

UNIVERSIDAD NACIONAL DE INGENIERÍA
FACULTAD DE CIENCIAS



TESIS

**IMPLEMENTACIÓN DE FACILIDAD EPITÉRMICA PARA
ELIMINAR LAS INTERFERENCIAS ESPECTRALES,
USANDO NITRURO DE BORO COMO FILTRO.**

PARA OPTAR EL GRADO ACADÉMICO DE MAESTRO
EN CIENCIAS CON MENCIÓN EN ENERGÍA NUCLEAR

ELABORADA POR:

JAIME HEWER SAN BARTOLOMÉ MONTERO

Asesor

Dr. HERIBERTO ABRAHAM SÁNCHEZ CÓRDOVA

Co-Asesor

Mg. PABLO ANTONIO MENDOZA HIDALGO

LIMA-PERÚ

2023

DEDICATORIA

“Esta tesis está dedicada a mi madre Lucinda (QEPD), a mi amada esposa Nancy y a mis queridos hijos Marie, Ulianov por su enorme esfuerzo en apoyarme en la culminación del presente trabajo”.

AGRADECIMIENTOS

Debo agradecer a las autoridades del Instituto Peruano de Energía Nuclear-IPEN, de modo especial, a la Mg. Anita Elizabeth Robles Ñique, directora de la Dirección de Investigación y Desarrollo-INDE; por haberme permitido desarrollar el presente trabajo en el laboratorio de Técnicas Analíticas-TEAN.

Al Dr. Rosendo Ochoa Jiménez, director (e) de la Unidad de Postgrado de la Facultad de Ciencias de la Universidad Nacional de Ingeniería, por la oportunidad brindada de poder avanzar en mi formación académica y profesional.

A mis directores de tesis:

Dr. Heriberto Abraham Sánchez Córdova, docente Principal de la Facultad de Ciencias de la Universidad Nacional de Ingeniería-UNI, por su permanente asesoramiento.

Mg. Pablo Antonio Mendoza Hidalgo, Investigador Principal del Laboratorio de Técnicas Analíticas, por el permanente asesoramiento y constante apoyo durante el desarrollo experimental de este trabajo.

Al personal del laboratorio, Mg. Patricia Socorro Bedregal Salas, por su apoyo en el uso de los equipos en los laboratorios y al Licenciado en Química, Víctor Raúl Poma Llantoy, egresado de la Facultad de Ciencias de la Universidad Nacional de Ingeniería-UNI; por su apoyo en las irradiaciones y mediciones de las muestras. A si mismo agradezco su apoyo en las mediciones y cálculos de las concentraciones a la Bachiller en Física, egresada de la Universidad Nacional Federico Villareal-UNFV, Cindy Karen De la Torre.

Al Mg. Rolando Arrieta Bernabé, jefe de operación del reactor RP-10, cuyos consejos prácticos y apoyo desinteresado contribuyeron en la realización del presente trabajo. Así mismo mis agradecimientos al Dr. Agustín Ricardo Zúñiga Gamarra por sus permanentes discusiones y uso de su laboratorio del grupo de Física de Reactores para la determinación del gradiente de flujo en el punto de irradiación del SNIM.

Finalmente, agradezco a mi esposa Nancy y a mis hijos, Ulianov y Marié por su comprensión y apoyo permanente para terminar el presente trabajo.

ÍNDICE DE CONTENIDOS

DEDICATORIA.....	ii
AGRADECIMIENTOS	iii
ÍNDICE DE CONTENIDOS.....	iv
ÍNDICE DE TABLAS	vii
ÍNDICE DE FIGURAS.....	viii
RESUMEN.....	x
ABSTRACT	xi
INTRODUCCIÓN.....	1
CAPÍTULO I.....	3
PLANTEAMIENTO DE LA INVESTIGACIÓN.....	3
1.1. Diagnóstico y evaluación del problema	3
1.2. Definición del problema de investigación.....	3
1.3. Formulación del problema.....	3
1.4. Determinación de los objetivos.....	4
1.4.1. Objetivo general	4
1.4.2. Objetivos específicos	4
1.5. Hipótesis de la investigación	4
1.5.1. Hipótesis general	4
1.5.2. Hipótesis específicas.....	4
1.6. Justificación y delimitación de la investigación	5
1.6.1. Importancia del tema	5
1.6.2. Justificación.....	5
1.6.3. Delimitación	5
CAPÍTULO II.....	6
MARCO TEÓRICO.....	6
2.1. Antecedentes de la investigación	6
2.2. Reactor nuclear de investigación	8
2.2.1. Propiedades físicas del neutrón.....	8

