Ionización Específica.

Cuando la radiación incide sobre un electrón de los átomos que atraviesa, una cantidad de energía es transferida al electrón el cual es disparado del átomo en forma de un ion negativo. El átomo permanece como un ion positivo y en esta forma un par de iones o par iónico ha sido formado. La ionización específica para cualquier radiación, es definida como el número de pares iónicos producidos por cada milímetro de trayectoria en un medio dado.

Las radiaciones pueden incidir sobre el núcleo también, y de hecho este tipo de eventos produce las reacciones nucleares. No obstante, si consideramos que el diámetro de un átomo puede ser del orden de  $10^{-8}$  cm, mientras que el diámetro de su núcleo es igual a  $10^{-12}$  cm, o sea 10 mil veces menor en términos aproximados, podremos explicar porqué resulta mucho menos probable que un haz de radiaciones incida sobre el núcleo que sobre los electrones girando en órbitas alrededor suyo. La probabilidad de que un tipo de radiación determinado choque con un núcleo de propiedades definidas para producir una reacción nuclear

característica, se establece usando los términos de una superficie transversal efectiva a la radiación, llamada sección eficaz y representada por la letra griega  $\sigma$ .

## 1.2 Interacción de las radiaciones electromagnéticas con la materia.

Los rayos  $\gamma$  son emitidos por el núcleo, cuando éste se encuentra en un estado de excitación y decae a un nivel inferior de energía. La emisión de rayos X tiene lugar cuando ocurre una transición entre un estado de excitación del átomo a otro de inferior energía, por el cambio de un electrón a una órbita interior. Como estos procesos ocurren entre dos niveles definidos de energía, las radiaciones resultantes tienen una dimensión energética específica. La energía de los rayos  $\gamma$  abarca un intervalo de KeV a MeV en tanto que aquélla de los rayos X va de valores próximos a cero hasta 50 KeV. El modo de interacción de los rayos X y  $\gamma$  con la materia es el mismo en esencia, difiriendo solamente en la cantidad de energía que disipan en la materia al ser absorbidos. La ionización específica promedio es de 1/100 de aquélla causada por las partículas  $\beta^-$  de manera que la mayor parte de la ionización causada por

los rayos X ó  $\gamma$  resulta ionización secundaria. La radiación emitida por el átomo puede esquematizarse de tal forma que se relacionen el número de fotones emitidos por el átomo con la energía característica de cada fotón, formándose de esta manera el espectro de emisión.

La línea de emisión de energía a la cual correspondá un mayor número de fotones será la que caracteriza al elemento, asignándoseles a las líneas de emisión los nombres de los niveles energéticos de donde proviene el electrón que ocupa el sitio vacante.

De esta forma el fenómeno de rayos  $\gamma$  de captura nos permite identificar a un elemento a partir de su espectro de emisión. La Fig. 1.1 muestra un ejemplo de un espectro de emisión típico.

Aunque existe un gran número de tipos de interacción de la radiación electromagnética con la materia, solo tres tienen importancia en la detección de radiación, éstas son: el efecto fotoeléctrico, el efecto Compton y la producción de pares.

#### a.-) Efecto Fotoeléctrico.

El fotón interacciona con un electrón de un átomo absorbedor como un paquete de energía que es completamente absorbido. Este efecto tiene lugar cuando se trata de

radiaciones electromagnéticas de baja energía. Como resultado de la energía absorbida, un electrón, llamado fotoelectrón es lanzado fuera del átomo desde una órbita exterior al núcleo con una energía cuyo valor es dado por la relación:

$$E_{e^-} = E_{\gamma} - E_{e.a.}$$

donde:

$E_{e^-}$  = Energía de fotoelectrón.

$E_{\gamma}$  = Energía del rayo  $\gamma$  absorbido

$E_{e.a.}$  = Energía de amarre del electrón lanzado

El fotoelectrón, a su vez, pierde energía causando producción de pares iónicos. La vacante orbital es ocupada por otro electrón proveniente de órbitas exteriores, o sea de superiores energías, emitiéndose un rayo X con una energía específica, igual a la diferencia entre las energías de amarre de los electrones a ambos niveles. Pero, en vez del rayo X, esta energía puede ser transferida a otro electrón en una órbita cercana al núcleo con un nivel bajo de energía, mismo que es lanzado del átomo y se conoce como electrón Auger.

El proceso fotoeléctrico es el modo predominante de interacción para rayos gamma ( o rayos X ) de baja energía y para materiales absorbedores de alto número atómico.

La expresión analítica válida para la probabilidad de

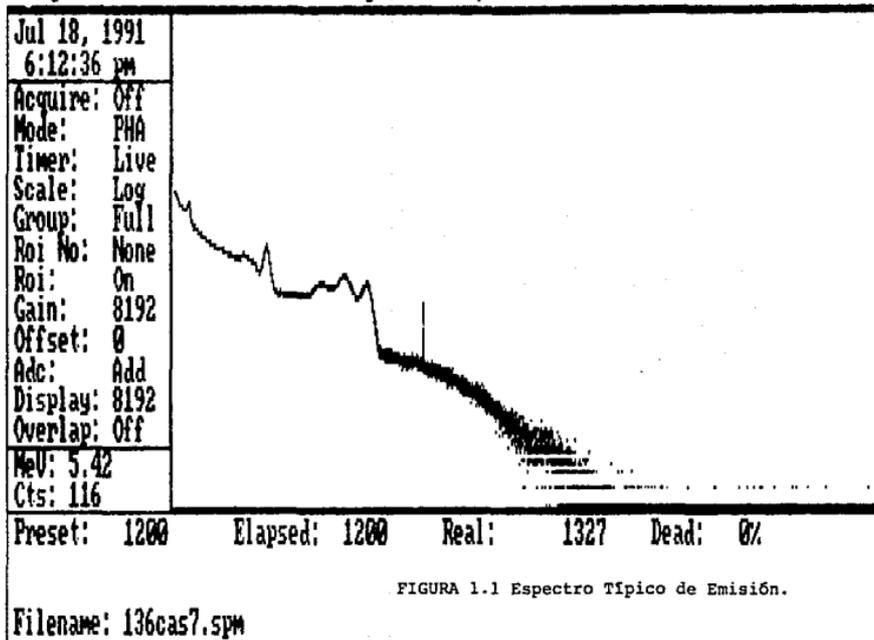
absorción fotoeléctrica por átomos sobre todos los rangos de energía  $E\gamma$  y número atómico  $Z$ , es complicada, más una aproximación es:

$$\tau = N \frac{Z^n}{E\gamma^{3.5}}$$

Donde  $N$  es el número de átomos por unidad de volumen, el exponente  $n$  varía entre 4 y 5 sobre la región de energía que nos interesa. Esta fuerte dependencia de la absorción fotoeléctrica con el número atómico del absorbedor es la razón por la que se usa blindaje con materiales de alto número atómico, tales como el plomo.

Una gráfica del coeficiente de absorción fotoeléctrica para un material común en detectores de rayos gamma, se muestra en la Fig. 1.2. En la región de baja energía, aparece una discontinuidad o "borde de absorción", la energía de este borde corresponde a la energía de los enlaces de la capa electrónica K. Para una energía un poco más grande que la del borde, la energía del fotón es apenas suficiente para producir la salida del electrón K del átomo, para fotones con ligeramente menor energía que la del borde, el proceso no es energéticamente posible y por tanto la probabilidad de que se dé este tipo de interacción cae abruptamente.

Acquire Start Time: 7:26:11 pm Jun 13, 1991



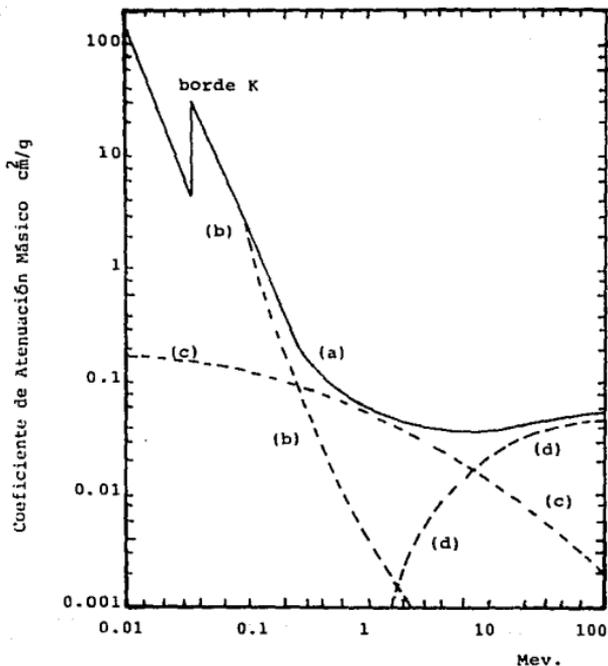


FIGURA 1.2 Dependencia de la energía en los procesos de interacción de rayos gamma con Yoduro de Sodio: (a) Atenuación total. (b) Efecto fotoelétrico. (c) Efecto Compton. (d) Producción de pares.

b.-) Efecto Compton.

Cuando un rayo  $\gamma$  tiene una mayor energía que en el caso previo, no es absorbido completamente en una colisión. Al causar el lanzamiento de un electrón, desvía su trayectoria para continuarla con menor energía, ver Fig. 1.3 , mayor longitud de onda y en consecuencia menor frecuencia, con mejor oportunidad de encontrar electrones en su camino a quienes comunicarles su energía. La energía del rayo gamma dispersado se obtiene por la relación :

$$Eg_2 = Eg_1 - Ee.a.$$

$Eg_2$  = Energía del rayo dispersado.

$Eg_1$  = Energía del rayo incidente.

Ee.a. = Energía de amarre del electrón lanzado.

(aprox. 30-33 Ev.)

El rayo dispersado puede sufrir varias colisiones, antes de ser absorbido por efecto fotoeléctrico. Si el electrón lanzado pertenece a una órbita cercana al núcleo de bajo nivel energético, tendrá lugar la emisión de rayos X o electrones Auger, igual que durante el efecto fotoeléctrico.

La expresión que relaciona la energía a la cual debe aparecer la dispersión Compton y el ángulo de desviación es la siguiente:

$$E' = \frac{0.5}{1 - \cos \phi + 0.5 / E}$$

Donde:

$E'$  = Energía de la dispersión Compton dispersada.

$E$  = Energía del rayo gamma incidente.

$\phi$  = Angulo de dispersión de la radiación.

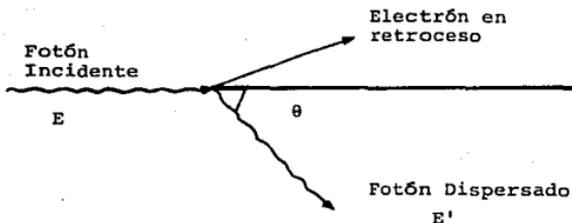


FIGURA 1.3 EFECTO COMPTON

c.-) Producción de Pares.

Cuando la energía del rayo  $\gamma$  incidente es muy alta, mayor de 1.02, que al ser absorbido por la materia se transforma en masa y produce 2 partículas  $\beta$ , una negativa y otra positiva. Como 2 masas de electrón son producidas, es necesaria al menos una energía equivalente a ella ( $2 \times 0.51 = 1.02$  Mev ). Si la energía del rayo  $\gamma$  inicial es mayor que este valor del umbral, el exceso aparecerá como energía cinética del par formado. El electrón a su vez causa ionización y el positrón existe hasta que interacciona con otro electrón para aniquilar el par, produciéndose ahora 2 rayos  $\gamma$  de 0.51 MeV cada uno que salen en sentidos opuestos, conocidos como radiación de aniquilación, por lo que el proceso de aniquilación puede ser considerado hasta cierto punto como el inverso de la producción de pares.

En la Figura 1.4 se ve la importancia relativa de los tres efectos más importantes en la interacción de rayos gamma en función de la energía y del número atómico del absorbedor.

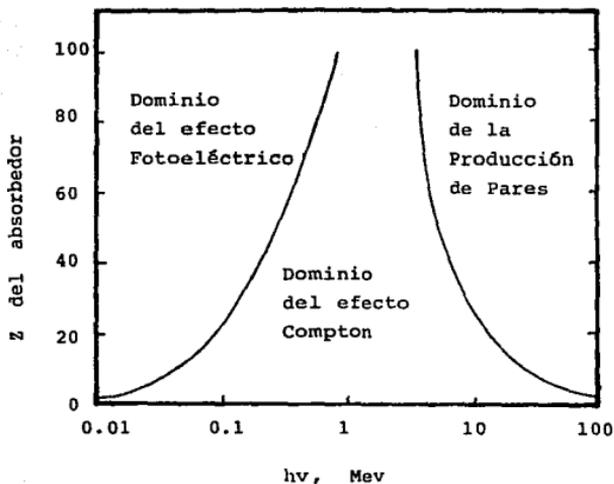


FIGURA 1.4 Importancia relativa de los tres tipos más comunes de interacción de rayos gamma. Las líneas muestran los valores de Z y hv para los cuales los dos efectos son aproximadamente iguales.

### 1.3 Interacción de neutrones con la materia

Al igual que los rayos gamma, los neutrones no tienen carga eléctrica y no interactúan con la materia a través de fuerzas Coulombianas. Los neutrones pueden atravesar muchos centímetros de materia sólida, dependiendo de su energía, sin tener algún tipo de interacción y por lo tanto pueden ser "invisibles" para algunos detectores de tamaño convencional. Comúnmente se clasifica a los neutrones de acuerdo con su energía (aunque los límites no están del todo establecidos) como<sup>(1)</sup> :

-Térmicos	$E < 0.025 \text{ eV}$
-Epitérmicos	$1\text{eV} < E < 0.2 \text{ MeV}$
-Rápidos	$0.2 \text{ MeV} < E < 20 \text{ MeV}$

Una lista de varios mecanismos de interacción de neutrones con la materia es la siguiente:

a) Dispersión Elástica ( $n,n$ ). El neutrón es absorbido y reemitido con su energía cinética inicial completa, el núcleo absorbedor no queda en estado excitado.

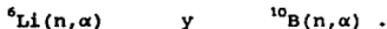
b) Dispersión Inelástica ( $n,n'$ ), ( $n,n\gamma$ ), ( $n,2n$ ). Este proceso es energéticamente posible sólo para neutrones rápidos.

