

Estimación de la sensibilidad en detección de boro mediante análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos

Marco Munive*, Javier Gago

Instituto Peruano de Energía Nuclear, Dirección Investigación y Desarrollo Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú

Resumen

El presente trabajo detalla el grado de sensibilidad en la detección del isótopo ^{10}B mediante el Análisis por Activación Neutrónica de Gammas Inmediatos (PGNAA), para muestras líquidas y establece la dependencia de la sensibilidad de la técnica con el flujo de neutrones. Los resultados obtenidos dan una sensibilidad de hasta 85,5 cps/g para ^{10}B con un límite de detección estimado de 5,5 ppm. Asimismo, se presenta la metodología para determinar la sensibilidad de detección para otros elementos de interés.

Abstract

This work details the degree of sensitivity in the detection of isotope ^{10}B by means of prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) for liquid samples. It also establishes the dependence of the technique sensitivity with the neutron flux. The results obtained give a sensitivity of up to 85,5 cps/g for ^{10}B with an estimated limit of detection of 5,5 ppm. Likewise, a methodology to determine sensitivity of detection for other elements of interest is presented.

1. Introducción

El análisis de activación neutrónica por gammas inmediatos (PGNAA) se basa en la captura neutrónica y la excitación del núcleo. La desexcitación del núcleo se realiza por la emisión de una radiación electromagnética (n, γ), el cual puede tener períodos de emisión del orden de 10^{-13} s, por ello su denominación como gammas inmediatos. Con estos períodos de vida medias tan cortos, se puede asumir que no se produce residuo radiactivo.

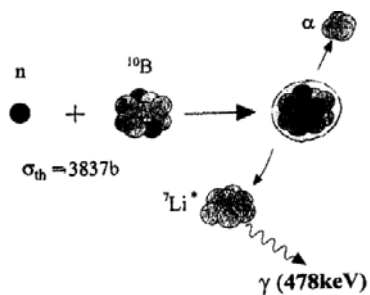


Figura 1. Proceso de interacción neutrónica y producción de gammas para ^{10}B .

Los fotones gammas inmediatos poseen energías típicas para cada elemento; por ejemplo, en el caso del ^1H se emiten fotones característicos (Tabla 1) [1] de 2,22 MeV y

0,478 MeV para ^{10}B (Figura 1). La intensidad de los picos en el espectro gamma nos da una estimación de la concentración del elemento en la muestra irradiada.

La fuente de neutrones usada en esta experiencia proviene del reactor RP-10 del Centro Nuclear RACSO.

La medida o detección de los fotones instantáneos se realiza en forma simultánea con la irradiación. Ello implica que se debe de tener un apropiado blindaje para campos mixtos sobre el detector, con la finalidad de evitar el deterioro y daño físico del mismo.

Tabla 1. Secciones eficaces de captura y energía de rayos gamma inmediatos.

	E_γ (keV)	$\sigma_\gamma(E_\gamma)$ (b)		E_γ (keV)	$\sigma_\gamma(E_\gamma)$ (b)
H	2223	0,3326	B	478	3837
Cd	558,6	1860	O	6322	0,0145

El presente trabajo pretende determinar la relación de fotones gamma inmediatos correspondientes a un elemento, en función de la concentración del mismo en una muestra, por lo cual se colectó espectros para

* Correspondencia autor: mmunive@ipen.gob.pe

muestras con diferentes concentraciones del elemento en interés. Para el caso del boro se logró trabajar a dos potencias térmicas del reactor.

2. Materiales y método

La técnica PGNA se está implementando en el conducto de irradiación externa N° 5 del reactor nuclear RP-10. La medida de concentración de boro se realizó a dos potencias térmicas del reactor: 8 MW y 10 MW, teniendo para esta última potencia un flujo de neutrones de $5,10 \times 10^6 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, en la posición de la muestra.

Como se detalla en [4], la colimación externa se realizó con un colimador de aluminio revestido de LiF. Al igual que la zona del portamuestra, el blindaje del detector posee dos etapas de blindaje contra neutrones que están elaboradas con polietileno litiado de 2,5 cm y un vidrio de LiF de 1,5 cm de espesor.