2.2.2. Espectro de neutrones de un reactor nuclear	9
2.2.3. Parámetros de flujo neutrónico en el reactor.....	12
2.2.4. Interacción de los neutrones con la materia.	13
2.2.4.1. Dispersión.....	13
2.2.4.2. Absorción.....	14
2.2.4.3. Fisión... ..	15
2.3. Principios del análisis por activación neutrónica.....	16
2.3.1. Antecedentes históricos.....	16
2.3.2. Características del análisis de activación neutrónica.....	17
2.3.3. La ecuación general de activación	18
2.3.4. Determinación de la concentración del analito en la muestra.....	22
2.3.5. Método de estandarización K_0	26
2.3.6. Incertidumbres en el método de estandarización K_0	29
2.4. Análisis por activación con neutrones epitérmicos (ENAA).....	31
2.4.1. Ventajas de uso de neutrones epitérmicos	33
2.4.2. Determinación de la concentración usando el filtro de boro.....	34
2.4.3. Determinación de los parámetros del espectro de neutrones f y α	36
2.5. Espectrometría gamma	39
2.5.1. Interacción de los rayos gamma con la materia.....	40
2.5.2. Espectroscopía de rayos gamma con detectores semiconductores (HPGe).....	44
2.5.3. Detección y cuantificación de la radiación gamma	46
2.5.4. Eficiencia del sistema de detección	47
2.6. Interferencia espectral en análisis por activación neutrónica	49
CAPÍTULO III	55
PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL Y METODOLOGÍA	55
3.1. Instrumentación experimental.....	55
3.1.1. El reactor nuclear RP-10	55
3.1.2. Sistema neumático de transferencia de muestras (SNIM)	57
3.1.3. Calibración en energía del detector HPGe.....	58
3.1.4. Cálculo de la eficiencia geométrica del detector HPGe.....	60
3.2. Implementación de facilidad epitérmica con boro como filtro de neutrones térmicos 61	
3.2.1. Diseño y fabricación del dispositivo móvil (contenedor)	61

3.2.2. Análisis cualitativo por fluorescencia de rayos-x (FRX).....	63
3.2.3. Análisis cuantitativo por activación neutrónica (AAN).....	63
3.2.4. Acondicionamiento del dispositivo con nitruro de boro (BN).....	65
3.2.5. Determinación del factor de ganancia.....	69
CAPÍTULO IV	74
RESULTADOS EXPERIMENTALES	74
4.1. Irradiación y medición de muestras	74
4.1.1. Determinación del gradiente de flujo.....	74
4.1.2. Determinación del flujo neutrónico en el punto de irradiación.....	77
4.1.3. Preparación de comparador de oro	81
4.1.4. Preparación y acondicionamiento de muestras de referencia certificadas	83
4.1.5. Irradiación	87
4.1.6. Tratamiento espectral.....	89
4.2. Análisis cuantitativo por método de estandarización K_0	93
CAPÍTULO V	99
DISCUSIÓN DE RESULTADOS.....	99
CAPÍTULO VI	101
CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES	101
GLOSARIO.....	102
BIBLIOGRAFÍA	105
ANEXOS.....	109
Anexo 1. Certificado de fuentes puntuales de emisores gamma	109
Anexo 2. Reporte de resultados análisis cualitativo del envase borado.....	111
Anexo 3. Certificado de análisis del reactivo nitruro de boro (BN).....	112
Anexo 4. Certificado de material de referencia estándar <i>SRM-1633c</i>	115