En la reacción ( $n,n\gamma$ ), la energía de excitación del núcleo es eliminada con una emisión gamma. En el proceso

(n,n') el núcleo permanece en estado metaestable. El proceso (n,2n) ocurre sólo para neutrones con energías mayores de 8 MeV.

c) Captura Simple (n, $\gamma$ ). Esta es probablemente la reacción más común pues los neutrones térmicos inducen esta reacción en casi todos los núclidos y también es muy probable para neutrones epitérmicos en algunos núclidos. Este proceso es llamado también captura resonante ó captura radiactiva y la energía del gamma emitido es de varios MeV.

d) Emisión de partículas cargadas (n,p), (n,d), (n, $\alpha$ ), (n,t), (n, $\alpha$ p), etc. Para que una partícula cargada salga del núcleo debe vencer la barrera Coulombiana, este tipo de interacciones es más probable para núcleos ligeros y neutrones rápidos, aunque existen algunas excepciones importantes en donde la reacción es posible con neutrones térmicos gracias a que son suficientemente exotérmicas, ejemplos de estas reacciones son:



e) Fisión (n,F). El núcleo original se rompe en dos fragmentos de fisión y uno o más neutrones. La fisión ocurre con neutrones térmicos en  ${}^{235}\text{U}$ ,  ${}^{239}\text{Pu}$  y  ${}^{233}\text{U}$  y con neutrones rápidos con muchos núcleos pesados.

#### 1.4 Fuentes de Neutrones.

i

##### a) Fisión Espontánea

Muchos de los núcleos transuránidos tienen una apreciable probabilidad de fisión espontánea. Varios neutrones rápidos son emitidos en cada fisión, otros productos son los fragmentos de fisión, rayos gamma, partículas beta y rayos gamma retardados.

Cuando se usa una fuente de neutrones de un isótopo que se fisiona espontáneamente, éste es encapsulado de manera que solo salgan rayos gamma y neutrones.

Como son varias las partículas que resultan de la fisión, los neutrones que se producen tienen un espectro complicado, como el del  $^{252}\text{Cf}$  que se muestra en la Fig. 1.5. <sup>(1)</sup>

##### b) Reacciones ( $\alpha$ , n)

Si se dispone de un radionúclido emisor de partículas alfa energéticas, es posible fabricar una fuente de neutrones. Se usa para esto un sistema en el que las partículas alfa golpeen un núcleo blanco y produzcan una reacción que suministre neutrones.

Una reacción típica es en la que el berilio se escoge como blanco:



La cual tiene un valor Q de +5.71 MeV.

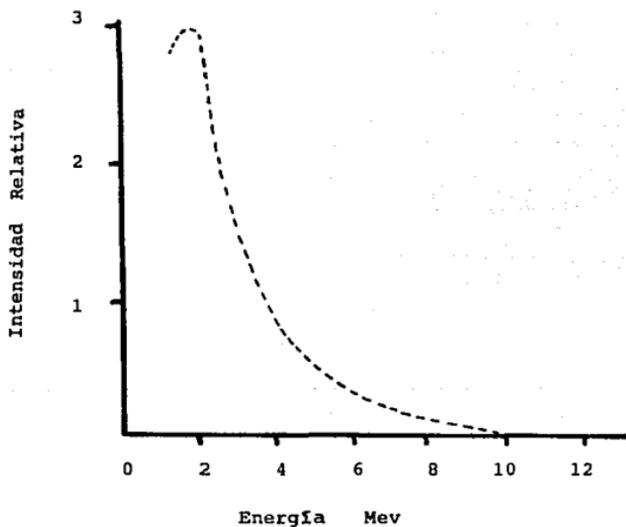
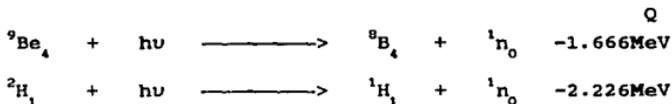


FIGURA 1.5 Espectro de neutrones producidos por la fisión del  $\text{Cf}^{252}$ .

c) Reacciones ( $\gamma, n$ ).

Algunos radioisótopos emisores de gammas pueden ser usados para producir neutrones cuando se combinan con un material adecuado que sirva de blanco a los rayos gamma.

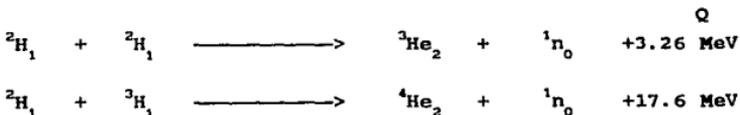
La fuente fotoneutrónica se basa en que el rayo gamma dé la suficiente energía al núcleo blanco para permitir la salida de neutrones libres. Solo dos núcleos blancos son prácticamente útiles para las fuentes fotoneutrónicas, éstos son:



Donde el valor Q es el mínimo de energía del rayo gamma que se requiere para obtener neutrones, por tanto solo gammas con alta energía producirán la reacción.

d) Reacciones con Partículas Cargadas Aceleradas.

Algunas reacciones con deuterones artificialmente acelerados pueden ser usados para producir neutrones. Las reacciones más comunes son:



Estas reacciones son ampliamente usadas en los

generadores de neutrones en los cuales los iones incidentes son acelerados entre 120 y 300 KeV y se obtienen neutrones con energías de 3 MeV para la primera reacción y 14 MeV para la segunda.

### 1.5 Neutrones.

Por carecer de carga eléctrica, los neutrones no ionizan directamente a las sustancias que atraviesan; por otra parte, al no ser desviados por los campos eléctricos de núcleos o electrones, son capaces en general de atravesar grandes espesores de materia. Un neutrón interacciona con la materia sólo cuando se acerca a muy pequeñas distancias de un núcleo, hasta el punto de poder hablarse de colisión entre ambos. El número de neutrones  $n(x)$  procedente de un haz paralelo de  $n_0$  neutrones incidentes y monoenergéticos, que han sido capaces de atravesar un espesor  $x$  de sustancia por  $\text{cm}^2$  de superficie perpendicular al haz, sin cambiar de dirección, constituida por un elemento simple, viene dado por <sup>(2)</sup>

$$n(x) = n_0 \exp (-N \sigma x) \quad (1-1)$$

donde  $N$  es el número de núcleos por  $\text{cm}^3$  de la sustancia

atravesada y  $\sigma$  es la llamada "sección eficaz" total por núcleo, que depende de dicha sustancia y de la energía de los neutrones, y viene a representar la superficie eficaz o efectiva que ofrece el núcleo para la absorción del neutrón ó su desviación de la dirección incidente. Dicha sección eficaz, sin embargo, no coincide, ni siquiera aproximadamente, con la sección geométrica del núcleo en cuestión, salvo en contadas ocasiones. La sección eficaz se suele expresar en barns, siendo

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$$

Al producto  $N \sigma = \Sigma$  o sección eficaz total, no ya de un solo núcleo, sino de un  $1 \text{ cm}^3$  de materia constituido por  $N$  átomos de núcleos idénticos, se le llama "sección eficaz macroscópica" y se expresa ordinariamente en  $\text{cm}^{-1}$ .

El número de interacciones que han tenido lugar en un espesor  $x$  de la materia en cuestión, vendrá dado por:

$$n_0 - n(x) = n_0(1 - \exp(-N\sigma x)) \quad (1-2)$$

Si se tiene que  $N\sigma x \ll 1$ , la anterior expresión puede reducirse a

$$n_0 - n(x) = n_0 N\sigma x \quad (1-3)$$

expresión adecuada para cálculos rápidos aproximados.

La anterior igualdad aproximada suele también expresarse en términos algo distintos. Llamando ahora  $n$  a la densidad de neutrones en el haz o número de ellos por  $\text{cm}^3$  y suponiendo que todos poseen la misma velocidad  $v$ , el producto  $nv$  equivale al número de neutrones que inciden por segundo sobre  $1 \text{ cm}^2$  de superficie perpendicular a  $v$ . El número de interacciones por  $\text{cm}^3$  de sustancia y por segundo será ahora

$$R = nvN\sigma = nv\Sigma \quad (1-4)$$

Definiendo el flujo neutrónico  $\phi = nv$  (neutrones/ $\text{cm}^2 \times \text{s}$ ) como el producto de la densidad neutrónica por la velocidad, resulta la sencilla expresión

$$R = \Sigma \phi \quad (1-5)$$

Dado que la probabilidad de interacción es independiente de la dirección de  $v$  y depende sólo de su módulo o valor absoluto, el flujo puede concebirse también como el número de neutrones que, desde cualquier dirección, inciden por  $\text{cm}^2$  y por segundo en una zona ocupada por la sustancia de sección eficaz macroscópica  $\Sigma$ .

Hasta ahora se han supuesto monoenergéticos a los neutrones incidentes; sin embargo, en la práctica estos pueden tener energías variables de manera continua dentro de

un intervalo más o menos amplio. Expresado entonces por

$$\phi(E) = n(E)v(E) \quad (1-6)$$

el flujo neutrónico por unidad de intervalo de energías,  $\phi(E)dE$  representará el flujo de neutrones con energías comprendidas entre  $E$  y  $E + dE$  y el flujo total, incluyendo todas las energías, será

$$\phi = \int_0^{\infty} \phi(E)dE = \int_0^{\infty} n(E)v(E)dE \quad (1-7)$$

estando la velocidad y la energía ligadas por la conocida relación

$$E = 1/2 m_n v^2 \quad (1-8)$$

y habiendo llamado  $m_n$  a la masa del neutrón.

Siendo también la sección eficaz de interacción de los neutrones con la materia función de la energía de aquéllos, el número de interacciones por centímetro cuadrado y por segundo, para una sustancia de sección eficaz macroscópica  $\Sigma(E)$ , provocadas por neutrones de cualquier energía, vendrá dado por

$$R = \int_0^{\infty} \Sigma(E)\phi(E)dE \quad (1-9)$$

Para simplificar la cuestión suele definirse una sección

eficaz macroscópica media  $\Sigma$ :

$$\Sigma = \frac{\int_0^{\infty} \Sigma(E)\phi(E)dE}{\int_0^{\infty} \phi(E)dE} \quad (1-10)$$

resultando entonces

$$R = \Sigma \phi \quad (1-11)$$

De manera parecida a como sucedía con la radiación gamma, la disminución de la intensidad de un haz de neutrones al atravesar la materia es consecuencia de diversos procesos muy distintos, cada uno de ellos con su particular sección eficaz o probabilidad de ocurrencia, siendo la sección eficaz total la suma de las secciones eficaces de los distintos procesos posibles. Dichos procesos son fundamentalmente los que se indican en las secciones 1.6 y 1.7.

#### 1.6 Dispersión Elástica e Inelástica.

a) Colisión elástica e inelástica con los núcleos.  
Cuando un neutrón choca con un núcleo sin ser absorbido por

él, es , generalmente desviado de su dirección de incidencia, teniendo lugar un fenómeno de dispersión. La colisión se llama elástica cuando se conserva la energía cinética total del neutrón y el núcleo que chocan. Por el contrario, en la colisión inelástica el núcleo queda en un estado excitado, habiendo absorbido, por consiguiente, parte de la energía cinética del neutrón incidente; esta energía no aparece después del choque como energía cinética, sino que el núcleo excitado se desprende de ella por emisión, en general, de un fotón gamma.

Para que pueda tener lugar un choque inelástico con un núcleo desexcitado, es preciso que el neutrón incidente posea energía cinética superior a la correspondiente al primer estado de excitación del núcleo. Dicha energía está comprendida entre 0.1 y 1 MeV para la mayoría de los elementos de peso medio y elevado y se hace notablemente mayor para los elementos ligeros, alcanzando a valer 6 MeV para el oxígeno y no teniendo lugar el proceso en ningún caso para el hidrógeno. Por encima del nivel mínimo citado, y en términos generales, la probabilidad de colisión inelástica aumenta con la energía de los neutrones incidentes.

La colisión elástica entre un neutrón y un núcleo sigue las leyes del choque elástico entre dos esferas, resultando

en virtud de ellas que la energía media cedida por el neutrón al núcleo con el que choca será tanto mayor cuanto más semejantes sean las masas de ambos. Por consiguiente, la máxima transferencia media de energía por colisión tendrá lugar al chocar los neutrones con núcleos de hidrógeno, los cuales se convierten entonces en los llamados protones de retroceso, adquiriendo una fracción de la energía del neutrón incidente, fracción que varía de una colisión a otra. Esta energía adquirida de los neutrones la pierden después los protones por ionización de los átomos que encuentran en su trayectoria, por lo que el fenómeno puede utilizarse para la detección de neutrones rápidos. La figura 1-6 proporciona la sección eficaz total del hidrógeno en función de la energía de los neutrones incidentes; dicha sección eficaz es principalmente debida a la dispersión elástica. A causa de este fenómeno, una capa de materia ligera rica en átomos de hidrógeno, como el agua o la parafina, es más eficaz para reducir la intensidad de un haz de neutrones rápidos que una capa de plomo del mismo espesor.

A consecuencia de los sucesivos choques, el neutrón, en el caso de no sufrir ningún otro proceso, va perdiendo energía, hasta alcanzar el equilibrio cinético con los átomos o moléculas del medio en que se encuentra; su energía

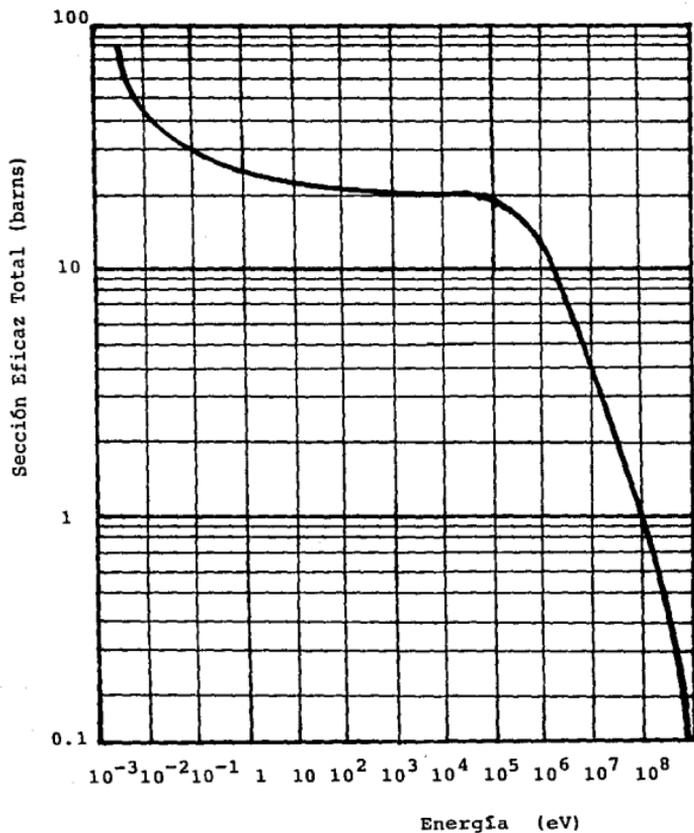


FIGURA 1.6 Sección eficaz total del hidrógeno para neutrones en función de la energía de éstos. (Tomado de D. J. Hughes: "Neutron Cross Sections", por cortesía de McGraw-Hill Book Company.)

media viene dada entonces por la expresión de Boltzmann.

$$E = \frac{3}{2} kT \quad (1-12)$$

donde k es la llamada constante de Boltzmann ( $k=1.38 \times 10^{-16}$  erg/ °K) y T la temperatura absoluta. Para una temperatura de 20 °C corresponde una energía de .025 eV y una velocidad de 2,200 m / s; a los neutrones en este estado se les llama neutrones térmicos.