La cadena de medición de fotones gamma consta de un detector semiconductor de GeHP, marca Ortec modelo GMX tipo POP TOP, con una eficiencia de 35% de detección y una cadena de espectrometría (HV; amplificador, ADC, etc.) y un multicanal modelo S100. El detector de GeHP posee una geometría de detección vertical y la distancia entre la muestra y el detector es de 52 cm siendo el orificio de apertura a los fotones de 0,5 cm.

Las muestras para determinar la sensibilidad de detección para boro y cadmio fueron BN diluido en agua, siendo la masa de agua usada de 23 g. La solución es contenida por un recipiente de polietileno.

Para la estimación de la sensibilidad de detección por elemento se debe tener en cuenta la siguiente relación [2]:

$$W_i = \frac{A_i}{t \cdot S_i \cdot m} \quad (1)$$

Donde W_i es fracción en peso del elemento i , S_i sensibilidad (cuentas/s.g), A_i área bajo pico gamma inmediato (cuentas), t tiempo de conteo y m masa de la muestra.

Las soluciones preparadas de BN, poseen rangos de concentración de 5,5 ppm a 350 ppm para ^{10}B (Tabla 2). El boro se inserta en

una matriz de agua, de esta manera se asegura que la señal gamma correspondiente al hidrógeno (2,22 MeV) se mantenga casi constante para la muestra y la referencia, la fluctuación de esta señal o pico está directamente relacionado con la variación del flujo neutrónico incidente en la muestra.

Tabla 2. Masa de BN diluido en 23 g de agua, área de la región de boro y de hidrógeno, a una potencia de 10 MW y tiempo de colección de 1600 s.

masa BN (g)	ppm ^{10}B	ROI B (cuentas)	ROI H (cuentas)	Relación B/H $\pm 0,008$
0	0,0	83901 \pm 289	41372 \pm 203	2,027
1,4	5,5	88150 \pm 297	41592 \pm 204	2,119
3,2	12,8	91164 \pm 302	42330 \pm 206	2,154
3,9	15,2	93271 \pm 305	43888 \pm 209	2,125
4,4	17,8	94008 \pm 307	42447 \pm 206	2,215
6,3	24,5	91270 \pm 302	42313 \pm 206	2,157
8,4	34,6	94341 \pm 307	43086 \pm 208	2,190
14,1	55,1	91071 \pm 302	39521 \pm 199	2,304
14,2	57,5	94564 \pm 308	42643 \pm 207	2,218
25,9	109,1	94251 \pm 307	41090 \pm 203	2,294
33,9	132,0	98711 \pm 314	42351 \pm 206	2,331
44,5	175,0	98011 \pm 313	42548 \pm 206	2,304
100	390,0	102368 \pm 320	41370 \pm 203	2,474

Suponiendo, que la masa del elemento en la muestra esta relacionada con la señal gamma de la energía correspondiente, se cumple que:

$$\begin{aligned} m_{NB} &= c \cdot m_{10B} = a \cdot A_{10B} \\ m_{H_{H_2O}} &= b \cdot A_H \quad (2) \\ m_{total} &= m_{NB} + m_{H_2O} \end{aligned}$$

Donde m_{NB} , m_{H_2O} , m_{total} , m_{10B} son las masas de nitrógeno de boro, agua y total respectivamente, y A_{10B} , A_H son áreas bajo los picos gamma de ^{10}B e ^1H y a , b son factores de proporcionalidad.

Podemos establecer una relación donde la masa de ^{10}B está relacionada con la señal A_{10B}/A_H y también lo está con el flujo de neutrones.

$$\frac{A_{10B}}{A_H} = \frac{c \cdot m_{10B}}{A_H \cdot a} = \frac{b}{a} \quad (3)$$

Si A_H es constante la relación A_{10B}/A_H será directamente proporcional a la masa de ^{10}B .

3. Resultados y comentarios

Para lograr la relación expresada en las ecuaciones (2) y (3) sobre cada espectro se registraron regiones de interés (ROI) para los picos correspondientes de boro e hidrógeno (Figura 2).

Para las muestras que contiene boro se observa que la relación es lineal para las dos potencias térmicas empleadas (Figura 3). Con ajuste lineal $Y=A*X + B$ ($X= m^{10}_B$, $Y = A^{10}_B / A_H$).