En materia rica en átomos ligeros los neutrones rápidos llegan a térmicos después de un número relativamente pequeño de choques con los núcleos. Así, por ejemplo, para reducir un neutron de 1 MeV hasta la energía térmica por choques elásticos con átomos de hidrógeno bastan por término medio 17 colisiones; para obtener la misma reducción de energía en el carbono se precisarían 111 colisiones por término medio.

La siguiente ecuación nos permite calcular el número promedio de colisiones para pasar de 2 MeV a 0.025 eV.

$$\text{No. promedio de Colisiones} = \frac{\text{Ln} ( 2 * 10^6 / 0.025 )}{\xi}$$

donde:  $\xi$  = propiedad de dispersión del núcleo.

Un espesor de 20 cm de parafina, rodeando a una fuente de neutrones rápidos, basta para reducir al estado térmico a la mayor parte de los que después de atravesarlo sigan libres.

Una vez termalizado, el neutrón sigue chocando

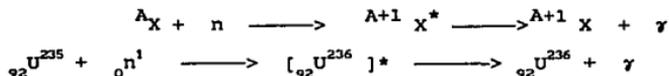
elásticamente con los núcleos que le rodean, ganando energía en unos choques y perdiéndola en otros, hasta que o se desintegra en un protón y un electrón, ya que el neutrón libre es una partícula inestable, o es capturado por uno de los núcleos con los que choca, tal fenómeno será considerado en la siguiente sección. Para un medio homogéneo conteniendo una fuente de neutrones térmicos que se difunden en él, se llama longitud de difusión a la distancia sobre la cual la densidad de neutrones ha disminuido en un factor  $e^{-1}$ . Dicha longitud de difusión será tanto mayor cuanto menor sea la probabilidad de absorción del neutrón por los núcleos del medio y vale 170 cm para el agua pesada, 51 cm para el carbono, 2.76 cm para el agua ordinaria y 2.4 cm para la parafina.<sup>(2)</sup>

### 1.7 Captura Radiactiva.

La captura radiactiva es la absorción o captura del neutrón por un núcleo de la sustancia atravesada, con emisión instantánea de un rayo gamma y formación de un isótopo del núcleo primitivo. Frecuentemente, dicho isótopo es radiactivo y se desintegrará después, en general por emisión beta, ya que la captura del neutrón habrá producido un núcleo en el que la relación entre el número de neutrones

y protones resulta excesiva para que se tenga estabilidad.

La detección de la actividad beta puede proporcionar datos sobre el flujo de neutrones que incidieron en un tiempo anterior sobre el material en cuestión. La reacción de captura radiactiva de un neutrón puede ser escrita en la forma siguiente :<sup>(3,4,5,6,7)</sup>



### 1.8 Rayos Gamma de Captura.

El análisis por activación con neutrones usando rayos gamma de captura [Prompt-gamma neutron activation analysis (PGNAA)]<sup>(3,8,9,10)</sup> se basa en la detección de rayos gamma emitidos dentro del intervalo de  $10^{-14}$  a  $10^{-12}$  s, de los núcleos excitados formados a través de la captura de un neutrón térmico. La captura de un neutrón y la emisión de la radiación gamma de la desexcitación de los núcleos compuestos, pueden ser consideradas simultaneas. Para un elemento dado, el número detectado de núcleos excitados, N ,

puede ser escrito como: <sup>(3,11,12)</sup>

$$N = N_0 \sigma \Phi \epsilon \Omega I t$$

donde

$N_0$  = Número de núcleos en el blanco

$\Phi$  = Flujo de neutrones térmicos ( $n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ )

$\sigma = \sum \sigma_i f_i$  la sección de absorción para neutrones térmicos ( $\text{cm}^2$  o barns  $\times 10^{-24}$ ) igual al valor medio de la sección transversal,  $\sigma_i$ , para los varios isótopos de la abundancia isotópica,  $f_i$ , ..

$\epsilon$  = Eficiencia del detector en energía,  $E_\gamma$ , ..

$\Omega$  = Angulo sólido

$I$  = Intensidad relativa debido a la captura del neutrón de los rayos gamma de energía,  $E_\gamma$ , medidas.

$t$  = Tiempo(s) de irradiación (y conteo).

Los elementos más comunes en el carbón se dan en la tabla I <sup>(13,14)</sup>:

TABLA I

ELEMENTOS	ABUNDANCIA	ENERGIA	( $E_\gamma$ )	en (MeV)		SECCION
MAS COMUNES	EN Carbon	CON	SUS	RESPECTIVAS ( $I_\gamma$ )		EFICAZ
EN Carbon	%	$E_{1\gamma}$	$I_\gamma$ (%)	$E_{2\gamma}$	$I_\gamma$ (%)	$\sigma$
H	168.3	2.223	100			3.32E-01
B	163.0	4.44	76	7.0	47.9	1.03E-01
C	5.2	4.945	67.6	3.68	32.1	3.37E-03
Cl	2.4	1.95	21.7	1.16	19.9	3.32E+01
S	1.74	0.841	75.6	5.42	59	5.20E-01
Si	1.18	3.54	68	4.93	62.7	1.60E-01
Al	1.07	1.78	88.2	7.72	27.4	2.30E-01
Fe	0.82	7.63	28.5	7.65	24.1	2.55E+00
Ti	0.67	1.38	69	6.418	30.13	6.10E+00
Cd	0.33	0.5586	72.7	0.651	13.9	2.45E+03
Ca	0.3	1.94	72.5	6.42	38.9	4.30E-01
K	0.3	0.77	55.5	2.07	10.75	2.10E+00
N	0.16	5.27	29.7	1.88	27.5	7.47E-02
Mn	0.029	0.026	18	7.24	12.1	1.33E+01
Na	0.028	0.047	60	6.4	22	4.00E-01
Mg	0.011	3.916	48.6	2.82	42.5	6.30E-02

Una buena estimación de la sensibilidad de detección, sugerida por Henkelman<sup>(3,12)</sup>, puede ser obtenida por consideración del parámetro S definido como  $S = I_{\max} \sigma / M$ , donde M es la masa atómica, y  $I_{\max}$  es la intensidad máxima de un rayo gamma para un elemento dado. El parámetro S es máximo para tierras raras (gadolinio, samario, disprosio), boro y cadmio y mínimo para carbón, berilio, oxígeno y nitrógeno. Las posibles ventajas del método son las siguientes:<sup>(15,16)</sup>

- 1.) La posibilidad de análisis de muestras masivas (en donde neutrones y radiaciones gamma han producido un alto poder de penetración), por lo cual su contribución en los resultados de los análisis es representativa.
- 2.) Análisis no destructivo, aplicable en condiciones de campo.
- 3.) Información analítica relativamente rápida en tiempos prácticamente cortos.

La desventaja del método podría ser que la producción analítica pueda depender significativamente de la capacidad moderadora del material, en el caso del carbón en su contenido de agua.

Los espectros de rayos-gamma medidos por captura de

neutrones son afectados por numerosos parámetros, esto se debe entender al diseñar un sistema óptimo. Los datos espectrales fueron obtenidos tomando en cuenta información acerca de los siguientes parámetros:<sup>(17,18)</sup>

- Espesor del Carbón
- Densidad de Volumen en el Carbón
- Distancia de la Fuente al Detector
- Blindaje para la Fuente de Neutrones
- Blindaje para el Detector
- Composición del Carbón
- Tipo del Detector y resolución

#### 1.9 Norma Técnica Ecológica.

La Norma Técnica Ecológica NTE-CCAT-006/88, que establece los niveles máximos permisibles de emisión a la atmósfera de partículas, monóxido de carbono, bióxido de azufre, óxidos de nitrógeno, provenientes de procesos de combustión del carbón en carboeléctricas.

Combustión: Oxidación rápida que consiste en una combinación del oxígeno con aquellos materiales o sustancias capaces de oxidarse, dando como resultado la generación de

gases, luz y calor.

Carbón: Combustible sólido cuyo contenido de carbono fijo varía desde 10% hasta 90% en peso.

Contaminantes	Niveles máximos permisibles de emisión en Kg/m <sup>3</sup> *
Partículas	3.600
Monóxido de Carbono	0.270
Bióxido de Azufre	51.300
Oxidos de Nitrógeno**	10.000

\* Kg de contaminante por cada m<sup>3</sup> de carbón consumido en base seca.

\*\* Los óxidos de nitrógeno expresados como bióxido de nitrógeno.

## CAPITULO 2

### METODO EXPERIMENTAL

#### 2.1 Detectores de centelleo

##### A) GENERALIDADES

El conteo de centelleo, una de las técnicas más antiguas de detección de radiación ha pasado por varias etapas de desarrollo a partir de los centelleos producidos por partículas alfa en películas delgadas de cristales de sulfuro de zinc, en 1903 por Sir William Crookes detectados visualmente, esta técnica pasa a ser obsoleta en los años treinta y los siguientes años se caracterizaron por el rápido desarrollo en técnicas de conteo electrónico, usando cámaras de ionización. Sin embargo, con el desarrollo de los tubos fotomultiplicadores, a partir de 1947, el contador de centelleo ha vuelto a ocupar un lugar prominente en el conteo de radiaciones.

Cuando una partícula cargada ó un rayo X ó gamma atraviezan ciertas sustancias luminiscentes, pierden energía al excitar su luminiscencia, dando lugar a la emisión de luz visible o ultravioleta. Esta luz resultante puede alcanzar el cátodo de una fotocelda suficientemente sensible,

resultando un pulso eléctrico como respuesta a la llegada de cada partícula o fotón. El conjunto constituye un detector de centelleo, la figura 2.1,<sup>(20)</sup> ilustra esquemáticamente el diagrama de bloques del detector de centelleo de NaI(Tl). Un solo cristal de ioduro de sodio con baja concentración de talio es ópticamente acoplado (i.e., con índice de refracción de 1.5) a un tubo fotomultiplicador. Típicamente el cristal mide 3 pulgadas de diámetro por 3 pulgadas de grosor.

Cuando el fotón de rayos  $\gamma$  de energía E entra al cristal, interacciona con los electrones de este último, a través del efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y producción de pares para depositar su energía en forma de ionización. Como resultado de la ionización, se forman estados excitados en el cristal. Cuando estos estados decaen, un centelleo o pulso de luz es emitido. La intensidad de centelleo es proporcional a la energía E de los rayos  $\gamma$  y decae exponencialmente con una constante de tiempo de 200 ns<sup>(21)</sup>.

Cuando esta luz incide en el fotocátodo causa la emisión de fotoelectrones. El número de fotoelectrones emitidos es proporcional a la intensidad de la luz. Cada electrón emitido por el fotocátodo es atraído al primer dínodo, produciendo a su vez la emisión de varios

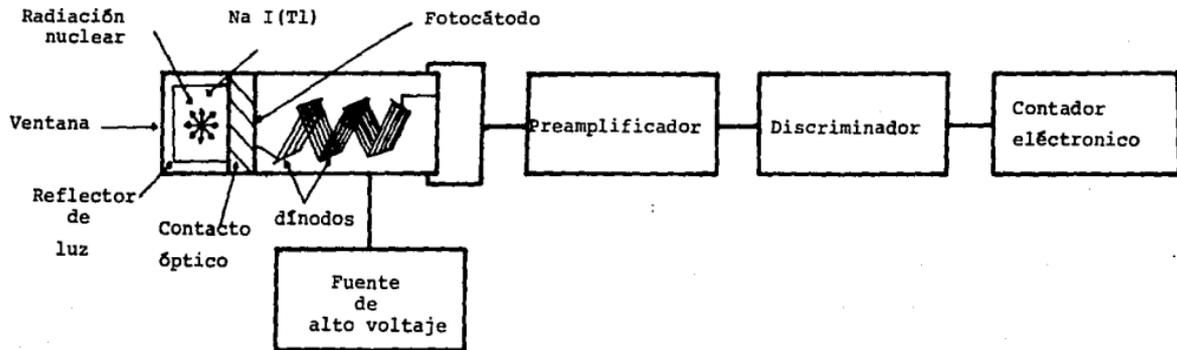


FIGURA 2.1 DIAGRAMA ESQUEMATICO DE UN DETECTOR DE CENTELLEO  
 (Price W. J.,1964; Knoll G.F.,1979)

electrones. Estos electrones secundarios son atraídos al segundo dínodo, donde el proceso de multiplicación es repetido. Como se muestra en la figura 2.1, una serie de dínodos están colocados entre el fotocátodo y el ánodo del tubo; con cada dínodo hay un aumento sucesivo de voltaje.

La corriente final que llega al ánodo es entonces una replica del pulso de corriente que entró al fotocátodo, pero es amplificado por un factor que varía entre  $10^5$  y  $10^8$ .

El detector de centelleo consta, por consiguiente, de dos partes fundamentales: la sustancia luminiscente y la fotocelda, esta es, un tubo fotomultiplicador. El conjunto se monta dentro de una envoltura opaca a la luz natural, pero a través de la cual puede penetrar la radiación a detectar.

Este dispositivo se utiliza sobre todo en la medida de la energía de radiaciones gamma, donde las cámaras de ionización y los contadores proporcionales no resultan adecuados por la poca densidad de la masa gaseosa empleada para la detección.

La resolución del detector de NaI(Tl) es pobre, debido a las ineficiencias en los procesos que convierten la energía de los rayos  $\gamma$  en una señal eléctrica. La resolución en energía  $\Gamma$ , es decir, el ancho a media altura del pico (Full Width at Half Maximum-FWHM), esta dada por:

$$\Gamma = k / \sqrt{E} \quad (k = \text{cte})$$

Esta resolución es medida por acumulación de cuentas en un pico del espectro de energía, midiendo el ancho del pico a la mitad de su máxima intensidad. Para un buen contador, K puede ser tan bajo como 2.46 en unidades de (Kev)<sup>0.5</sup>, ver fig. 2.1.1..

## B) SUSTANCIAS LUMINISCENTES

Las características de un material centellador ideal son las siguientes:

a) Debe convertir la energía cinética de la partícula cargada o radiación electromagnética, en luz detectable con alta eficiencia de centelleo.

b) La conversión debe ser lineal; esto es, la cantidad de luz emitida debe ser proporcional a la energía depositada tanto como sea posible.

c) El medio debe ser transparente a la longitud de onda de su propia emisión para una buena colección de la luz.

d) El tiempo en el que decae la luminiscencia inducida debe ser corto, para que las señales generadas sean rápidas.

e) El material debe tener buena calidad óptica y debe manufacturarse en dimensiones que lo hagan un detector práctico.

f) Su índice de refracción debe ser cercano al del vidrio (aprox. 1.5), para permitir un paso eficiente de la luz del centelleador al tubo fotomultiplicador.

Ningún material cubre todos estos criterios por lo que al escoger un centelleador para un uso particular se debe de hacer un compromiso entre todos estos factores.

Las sustancias luminiscentes comunmente empleadas en detectores de centelleo suelen ser cristales inorgánicos o bien compuestos orgánicos en forma cristalina o disoluciones de ellas; ver tabla II.1.

**TABLA II.1** Características de las principales sustancias luminiscentes empleadas en detectores de centelleo.

SUSTANCIA	D	$\lambda$	$\eta$	K	DISPOSICION
Antraceno	1.25	4.450	1	0.025	Cristales grandes no muy claros.
Naftaleno	1.15	3.450	0.25	0.075	Buenos cristales.
NaI(Tl)	3.67	4.100	2	0.25	Cristales excelentes, aunque higroscópicos.
ZnS(Ag)	4.1	4.500	2	1	Pequeños cristales de poca transparencia.
p-Terfenil xileno	0.87	3.700	0.48	0.007	Disolución líquida.

D = Densidad expresada en ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ).

$\lambda$  = Longitud de onda de máxima emisión en ( $\text{Å}^0$ ).

$\eta$  = Eficiencia relativa para rayos  $\beta$ .

K = Constante de tiempo de caída de luminiscencia ( $\mu\text{S}$ ).

Las sustancias fluorescentes inorgánicas más utilizadas en detectores de centelleo son el sulfuro de zinc activado con plata  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ , y el yoduro de sodio activado con talio  $\text{NaI}(\text{Tl})$ . La primera de ellas se utiliza generalmente para la detección de partículas cargadas pesadas. El  $\text{NaI}(\text{Tl})$  es el centellador inorgánico más usado, debido a su alta eficiencia de conversión luminosa para electrones rápidos, a su transparencia para la radiación luminosa emitida y al hecho de que más del 80% de su peso está constituido por átomos de Yodo, elemento de número atómico relativamente alto ( $Z = 53$ ) y que por consiguiente, presenta una gran sección eficaz para la interacción fotoeléctrica con la radiación gamma.

Por otro lado, los centelladores emiten en el rango del ultravioleta, pero los tubos fotomultiplicadores tienen su captación óptima más hacia el rojo en el espectro electromagnético, generalmente en el azul. La función del elemento activador en el cristal, Tl en  $\text{NaI}$ , es la de desplazar el espectro de emisión del cristal hacia el azul para que el fotomultiplicador trabaje en su región óptima.

### C) TIEMPO DE RESPUESTA

Generalmente, la radiación atraviesa al cristal de centelleo en un tiempo muy corto (del orden de  $10^{-10}$  segundos), dejando átomos o moléculas excitadas en su trayectoria, las cuales al desexcitarse emitirán fotones. Esta desexcitación no se realiza instantáneamente en todos los átomos o moléculas, y la intensidad luminosa total, emitida tras el paso de la radiación, decae exponencialmente como<sup>(21)</sup>

$$I / I_0 = f(t) \exp(-t/\tau) \quad (2.1)$$

Donde  $I_0$  es la intensidad luminosa alcanzada tras el paso de la radiación,  $I$  es la intensidad luminosa al tiempo  $t$  y  $\tau$  es la constante de tiempo, que es propiedad importante del material centellador.  $f(t)$  es una función Gaussiana caracterizada por una desviación estandar. La constante de tiempo  $\tau$  para cristales inorgánicos (i.e., NaI) es del orden de  $10^{-6}$  segundos.

### D) FOTOMULTIPLICADORES

Un tubo fotomultiplicador es en esencia, una celda

fotoeléctrica de extraordinaria sensibilidad, provista fundamentalmente de un fotocátodo que desprende electrones bajo la acción de la luz y una serie de electrodos llamados dinodos, contra los que van chocando sucesivamente los electrones desprendidos del fotocátodo, después de ser acelerados por una diferencia de potencial conveniente; todo ello encerrado en un tubo al alto vacío, ver figura 2.1.

Una característica indeseable de los fotomultiplicadores y que limita su sensibilidad la constituyen los llamados pulsos parásitos, que se producen aún estando el fotomultiplicador en completa obscuridad y aislado de toda radiación. El origen de éste fenómeno radica principalmente en la emisión de electrones del fotocátodo por efecto termoeléctrico y aumentará, por tanto, notablemente con la temperatura de dicho fotocátodo. Para reducir tales impulsos se recurre en algunas ocasiones a enfriar el fotomultiplicador con hielo seco o con aire líquido, reduciéndose el ruido en un factor de 10 al descender la temperatura de  $+10^{\circ}\text{C}$  a  $-40^{\circ}\text{C}$  y en un factor de 2000 hasta  $-150^{\circ}\text{C}$ . En todo caso se debe mantener el fotomultiplicador aislado de toda fuente de calor.

Otra contribución al ruido, es la del fondo natural del lugar donde se encuentra el detector de centelleo, aunque esta contribución es más pequeña que la de la emisión

termoeléctrica.

Como la gran mayoría de los pulsos de fondo son pequeños, en general se les elimina con un discriminador de pequeños pulsos. Por último, debe señalarse que los campos magnéticos exteriores, al desviar las trayectorias de los electrones, ejercen una influencia desfavorable en el comportamiento de los fotomultiplicadores, siendo este el fenómeno apreciable sobre todo, entre el fotocátodo y el primer dinodo.

Para contrarrestar ésto generalmente se blinda el fotomultiplicador con una capa delgada de metal- $\mu$ , que tiene alta permeabilidad magnética.

#### E) ESPECTROSCOPIA GAMMA CON DETECTORES DE CENTELLEO

Los mecanismos de interacción de radiación ionizante con el material del detector y con los materiales cercanos al detector producen la forma del espectro.

Para la radiación gamma se pueden tener tres tipos de interacciones predominantes, que son: efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y producción de pares, el efecto de todos ellos sobre el detector y sus alrededores se ejemplifica en la figura 2.2. y 2.3.

El efecto fotoeléctrico provoca el fotopico en energía  $h\nu = E_T$  y excita sobre el material de blindaje sus rayos X de fluorescencia característicos (esta excitación también se da por efecto Compton).

Al efecto Compton sobre el detector se debe la distribución Compton. Su forma se debe a que la dispersión se lleva a cabo en muchos ángulos. En el material de blindaje sucede la retrodispersión y el pico de retrodispersión aparece muy alejado del fotopico por el gran ángulo de dispersión que se necesita.

Cuando la producción de pares se produce en puntos del detector muy cercanos a alguna orilla puede suceder que uno o los dos rayos de aniquilación se escapen. Los escapes de un solo rayo de aniquilación darán el pico de escape simple en  $h\nu - m_0c^2$ , los escapes de los dos rayos de aniquilación darán el pico de escape doble en  $h\nu - 2m_0c^2$ . En la producción de pares sobre el material de blindaje, existe la probabilidad de que al escapar un rayo de aniquilación sea capturado por el detector, dándose así un pico en 0.511 MeV. La producción de pares no es viable con energías menores de 1.02 MeV, por lo que los últimos picos no se producen.

Existe la probabilidad de que dos rayos gamma lleguen

detector lo tomará como un solo rayo con energía de  $2h\nu$ , esto produce el pico suma.

En detectores con centellador "pequeño" (aprox. 1mm de espesor) la altura de la distribución Compton tiende a ser del mismo orden que la del fotopico y con gammas de  $E > 1.02$  MeV la probabilidad de escape doble es muy grande.

Con centelladores de tamaño intermedio del orden de 3.8cm X 3.8cm (3.8cm de diámetro por 3.8cm de largo), la probabilidad de efecto Compton disminuye y la del efecto fotoeléctrico aumenta; para  $E_\gamma > 1.02$  MeV, la probabilidad de escape doble disminuye, pero la de escape simple alcanza un valor apreciable.

Después, mientras las dimensiones del centellador aumentan, se ve que la probabilidad del efecto fotoeléctrico aumenta. El efecto Compton para un mismo rayo gamma tiende a darse más de una vez, hasta que el rayo gamma final se absorbe fotoeléctricamente y así convierte toda su energía en luminiscencia, cooperando con esto al fotopico. La probabilidad de escape simple o doble también tiende a cero, por tanto mientras mayor es el centellador, el espectro obtenido debe tender a ser solo el fotopico.

Pero el incremento de dimensiones del centellador, incrementa el costo y disminuye la eficiencia de colección de luz.

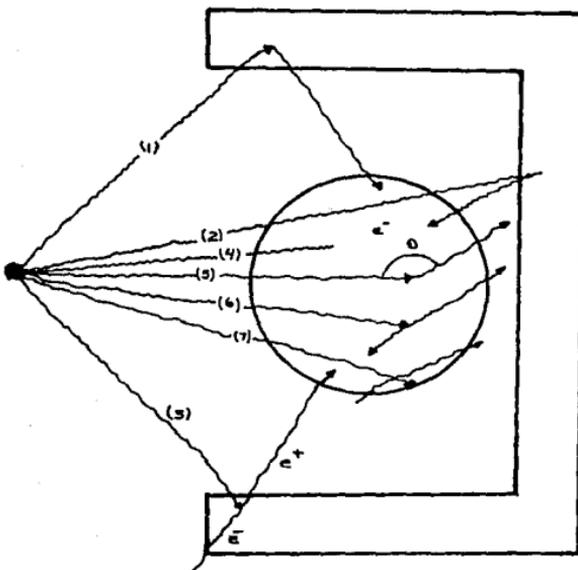


Figura 2.2 Principales tipos de interacción de los rayos gamma con el detector y sus alrededores (generalmente blindaje). Efecto en la forma del espectro por cada una de las interacciones: (1) Absorción fotoeléctrica del blindaje y emisión de rayos X característicos. (2) Retrodispersión. (3) Producción de pares en el blindaje. (4) Efecto fotoeléctrico. (5) Compton continuo. (6) Escape simple. (7) Escape doble. (8) Efecto Compton que se produce más de una vez con un mismo rayo gamma.

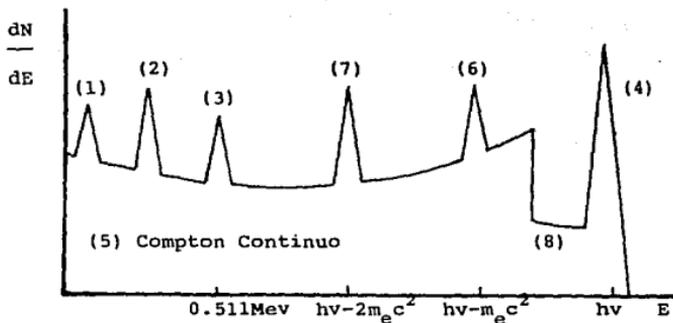


FIGURA 2.3 Gráfica de los principales tipos de interacción de los rayos gamma con el detector y sus alrededores (generalmente blindaje. Efecto en la forma del espectro por cada una de las interacciones: (1) Absorción fotoeléctrica del blindaje y emisión de rayos X característicos. (2) Retrodispersión. (3) Producción de pares en el blindaje. (4) Efecto fotoeléctrico. (5) Compton continuo. (6) Escape Simple. (7) Escape doble. (8) Efecto Compton que se produce más de una vez con un mismo rayo gamma.

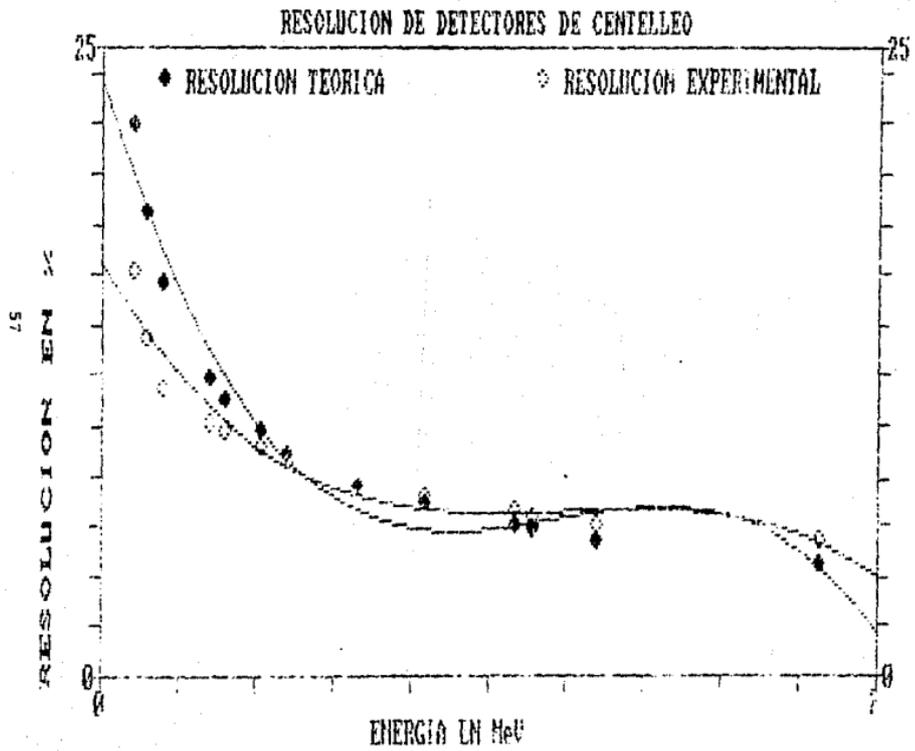


FIGURA 2.1.1. RESOLUCION DE DETECTORES DE CENTELLEO

## 2.2 Detectores de estado sólido

### A) GENERALIDADES

Una de las mayores limitaciones de los detectores de centelleo es su pobre resolución de energías. La cadena de eventos que tienen lugar en la conversión de la energía de la radiación incidente en luz y en el pulso eléctrico subsecuente, envuelve muchos pasos ineficientes, con lo que la energía requerida para producir un "acarreador de información" ( un fotoelectrón) es del orden de 1000 eV y el número de acarreadores de información creados por una radiación gamma, beta o alfa típica es de unos cuantos miles y unas decenas o centenas para rayos X.