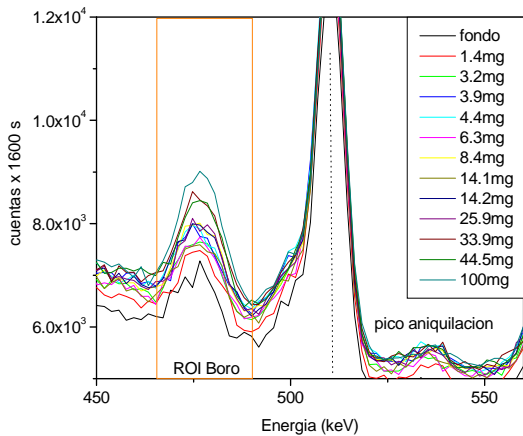


Figura 2. Espectro de gammas inmediatos de varias masas de BN diluido en agua.

Comparando estos resultados con los valores de proporcionalidad de la ecuación (3), se observa que $B = b/a$ es independiente del flujo de neutrones, ya que ambos valores se aproximan en un 9,8%. En el caso de $A = c/(a.A_H)$, se observa que este valor es dependiente del flujo de neutrones, así como de la potencia térmica de operación del reactor. La relación entre ambas potencias térmicas es de 1,25 y la relación entre los valores de A es de 1,2 (Tabla 3). Con estos valores con concordancia dentro de 2,4%, se puede inferir que la sensibilidad de la detección está relacionada con el flujo de neutrones o con la señal del pico de hidrógeno, por esta razón la matriz de la muestra debe contener un volumen conocido de agua.

Tabla 3. Resultados del ajuste lineal Figura 3.

Potencia	R2	A x10 -4	B
10 MW	0,9401	7,057 0,322	2,387 0,015
8 MW	0,9672	5,280 0,214	2,153 0,022

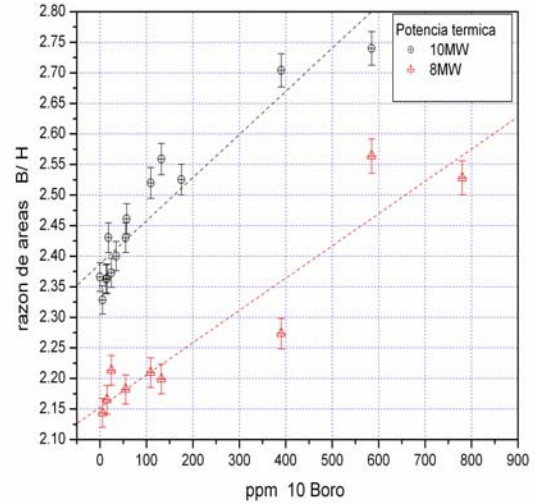


Figura 3. Razón de áreas o ROIs B/H en función de ppm de ^{10}B para dos potencias térmicas de operación de reactor.

Para estimar la sensibilidad se usa la expresión (3), observando un valor de 85,56 cps/g, para una concentración de 5,5 ppm de ^{10}B en muestras líquidas, la sensibilidad obtenida es pequeña si la comparamos con 10^3 cps/g que registra la facilidad del Budapest Neutron Centre BNC [5]. Esto se debe al flujo de neutrones térmicos en la posición de la muestra, que es de un orden de magnitud superior al que se encuentra en nuestro instrumento, pero la sensibilidad es comparable con las reportadas en las referencias [2,3,6].

En el caso que el flujo de neutrones térmicos no varíe durante el tiempo de irradiación, la colección del espectro no verá afectada la sensibilidad en la toma de datos, pero lamentablemente esta condición no se da por que la producción de neutrones por fusión del Uranio no es constante y fluctúa con el tiempo y con este evento también fluctuaría el flujo. Por ello se debe de tener un medio para medir la fluctuación neutrónica. Una herramienta es la lectura de corriente del detector de marcha del reactor, y otra más cercana a la facilidad experimental es el área del pico del fotón gamma correspondiente a la masa de hidrógeno en la muestra, situación que en nuestra experiencia es constante. Esta señal presenta una fluctuación de menos del 2,5 % en cerca de seis horas de toma de espectros (Figura 4).