Por esto la fluctuación estadística para detectores de centelleo resulta ser muy grande, con lo que se tiene una baja resolución. La única forma de reducir el límite de resolución dado por la fluctuación estadística, es aumentar el número de acarreadores de información por pulso. Esto se logra con el uso de materiales semiconductores en la detección de radiación.

Los detectores de diodo semiconductor, llamados comunmente de "estado sólido", dan la mejor resolución de energías hasta hoy obtenida. Los acarreadores de

información básica son los pares electrón-hueco creados en el material semiconductor a lo largo de la trayectoria de la partícula o de la radiación electromagnética.

## B) PRINCIPIOS DE OPERACION Y DISEÑO

La figura 2.4 muestra una descripción esquemática de un detector de estado sólido.

El uso de un semiconductor como detector de radiación se basa en la absorción de la radiación en el material y consecuente ionización haciendolo momentáneamente conductor. En los semiconductores, esta ionización es descrita como la creación de un par electrón-"hueco", (el hueco es un sitio en la red que lleva una carga positiva debido a la extracción de un electrón de la banda de valencia). Si se aplica un potencial eléctrico a través del cristal, el carácter semiconductor propicia una pequeña corriente.

La absorción de la radiación ionizante crea una cantidad de carga "libre", la cual idealmente es proporcional a la energía depositada por la partícula incidente. Esta carga (electrones y huecos), debido al potencial aplicado, se convierte en un pulso que forma la base de la "detección" cualitativa del evento al medirse la energía de la partícula absorbida. La proporcionalidad

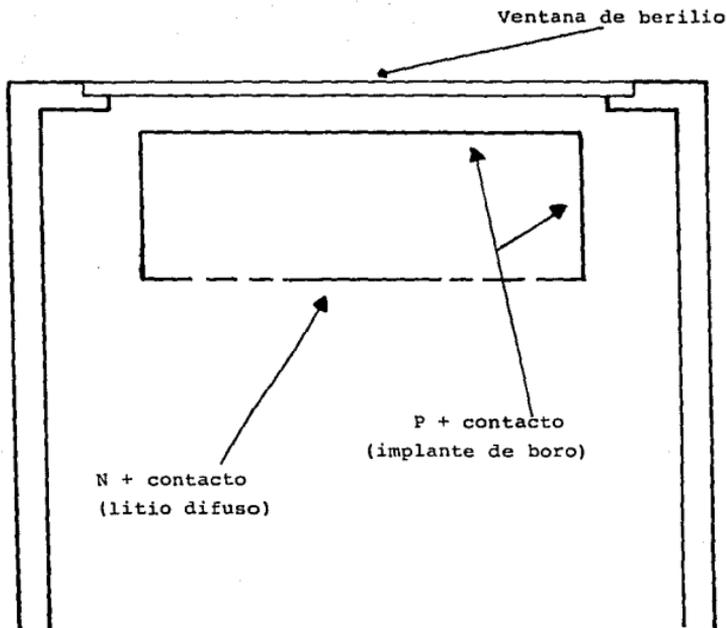


FIGURA 2.4 Descripción esquemática del detector de estado sólido.

entre la carga y la energía depositada es la clave de este tipo de análisis.

La capacidad de alta resolución del detector semiconductor descansa en la alta precisión estadística en su acción transductora, i.e., la conversión de energía a carga.

Si la energía requerida para la creación de un par electrón-hueco es pequeña (ancho de la banda prohibida  $E_g$  del cristal), se formarán un gran número de pares electrón-hueco como resultado de la energía depositada, produciendo una excelente definición estadística del "tamaño" del pulso de carga.

Sin embargo, la energía del ancho de banda  $E_g$  no debe ser muy pequeña, ya que la excitación térmica de electrones a través del ancho de banda constantemente creará pares electrón-hueco (conductividad "intrínseca").

La probabilidad por unidad de tiempo de que un par electrón-hueco sea generado térmicamente esta dado por:

$$p(T) = CT^{3/2} \exp(-E_g/2KT)$$

DONDE:

T = Temperatura absoluta.

$E_g$  = Ancho de la banda prohibida.

K = Constante de Boltzmann.

C = Constante de proporcionalidad característica del material.

Otro requerimiento importante es que el material de base debe ser muy puro; aunque su conductividad se incrementa mediante la introducción controlada de ciertos tipos de átomos como impurezas que crean portadores de carga

libre y producen una corriente de fuga. Las impurezas también crean las llamadas "trampas" teniendo la capacidad de atrapar cargas y esto causa pérdida de señal y posible polarización. Esto puede dañar la capacidad de resolución del detector causando dobles pulsos o "colas" en el espectro. Es por ésto que debe tenerse un control muy estricto en el tipo y la densidad de impurezas. Finalmente, la propiedad de absorción general del material semiconductor debe ser lo más pronunciada posible para hacer un detector eficiente. Sólo dos materiales semiconductores cumplen en la práctica con estos parámetros: Silicio y Germanio.

#### **Silicio y Germanio**

La producción de silicio y germanio de alta pureza para producir un buen semiconductor intrínseco (conductividad únicamente por excitación térmica) es muy difícil.

Cantidades relativamente pequeñas de ciertas impurezas tienen el efecto de incrementar la conductividad al punto donde las propiedades deseables son anuladas. Las impurezas pueden combinarse en la red cristalina para producir un exceso de electrones libres o huecos como portadores de carga extrínseca (conductividad por portadores de carga creadas por impurezas). El silicio de alta calidad es

generalmente de tipo p, esto significa que contiene un exceso de portadores de carga positiva (huecos). Esto puede ser remediado por la introducción de impurezas en la red cristalina, que neutralizen o compensen eficazmente las impurezas primarias. Por ejemplo, la introducción de átomos de Litio en el cristal (para ambos, Silicio y Germanio) compensarán las impurezas y crearán material intrínseco con alta resistividad. Tales detectores se denotan como Si(Li) y Ge(Li) respectivamente, para indicar que están compensados con Litio.

El enfriamiento del detector es necesario para mantener la compensación del Litio, evitar efectos de difusión, y eliminar el ruido electrónico. Los detectores son enfriados entonces constantemente a la temperatura del Nitrógeno líquido ( 77°K ).

### C) RESOLUCION DEL DETECTOR

Solo una parte de la energía depositada por una partícula es utilizada para la creación de pares electrón-hueco; otra parte de la energía es usada en otros procesos de excitación en la red cristalina, como la generación de calor. La energía de la banda prohibida del Silicio es de 1.1 eV aproximadamente, pero debido a que se

encuentran compitiendo por la energía los procesos de excitación , la energía promedio  $\epsilon$  necesaria para la creación del par electrón-hueco es del orden de 3.8 - 3.9 eV a la temperatura de operación de 77<sup>0</sup>K . En el caso del Germanio estas energías corresponden a 0.67 eV y 2.98 eV . En vista de la pequeña energía de la banda prohibida y la energía efectiva por par en el Germanio, puede suponerse que este exhibe mejor resolución que el Silicio.

La resolución en energía FWHM del detector esta definida por <sup>22</sup>

$$\text{FWHM} = 2.35 ( F \epsilon E )^{1/2} \text{ eV,}$$

donde:

E = energía en KeV

$\epsilon$  = eV/par electrón-hueco

F = factor Fano (adimensional)

Para el Silicio F esta en el intervalo de 0.10-0.13 y para el Germanio es aproximadamente 0.13.

La resolución efectiva del sistema detector no puede ser separado de los efectos de ruido electrónico. Esto involucra al amplificador como una componente muy importante.

Incorporando la contribución de ruido electrónico, la resolución total puede expresarse como:

$$\text{FWHM (eV)} = [ (\text{FWHM})_{\text{RUIDO}}^2 + ( 2.35 (\text{FeE})^{1/2} )^2 ]^{1/2}$$

#### D) EFICIENCIA DE DETECCION

Para un tipo de detector (Ge o Si), la eficiencia de detección total esta determinada por varios factores como el área y el espesor de la región activa, la "capa muerta" y el material de contacto, y la entrada de la ventana.

A bajas energías, los efectos de absorción a la entrada de la ventana de Berilio son dominantes. Los efectos adicionales en esta región son debidos al material de la capa muerta (región cerca de la superficie del detector).

Para energías altas, la eficiencia del pico de "energía máxima" es función del espesor del volumen activo.

El detector de Ge(Li) es utilizado casi exclusivamente para energías arriba de 100 KeV, y el detector de Si(Li) para energías entre 2 KeV a 60 KeV.

En 1975 el detector de Ge(Li) fué reemplazado por un mejor diseño : el detector de Germanio hiperpuro, esta construcción del detector de Germanio es producido sin la compensación del Litio y es utilizado para energías entre 3 KeV y 12 MeV. <sup>23</sup>

### 2.3 Sistema de detección.

En el sistema de detección se puede usar para la determinación de azufre en carbón y con el tipo de fuente descrita dos tipos de detectores; un detector semiconductor Ge(Hp) con ventana de berilio de 0.127mm de espesor, un diámetro activo de 16mm, un espesor activo de 10mm y resolución a 5.9 KeV de 190 eV del Fe 55 y un detector de centelleo de NaI(Tl) de 3" X 3" de 9% en el pico de 661 KeV del Cs<sup>137</sup>. Asociados a un sistema de Amplificación y "ordenamiento" de los pulsos (figura 2.5).

#### DETECTOR

En las secciones 2.1 y 2.2 se habló ampliamente sobre los tipos de detectores que se pueden usar en el experimento.

#### PREAMPLIFICADOR

La información de la radiación recibida por el detector es presentada como un pulso colectado en la terminal del detector. El primer paso del preamplificador a menudo es un paso de carga sensitiva. Su función es integrar la carga total del pulso y convertirlo a señal de voltaje que retenga la proporcionalidad de la energía depositada, para esto lo primero que se necesita hacer es conservar el bajo ruido electrónico.

#### AMPLIFICADOR

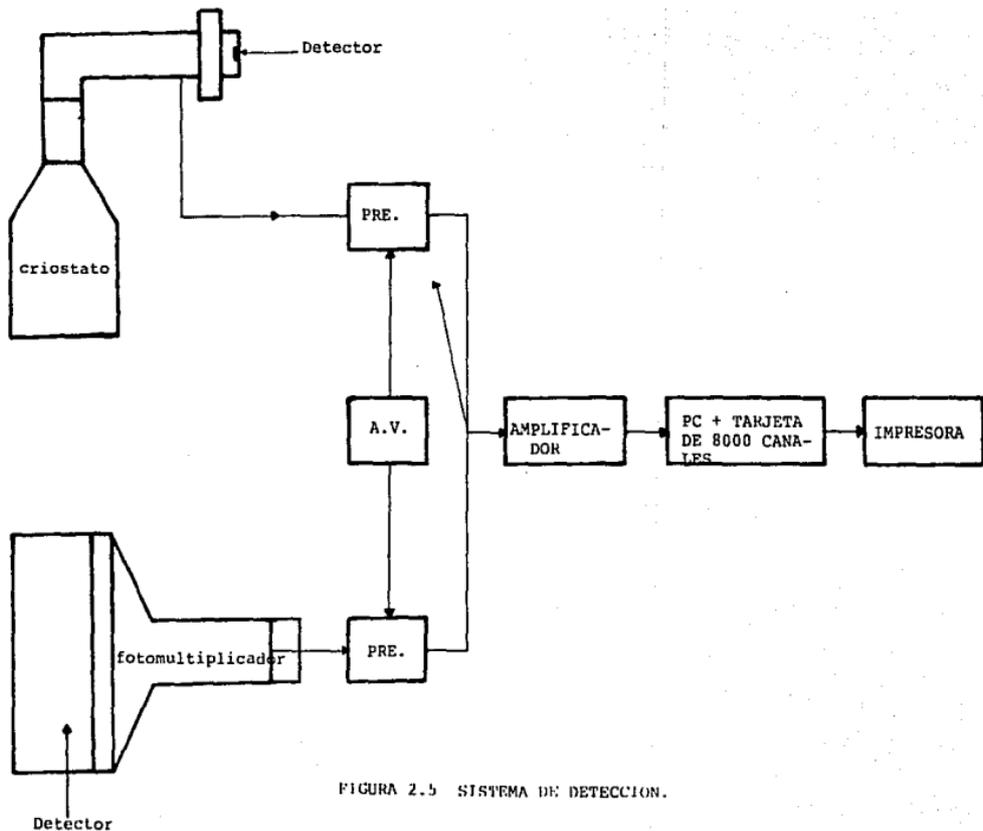


FIGURA 2.5 SISTEMA DE DETECCION.

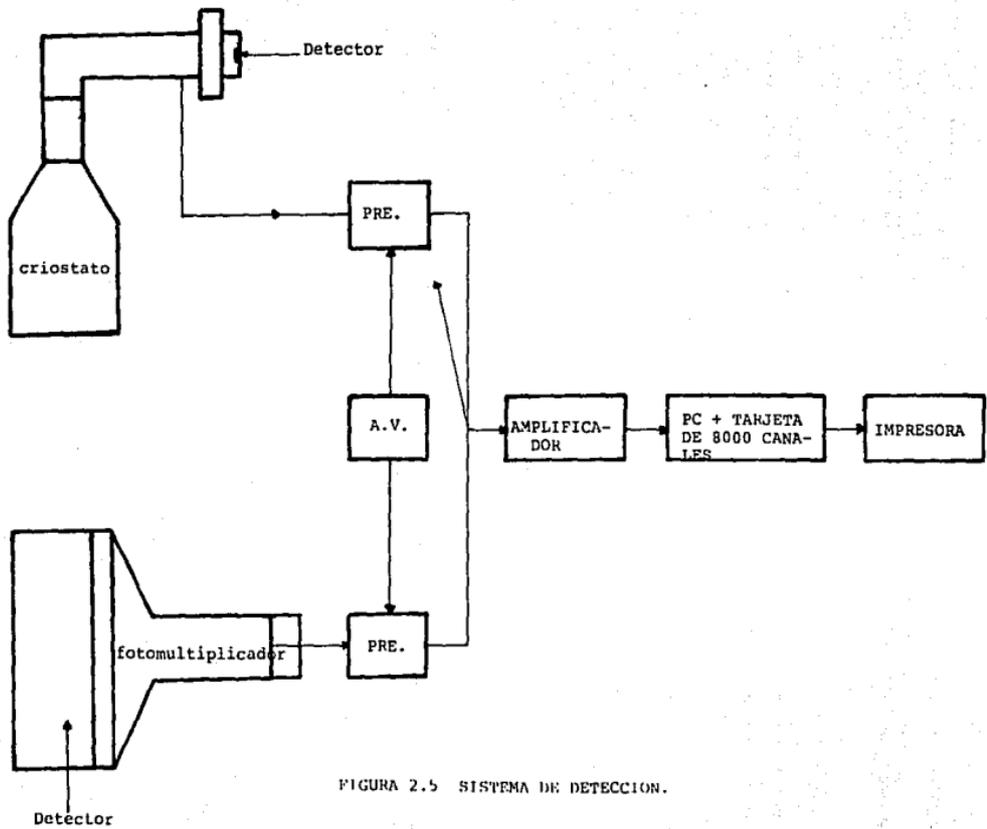


FIGURA 2.5 SISTEMA DE DETECCION.

La función fundamental del amplificador principal es amplificar las señales del preamplificador y preparar a la señal para su presentación a los varios tipos de salidas.

El primer requerimiento es que el sistema retenga todas las propiedades cuantitativas importantes de la señal y al mismo tiempo posea un óptimo funcionamiento en términos de especificidad, sensibilidad y límite de detección. Estas características de funcionamiento están íntimamente conectadas a la resolución y razón de información del sistema. Con respecto a la resolución, el amplificador principal debe buscar optimizar la relación señal-ruido.

#### *ANALIZADOR MULTICANAL*

La efectiva utilización de la capacidad de los detectores de estado sólido y centelleo para analizar un espectro es plenamente realizada solo por medio de la función de un analizador multicanal.

Fundamentalmente el analizador multicanal (en este caso una PC la cual tiene integrada una tarjeta THE NUCLEUS que la hace comportarse como multicanal de 8000 canales) ejecuta una función de la variación de la amplitud de pulso de los pulsos presentados desde el sistema y además almacena y cuenta el número de pulsos que caen dentro de ventanas discretas de amplitudes de pulso sobre un intervalo de amplitudes de pulso. El almacenaje y conteo de los datos

tiene lugar en la memoria del analizador multicanal.

Una vez que el rayo  $\gamma$  incide en el cristal del detector, genera un pulso el cual es procesado a través de los componentes funcionales del sistema de detección.

#### 2.4 Calibración del Sistema de Detección

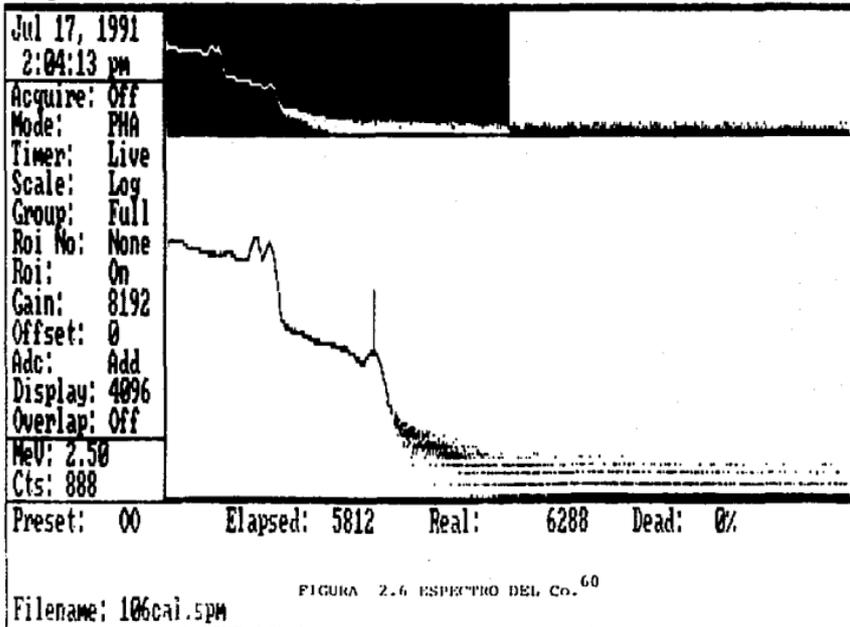
Antes de utilizar cualquier equipo es necesario efectuar las conexiones necesarias y calibrarlo, es decir, "estandarizarlo".

En el caso del Espectrómetro de rayos  $\gamma$  de captura la parte fundamental del aparato es el detector, por tanto para efectuar su calibración se obtiene el espectro de la fuente de  $\text{Co}^{60}$  la cual contiene dos picos y la suma de esos dos picos, con una energía de 1.173, 1,333 y 2.5 MeV respectivamente, así pues relacionando el número de canal y el número de cuentas en ese canal con la energía de los fotopicos del  $\text{Co}^{60}$  se calibra el aparato de acuerdo al programa " The Nucleus ", quedando así perfectamente calibrado nuestro sistema de detección. En la figura 2.6 se muestra el espectro de calibración del  $\text{Co}^{60}$ .

(Alt) Help File Calc Setup Options Mode Quit

258K

Acquire Start Time: 2:14:28 pm Jun 10, 1991



Preset: 00 Elapsed: 5812 Real: 6288 Dead: 0%

FIGURA 2.6 ESPECTRO DEL CO.<sup>60</sup>

Filename: 106cal.5pm

F1-Acquire F2-Frase F3-Preset F4-Expand F5-Ident F6-Load F7-Save Esc-ROI

## 2.5 Análisis Vía Húmeda

Para corroborar y comparar los datos obtenidos del porcentaje de azufre en carbón se llevaron a cabo una serie de análisis en el laboratorio de Química Analítica.

La primera fase de la experimentación consistió en realizar varias pruebas con distintas sustancias químicas que al reaccionar con el azufre presentaban ciertas características, las cuales, nos iban a dar la pauta para saber como venía el azufre dentro del carbón. Se encontró que casi en su totalidad venía en forma de sulfatos; ya con esta información se procedió a buscar un método adecuado y eficiente. El método elegido fue el de Valoración Conductimétrica.

La segunda fase consistió en poner en marcha este método, para ello se tuvieron que preparar las siguientes soluciones, Cloruro de Bario ( $BaCl_2$ ) con una concentración de 0.01 M y preparación de eluyente el cual se obtuvo pesando 10g de muestra de carbón y metiéndola a una columna para hacerle pasar 25ml de agua caliente y así poder tomar 10ml de solución muestra.

### Técnica del método

Se toma 10 ml del eluyente y se le agrega agua destilada hasta la mitad de la celda y se valora con la

solución de  $\text{BaCl}_2$  de 0.5ml en 0.5ml hasta un volumen de 20ml. Después hacer una tabulación con las lecturas de la conductividad que corresponden a los volúmenes agregados.

Tercera fase y última; Los datos obtenidos se meten a un programa de Lotus para graficar Conductividad contra Volumen y de ahí se obtiene el volumen a la equivalencia (volumen en el cual se registra un cambio de pendiente) con este dato podemos realizar los cálculos adecuados para la obtención del porcentaje de azufre. Ver tabla 1 que se encuentra en la sección de resultados.

## 2.6 Arreglo Experimental.

Dos consideraciones fueron de ayuda en la planeación del experimento:

Diseño flexible; la geometría fuente-muestra-detector fué diseñada sobre la base de distintas consideraciones experimentales. Se variaron ángulos de inclinación de las fuentes y distancias entre la fuente y la muestra y entre ésta y el detector. Escogiéndose una geometría de transmisión de  $180^\circ$  debido a que es la que presenta la mejor relación señal a ruido.

Una vez encontrada la geometría, en la que la

eficiencia de conteo, así como la razón fondo/intensidad del elemento era mejor, se procedió a elegir el blindaje y la manera como se iban a procesar los datos.

La Elección del blindaje y el procesamiento de datos tienen gran importancia, al igual que el diseño flexible, en el arreglo de un sistema en línea. La elección de detectores y fuentes es también importante; pero en nuestro caso ya se cuenta con ese equipo. Por ejemplo, los materiales que se usaron en el blindaje fueron eficientes, baratos y fáciles de conseguir.

Con esta filosofía de diseño no es muy difícil extrapolar del dato medido en el experimento presente y predecir los parámetros de diseño en un sistema prototipo.

El espectrómetro de rayos  $\gamma$  de captura consta de un detector de centelleo de 3 pulgadas X 3 pulgadas y un detector de Germanio hiperpuro conectados a un sistema analizador multicanal ORTEC, muestras estándar de carbón, una fuente de neutrones.

En la figura 2.7 se muestra esquemáticamente el sistema para el carbón.

La fuente de neutrones es una fuente convencional de  $\text{Am}^{241}/\text{Be}$  de 5 Curies de Americio (emisión integral del neutrón:  $1.25 \times 10^7$  neutrones/segundo) con un intervalo de energías de neutrón de 0 a 12 MeV.

Esta fuente fué blindada con parafina, como un reflector de neutrones y como blindaje biológico. Además para eliminar los rayos  $\gamma$  de 60 KeV provenientes de la fuente se utilizó un filtro de bismuto de 3mm de espesor.

Los detectores fueron blindados de los neutrones con un filtro de boro + yeso + polietileno, para evitar problemas de activación.

Las muestras estandar consisten de 15 Kg de carbón que se presentan en contenedores cilíndricos de polietileno de 20 l de volumen que a su vez se encuentra dentro de un contenedor cilíndrico de 100 l de volumen. Esto hace posible:

- El fácil manejo de las muestras masivas.
- La conservación de un volumen definido de la muestra.
- El mantenimiento de la geometría de irradiación de la muestra.

Las muestras de carbón fueron rodeadas de agua como moderador (compuesto rico en hidrógeno para evitar una pérdida excesiva de neutrones vía captura y reducir el fondo gamma) y reflector de neutrones, sirviendo también como blindaje biológico.

Se utilizó parafina como muestra estandar, libre de azufre ("muestra limpia").

Es conveniente mencionar que el sistema total se colocó

sobre una base especial de madera, para evitar contribuciones indeseables en los espectros medidos.

La matriz de las muestras de carbón no producen contribuciones significantes de interferencia cuando se usa un detector con buena resolución (detector de Germanio hiperpuro), por consiguiente, la interpretación del espectro no es complicado.

Las líneas analíticas principales para medición (elegidas por ser las más intensas), del elemento azufre son las siguientes:

Energía (MeV)	Sección eficaz (mbarns)	Intensidad (%)
5.42	520	59.08
3.2	520	27.09
2.38	520	44.50
0.841	520	75.55

Especial atención fue dada a la estructura de los materiales y sus dimensiones usados en el sistema para prevenir interferencias con la respuesta de los constituyentes del carbón.

Conjugando así todo el equipo experimental, las muestras y la fuente ya mencionados queda finalmente integrado de la forma en que se presenta en la fig. 2.8 .

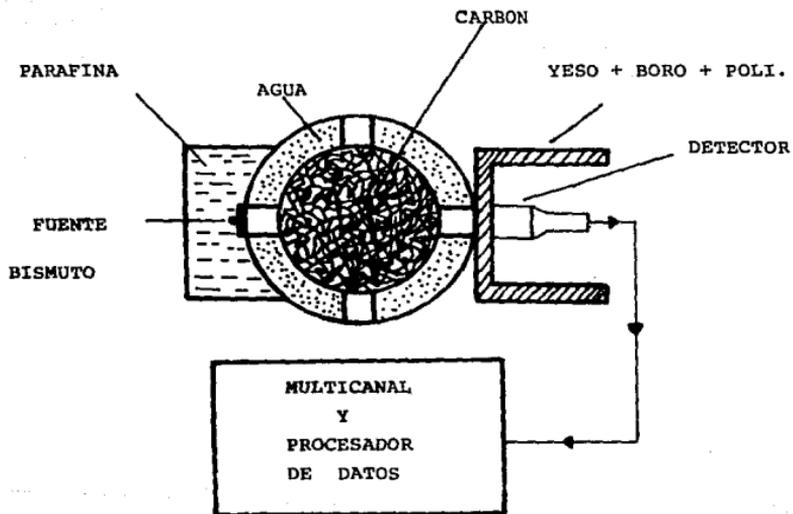


FIGURA 2.7 SISTEMA PARA EL CARBON.

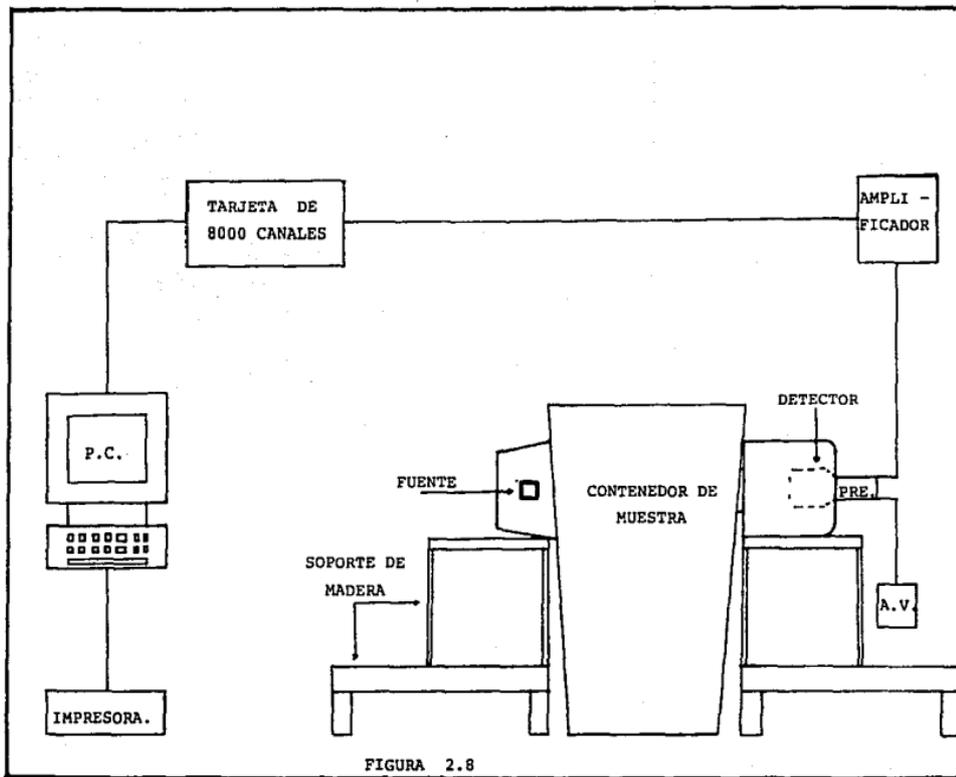
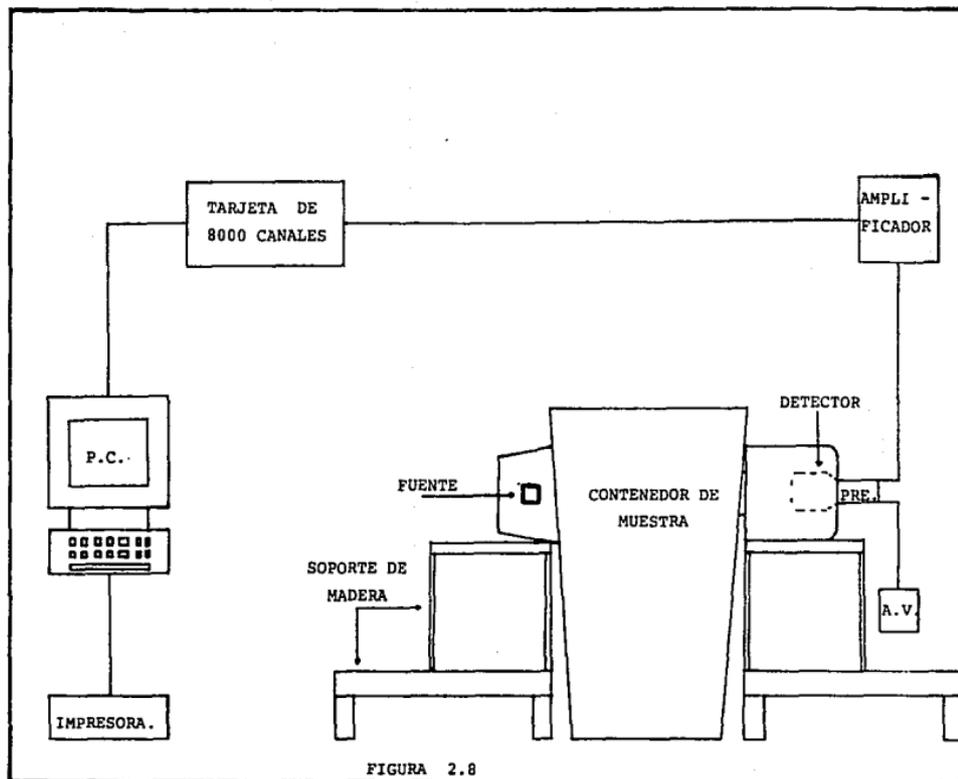