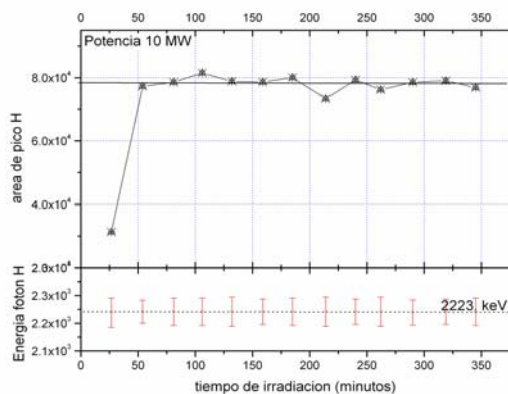


Figura 4. Variación de cuentas en función del tiempo de irradiación.

El área estimada para la región de boro posee mejor estadística de detección con el tiempo de irradiación (Figura 5). El error en el cálculo del área de la región de interés para el boro es cercano a 3,76% (tiempo de medición 8600 s) para una muestra de 5,5 ppm de ^{10}B .

La tasa de cuentas y la sensibilidad de detección se podrían mejorar con el aumento de flujo de neutrones en la posición de muestra. Por ello, se deberá reducir o extraer el filtro de zafiro que esta colocado en el conducto interior de la facilidad [4].

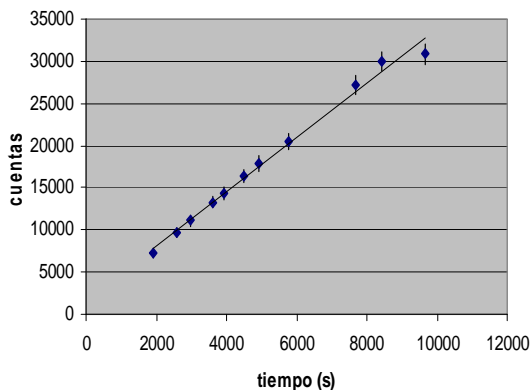


Figura 5. Cuentas de la de la región ROI Boro en función del tiempo de irradiación.

Los valores de tasa de dosis de campos mixtos en la posición de operador son de 2 $\mu\text{Sv/h}$ y 47 $\mu\text{Sv/h}$ para fotones gamma y neutrones, respectivamente. Lo cual solo nos permite permanecer en sala no más de 10 minutos por hora de trabajo experimental, para no exceder el límite de dosis para personal ocupacionalmente expuesto (7,5 $\mu\text{Sv/h}$).

4. Conclusiones

- Se ha logrado detectar ^{10}B en una matriz líquida con una sensibilidad de 85,5 cps/g y con un límite de detección de 5,5 ppm. El valor de sensibilidad esta por debajo de otras facilidades, esto se debe específicamente por el flujo de neutrones térmicos con que se cuenta.
- Como se detalla en [4], la facilidad posee un filtro de zafiro que deberá ser reducido en su espesor o extraído para aumentar el flujo de neutrones térmicos.

5. Referencias

- [1]. IAEA. Database of prompt gamma rays from slow neutron capture for elemental analysis. Vienna: Austria; 2007.
- [2]. Ordenes D, Silva A, Pereda C, Henríquez C. PGNAA facility optimization in the RECH-1. Nucleotecnica. 2005 Dec; 24(38):51-64.
- [3]. M. Ovalle, G. Navarro, C. Henríquez, C. Pereda, J. Klein. Nuevas aplicaciones de análisis por activación de radiación gamma instantánea (PGNAA). En: Comisión Chilena de Energía Nuclear. Revista electrónica Ciencia Abierta. [serie en Internet]. Disponible en: URL: <http://cabierta.uchile.cl/revista/>.
- [4]. Munive M, Solís J, Gago J. Instalación de la facilidad de análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos. En: Instituto Peruano de Energía Nuclear. Informe Científico Tecnológico 2007. Lima: Perú; 2008. p. 141-144.
- [5]. Budapest Neutron Centre. [serie en Internet]. Disponible en: URL: <http://www.bnc.hu>
- [6]. Hamed A, Hassan A. Emission of boron in some local material by prompt gamma ray neutron activation analysis technique. Proceedings of the 2nd Environmental Physics Conference. Egypt; 2006. p. 125-131.