FIGURA 2.8



RESULTADOS EXPERIMENTALES

**3.1 BLINDAJE DEL DETECTOR**

Dos razones para blindar el detector en un sistema PGNAA son las siguientes:

1era.) Proteger al detector de los neutrones escapados de la fuente de Am/Be que se encuentra frente al contenedor de carbón y en línea con el detector. Los neutrones pueden producir una captura de rayos gamma no deseados, una reacción de dispersión inelástica en el detector, activación del detector y eventualmente daño por radiación.

2da) Reducir la tasa de conteo de rayos gamma continuos esparcidos a baja energía junto al carbón y circundante a él.

El detector recibe una gran cantidad de neutrones térmicos que eventualmente van a activar al  $I_2$  y tenemos una fuente dentro del detector mismo, esta fuente tiene una vida media de 28 minutos. por lo que es necesario colocarle un filtro al detector que permita el paso de rayos gamma y que detenga al mayor número posible de neutrones esto se logró haciendo varias medidas hasta llegar a un filtro de 5cm de espesor hecho de 3 partes de yeso 1 parte de cápsulas de

polietileno y 10% del peso en Boro (ácido bórico) evitando de esta forma la activación del Iodo en el detector.

Debido a la gran sección transversal de captura de neutrones que tiene el Boro y la disponibilidad de los materiales se logró un blindaje eficaz y fácil de construir. El blindaje fué de forma cilíndrica el cual es adecuado pues puede embonar alrededor del contenedor en el que se encuentra el detector. Este contenedor esta hecho de plomo el cual permite que los rayos gamma no se dispersen.

A pesar de que tiene una naturaleza altamente efectiva el ácido bórico como un veneno de neutrones (sección transversal de neutrón térmico de 3849 barns), produce una radiación gamma de 0.48 Mev para cada neutrón absorbido y de este modo superpone cuentas parásitas en la porción de baja energía del espectro. Esto se podría evitar por un lado, adicionando Litio natural a materiales hidrogenados ya que podrían absorber neutrones térmicos sin ninguna emisión gamma; aunque sustituyendo el litio por boro provee un blindaje menos eficiente debido a la menor sección transversal de absorción de neutrones térmicos.

### 3.2 BLINDAJE DE LA FUENTE

Otra consideración de optimizar en el sistema es si se

usa un blindaje de alto número atómico (Z) alrededor de la fuente de neutrones de Am/Be, y si es así, de que material y de que espesor.

Las fuentes de neutrones en general también producen una cantidad de rayos gamma, por ejemplo el Cf<sup>252</sup> produce 10<sup>3</sup> veces más gammas que neutrones, el Am/Be produce no solamente los rayos propios del Americio sino también los rayos gamma de las reacciones del carbón así que el detector estará viendo directamente a una fuente de alta intensidad de rayos gamma mientras estamos tratando de medir radiación gamma producida por los elementos del carbón de baja intensidad. Aunque estos rayos gamma relativamente a baja energía no contribuyen a fondo en la región de interés de 2 a 8 MeV para el carbón, ellos contribuyen significativamente a la tasa de conteo total y al tiempo muerto.

Es necesario blindar a esta radiación  $\gamma$ , esto se logra colocando una placa de Bismuto de 3mm de espesor, en esta forma detenemos los rayos X emitidos por la fuente de neutrones y tenemos poca producción de rayos  $\gamma$  de captura por el Bismuto ya que este sólo tiene 3 picos muy cercanos y de baja sección eficaz mientras que el plomo tiene una gran cantidad de picos distribuidos en un amplio rango y de mayor sección eficaz. Además la fuente de Am/Be fue blindada con parafina, como un reflector de neutrones y como blindaje biológico.

### **3.3 DISTANCIA ENTRE FUENTE-MUESTRA-DETECTOR.**

Un parámetro de interés cuando optimizamos un sistema PGNAA es el efecto de cambiar la distancia entre la fuente de neutrones de Am/Be, la muestra de carbón y el detector de rayos  $\gamma$ . Esto determina el punto efectivo de origen de los rayos gamma de captura y la dependencia con la distancia. Esta información es necesaria para conocer cuando estimar la atenuación de diferentes energías de los rayos  $\gamma$  y cuando comparar datos obtenidos a varias distancias de la fuente-muestra-detector. También provee datos en los cambios esperados de la señal si la distancia de la fuente-muestra-detector es cambiado a causa de algunas restricciones mecánicas.

El arreglo de la fuente-muestra-detector fue manipulado junto con los blindajes ya hechos de tal manera que nos permitiera tener una geometría fija y estable para evitar alteraciones en las lecturas obtenidas. Esto también permitió disminuir el ruido a niveles muy bajos y nos dió la seguridad biológica que necesitamos.

### **3.4 CALIBRACION DEL ESPECTROMETRO Y MEDIDAS DE FONDO.**

Para observar el comportamiento del sistema instalado en el laboratorio antes de realizar las pruebas finales se siguió una secuencia que a continuación se describe.

1.-)Se obtuvo un espectro de Calibración esto se menciona detalladamente en el inciso 2.4.

2.-)Obtuvimos el espectro de fondo con agua, ver fig. 3.1

3.-)También se obtuvo el espectro de fondo con carbón, ver fig. 3.2.

4.-)Finalmente el espectro de la fuente en agua, ver fig. 3.3.

### 3.5 MUESTRAS

Se prepararon cinco muestras a partir de tres tipos de carbón, el coque grado metalúrgico, el coque imperial y el coque americano; después se trituraron a un tamaño uniforme de dos pulgadas y analizados cuidadosamente por la técnica de Valoración Conductimétrica en el laboratorio de Química Analítica de la Facultad de Química.

Los resultados de porcentaje de azufre en las 5 muestras determinados por activación de los rayos gamma se compararon con los resultados obtenidos del análisis químico, ver tabla 3.1.

Los datos presentados en la tabla 3.1 por el método de determinación de S en Carbón por rayos gamma de captura fueron obtenidos al procesar las lecturas de conteo en un programa LOTUS a continuación se presentan estos valores en la tabla 3.2 y la ecuación utilizada.

TABLA 3.1

No. de muestra	‡ de S (1)	‡ de S (2)
1	4.97 ± 0.25	5.29 ± 0.26
2	5.21 ± 0.26	4.97 ± 0.25
3	4.63 ± 0.23	4.89 ± 0.24
4	5.58 ± 0.28	5.85 ± 0.29
5	2.94 ± 0.15	2.62 ± 0.13

(1) Técnica de Valoración Conductimétrica

(2) Activación de los Rayos Gamma.

TABLA 3.2

Picos de Energía del S en Mev.	0.84	2.38	3.2	5.42
--------------------------------	------	------	-----	------

No. de Muestra	A	B	C	D	E
	CUENTAS NETAS A DIFERENTES PICOS DE E. (Mev)				
1	322260	105938	587357	61583.262	
2	444113	140340	796923	68980.262	
3	438559	140904	814466	73990.262	
4	449667	110358	942345	66850.262	
5	437492	125914	872662	66936.262	

Ecuación obtenida en LOTUS

$$\ddagger S = -152.853 + 0.000738B - 0.00003C + 0.00024D - 0.0068E$$

### Datos Finales

No. de muestra	% de S
1	5.29 $\pm$ 0.26
2	4.97 $\pm$ 0.25
3	4.89 $\pm$ 0.24
4	5.85 $\pm$ 0.29
5	2.62 $\pm$ 0.13

Se anexa el espectro de una muestra nada más, para evitar un papeleo excesivo, ver fig 3.4.

### 3.6 REPRODUCIBILIDAD

A una muestra de carbón se le tomaron varias lecturas en un tiempo de 3071 seg para observar el comportamiento que presentaba. Llegándose a la conclusión de que el método es reproducible, ver tabla 3.3.

TABLA 3.3

No. de lecturas tomadas	Cuentas Netas
1	68980 $\pm$ 262
2	69150 $\pm$ 263
3	69199 $\pm$ 263
4	68730 $\pm$ 262

(Alt) Help File Calc Setup Options Mode Quit

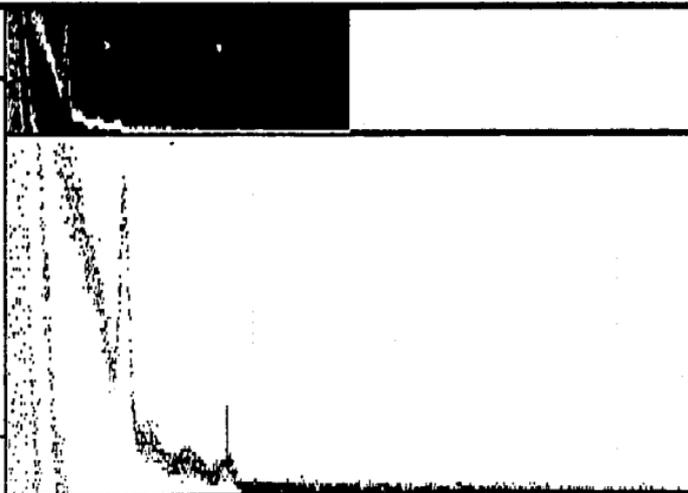
258K

Acquire Start Time: 2:46:29 pm Jun 10, 1991

Jul 17, 1991  
2:08:56 pm

Acquire: Off  
Mode: PHA  
Timer: Live  
Scale: 256  
Group: Full  
Roi No: None  
Roi: On  
Gain: 8192  
Offset: 0  
Ade: Add  
Display: 4096  
Overlap: Off

MeV: 2.65  
Cts: 20



Preset: 00 Elapsed: 9305 Real: 9312 Dead: 0%

Figure 3.1

Filename: i06fondo.spm

F1-Acquire F2-Erase F3-Preset F4-Expand F5-Ident F6-Load F7-Save Esc-R01

(Alt) Help File Calc Setup Options Mode Quit

258K

Acquire Start Time: 1:46:41 pm Jun 12, 1991

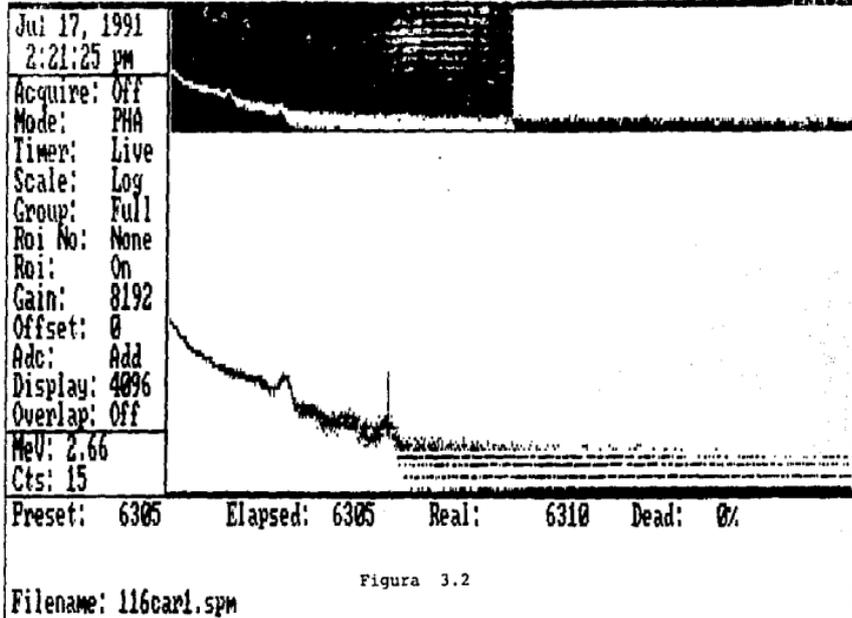


Figura 3.2

Filename: 116car1.spm

F1-Acquire F2-Erase F3-Preset F4-Expand F5-Ident F6-Load F7-Save Esc-ROI

Acquire Start Time: 12:29:30 pm Jun 12, 1991

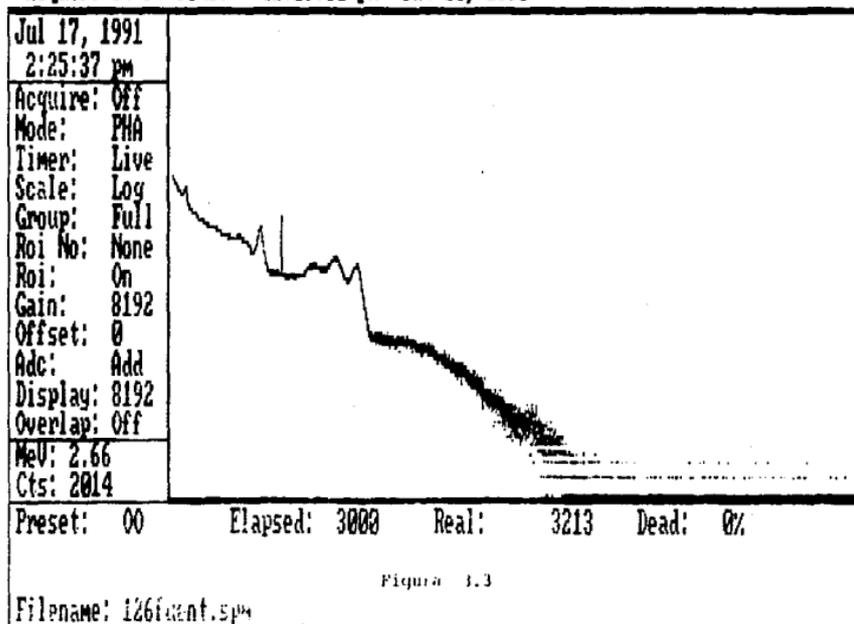


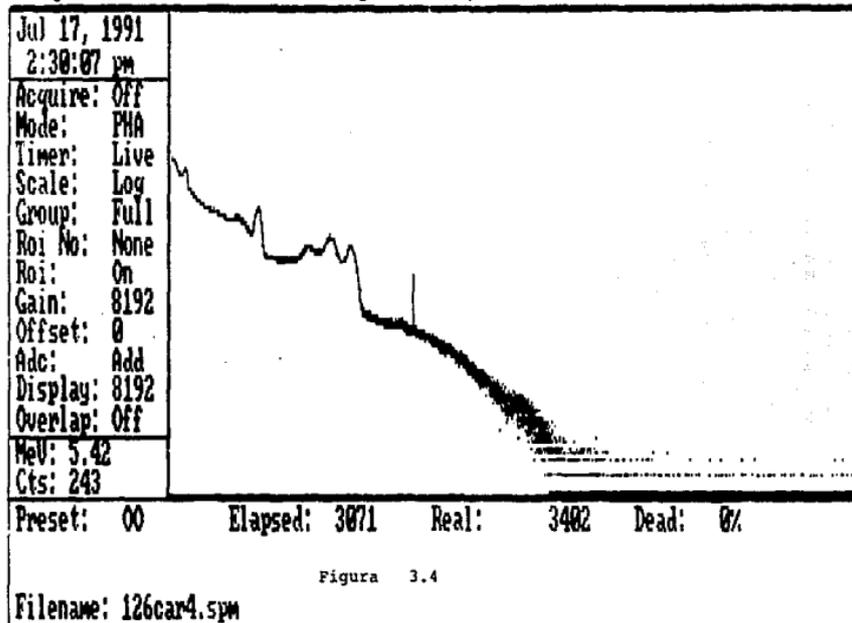
Figure 1.3

F1-Acquire F2-Erase F3-Preset F4-Expand F5-Ident F6-Load F7-Save Esc-ROI

(Alt) Help File Calc Setup Options Mode Quit

268K

Acquire Start Time: 3:30:20 pm Jun 12, 1991



Preset: 00 Elapsed: 3071 Real: 3402 Dead: 0%

Figura 3.4

Filename: 126car4.spm

F1-Acquire F2-Erase F3-Preset F4-Expand F5-Ident F6-Load F7-Save Esc-ROI

88

### 3.7 VARIACION DEL TIEMPO

Se varió el tiempo de conteo en una muestra estos datos se presentan en la tabla 3.4 y la curva específica se ve en la figura 3.5.

TABLA 3.4

Tiempo (seg)	Cuentas Netas
60	1441 ± 38
300	6814 ± 83
600	13457 ± 116
900	20536 ± 143
1200	27013 ± 164

### 3.8 CURVA DE CALIBRACION DEL AZUFRE.

Se agregaron porcentajes conocidos de S en una muestra de carbón y se obtuvieron los espectros correspondientes, así mismo, obtuvimos las cuentas netas totales en cuatro de los picos de energía más importantes del azufre estos datos se presentan en la tabla 3.5.

Después se obtuvo la ecuación característica que engloba el comportamiento de estos datos por medio del paquete LOTUS. Ecuación característica:

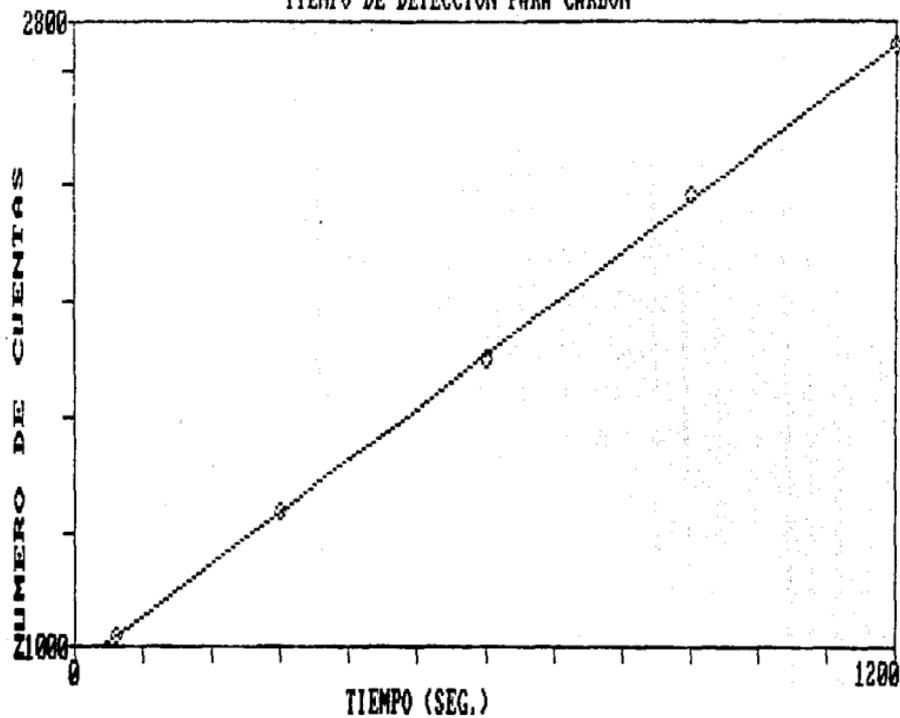
$$\% S = 0.000738B - 0.0003C + 0.000204D - 0.00068E$$

Teniendo esta ecuación se calculó los porcentajes de S experimentales y siguiendo con el paquete LOTUS, usando mínimos cuadrados, se ajustó una curva de datos experimentales contra datos calculados de porcentaje de azufre en dicha muestra, ver fig. 3.6.

TABLA 3.5

% de S exp.	B	C	D	E	% de S calc
	0.84	2.38	3.20	5.42	
1	169600	514032	305205	25376	1.89698
2	173801	592603	309712	26057	3.09653
3	174200	601170	318828	27243	4.18717
4	175800	611230	318535	27095	5.10704
5	177500	612555	320761	28380	5.902194
6	179314	615212	324900	29794	7.078052
7	181321	616412	325066	30233	8.224562

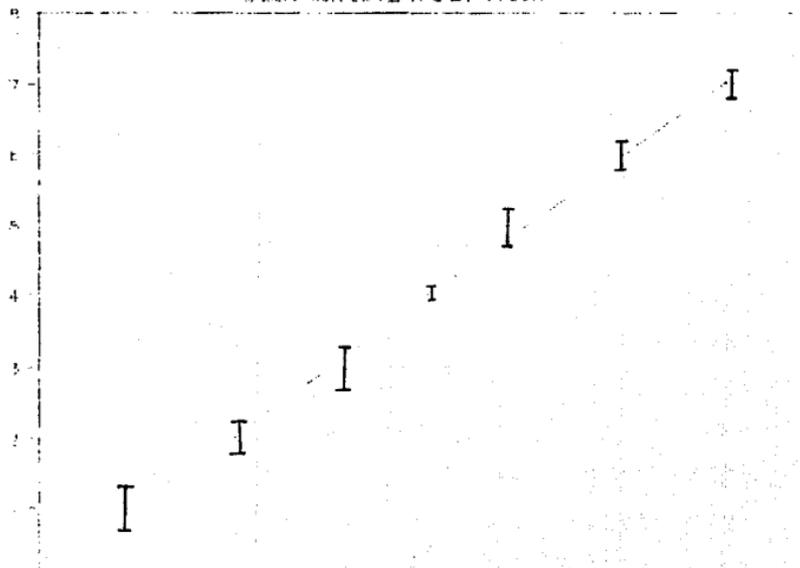
# TIEMPO DE DETECCION PARA CARBON



VALORES EXPERIMENTALES

# VALOR EXPERIMENTAL CONTRA VALOR TEORICO

SALEACION DE AZUFRE EN CARBON



## CAPITULO 4

### IV CONCLUSIONES.

En el presente trabajo se logró determinar el porcentaje de azufre en carbón por el método de rayos  $\gamma$  de captura. Las muestras analizadas fueron prestadas por la industria privada, la sección de Ingeniería Metalúrgica, y el laboratorio de Química Nuclear.

Se concluye que este método ofrece varias características con gran potencial para su explotación principalmente en áreas donde se requiera procesar grandes cantidades de material en movimiento y obtener resultados en corto tiempo. Esto no quiere decir que solo sea útil en esas condiciones, ya que también se puede aplicar en áreas como la industria, la medicina, la minería, etc.

En la parte experimental de este trabajo nos encontramos con las siguientes limitaciones:

--En el laboratorio sólo se cuenta con una fuente de Am-Be de 5 Ci. y no con la fuente de neutrones de Cf<sup>252</sup> que en este método sería la óptima.

--Todo el equipo que se utilizó se destina a realizar distintos experimentos, por lo tanto, se encuentran problemas de calibración, disminuye la sensibilidad y no se

encuentra fijo para este método en especial.

--No se cuenta con una electrónica rápida y no es posible aumentar las cuentas y disminuir el tiempo de detección.

En este trabajo se pretendió demostrar el método, aunque no se logró un prototipo industrial.

A continuación se enumeran algunas de las ventajas y desventajas del método:

#### Ventajas:

- Posibilidad de análisis de muestras másivas
- Requiere de tiempos cortos (decenas de segundos)
- Es versátil, reproducible y no "destructivo"
- Bajos costos y se puede automatizar.
- Puede determinarse simultáneamente en la muestra distintos elementos, peso , densidad, humedad, etc.

#### Desventajas

- Es una técnica muy sofisticada y no detecta trazas.
- Requiere en muestras sólidas tamaños específicos de partículas (5 cm).

Las aplicaciones que este trabajo pueda tener son claras, ya que el Espectrómetro de rayos  $\gamma$  conectado en línea a una computadora se convierte en un equipo rápido y eficiente.

## 5.- BIBLIOGRAFIA.

- 1.- Humberto Arriola S., Juan Manuel Bravo S.,: Curso de Instrumentación Nuclear. Facultad de Química, División de Estudios de Posgrado, Departamento de Ciencias Nucleares. México 1983.
- 2.- Agustín Tanarro Sanz: Instrumentación Nuclear. Servicios de Publicaciones de la Junta de Energía Nuclear. Madrid, 1970.
- 3.- D. Trubert, J.Ch. Abbé, J.M. Paulus, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, Vol. 134 No.2 (1989). Prompt-Gamma neutron activation analysis using an isotopic neutron source.
- 4.- R.E. Chrien, Practical Uses of Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy, in "Neutron Radiative Capture", Pergamon Press, 1984.

- 5.- N.M. Spyrou Kusminarto, G.E. Nicolau, 2-D Reconstruction of elemental distribution within a sample using neutron capture prompt gamma rays. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 112 No.1 Mayo 1987.
- 6.- S.A. Kerr, R.A. Oliver, P. Vittoz, G. Vivier, F. Hoyer, T.D. MacMahon, N.I. Ward, Elemental concentrations in geochemical reference samples by neutron capture-prompt gamma-ray spectroscopy. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 113, No.1. June 1987.
- 7.- Z. Janout, J. Konicek, S. Pospisil, M. Vobecky, R. Drahonovsky, Fast non-destructive determination of iron and sulphur in coal by means of neutron radiative capture, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; letters 136/6/ July 1987.
- 8.- M.C. Underwood, J.S. Petler, High resolution prompt (n, $\gamma$ ) spectroscopy using a down hole logging tool, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 115 No.2 1987.

- 9.- Chien Chung and Tzu-Cheng Tseng, In situ prompt gamma-ray activation analysis of water pollutants using a shallow  $^{252}\text{Cf}$ -HpGe probe, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research (section A), Vol. A267 No.1 - April 15, 1988.
- 10.- Planetary gamma-ray spectroscopy, a special form of prompt charged particle and prompt neutron activation analysis. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 112 No.1 Mayo 1987.
- 11.- J.E. Harrison, K.G. Mc Neill, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 71 1982.
- 12.- R. Henkelman, H. J. Born, J., Radioanalytical Chemistry, Vol. 16 1973 página 473.
- 13.- Comunicación personal de H. Arriola.
- 14.- " Detección de elementos pesados en Carbón y Petróleos por rayos gamma de captura" . H. Arriola, H. Adriano. XXVI Congreso Mexicano de Química Pura y Aplicada, Monterrey Nvo. León Septiembre 1990.

- 15.- M. Vobecky, Z. Janout, J. Konicek, S. Pospisil, Fast non-destructive determination of silicon in coal by means of  $/n,n'\gamma/$  and  $/n,\gamma/$  processes. Journal Radioanalytical and Nuclear Chemistry, letters 136/6.
- 16.- A.M. Demidov, L.I. Govor et al., Atlas of gamma-ray spectra from the inelastic scattering of reactor fast neutrons, Moscow, Atomizdat, 1978.
- 17.- G Reynolds, H Bozorgmanesh, E. Elias, T Gozani, "Coal Composition Determination by Prompt Neutron Activation Analysis-Basic Experiments", CS-989, Vol.1 FP-989 Revision, Research Project 983-1, Science Applications, Inc. May 1978.
- 18.- E. Elias and T. Gozani, "Coal Composition Determination by Prompt Neutron Activation Analysis Theoretical Modelling", SA1-070-77-PA Noviembre 1977.
- 19.- Norma Técnica Ecológica NTE-CCAT-006/88, del diario oficial SEDUE. 1990.
- 20.- William J. Price; "Nuclear Radiation Detection". Mc. Graw-Hill Book Company, 1964.

- 21.- Glenn F. Knoll; "Radiation Detection and Measurement".  
John Willey and Sons, 1979.
- 22.- Woldseth Roff ; All you ever wanted to know about  
X-Ray Energy Spectrometry". Kevex Corporation.  
Burlingame, California, 1973.
- 23.- Manual ORTEC 1985; Detector Ortec de "Ge-Hp" GLP  
16195/10.
- 24.- Espectroscopias Nucleares Humberto Arriola. Unidad de  
Investigación y Asesoría; Instituto Tecnológico  
Regional de Toluca. 1981.