ÍNDICE DE TABLAS

Tabla 2.1. Incertidumbres estimadas para estandarización K_0	30
Tabla 3.1. Actividad de fuente gamma de ^{152}Eu certificados. [Anexo 1]	58
Tabla 3.2 Parámetros de calibración del detector HPGe, Canberra (GC15022).	58
Tabla 3.3. Muestras de polietileno borado y estándar de sodio.....	64
Tabla 3.4. Concentración de elementos químicos en el polietileno borado.	65
Tabla 3.5. Datos nucleares de monitores usados según referencia(De Corte et al., 2002) 70	
Tabla 3.6. Datos de codificación de contenedor y de los monitores.....	72
Tabla 3.7. Ratio de actividades específicas desnudo a cubierta con boro.....	73
Tabla 4.1. Actividades normalizadas de los alambres de cobre con y sin boro.	77
Tabla 4. 2. Constantes, datos nucleares para el cálculo de los parámetros característicos de flujo neutrónico tomado de (De Corte et al., 2002).....	77
Tabla 4.3. Valores determinados de actividades de monitores en desnudo.	78
Tabla 4.4. Valores determinados de actividades de monitores cubiertos con filtro de boro.	79
Tabla 4.5. Parámetros característicos del flujo y espectro neutrónico según grupos de monitores elegidos.	80
Tabla 4.6. Masa del comparador de oro en (μg).....	82
Tabla 4.7. Valores certificados del material de referencia <i>SRM-1633c</i>	84
Tabla 4.8. Codificación de muestras de referencia certificados <i>SRM-1633c</i>	86
Tabla 4.9. Condiciones de irradiación de las muestras estándar <i>SMR-1633c</i>	88
Tabla 4.10. Datos de las muestras de referencia <i>SRM-1633c</i> y comparador de Au.	90
Tabla 4.11. Comparación de límites de detección de AAN y ENAA.....	94
Tabla 4.12. Resultado de concentraciones de elementos analizados con filtro de boro, usando método de estandarización K_0	95
Tabla 4.13 Resultados de concentraciones analizados sin filtro de boro, usando método de estandarización K_0	96
Tabla 4.14. Datos nucleares de las reacciones (n, γ) de interés.....	97
Tabla 4.15. Resultados de análisis, muestras <i>SRM-1633c</i> por método de estandarización K_0 con y sin filtro térmico de boro, incertidumbre expandida (cobertura al 95%, $k=2$).....	98

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 2.1. Esquema del proceso de fisión nuclear del ^{235}U	11
Figura 2.2. Esquema del espectro de flujo de neutrones del reactor nuclear $\phi'(E)$ versus E.	12
Figura 2.3. Esquema de la función de sección eficaz $(n, \gamma) \sigma(E)$ versus E.	16
Figura 2.4. Esquema del proceso de interacción neutrónica	18
Figura 2.5. Sección transversal de absorción de neutrones versus energía para Cd y B	32
Figura 2.6. Esquema del efecto fotoeléctrico.	40
Figura 2.7. Esquema del efecto Compton.	41
Figura 2.8. Esquema del borde Compton de ^{60}Co en un detector solido centellador.	42
Figura 2.9. Esquema del efecto producción de pares.....	43
Figura 2.10. Esquema de la sección eficaz total versus energía del fotón.	44
Figura 2.11. Esquema del sistema de detección de radiación gamma.	45
Figura 2.12. Esquema y corte transversal del detector HPGe de alta resolución.	46
Figura 2.13. Esquema de un pico de rayos gamma sobre un fondo liso.	50
Figura 2.14. Esquema de detección de un pico en un espectro de rayos gamma	52
Figura 3.1. Esquema de la posición del sistema neumático-SNIM en el reactor RP-10.	56
Figura 3.2. Configuración del núcleo N°08, empleada desde el 16-09-2019.	56
Figura 3.3. Esquema del sistema neumático-SNIM.....	57
Figura 3.4. Curva de calibración, energía versus canal con ajuste de segundo grado.	59
Figura 3.5. Esquema fuente-detector de geometrías, $H_1=185$ mm y $H_2=50$ mm	60
Figura 3.6. Curva de eficiencias geométrica del detector HPGe a 50 mm y 185 mm.	61
Figura 3.7. Barra de polietileno borado y contenedor cilíndrico, fabricado según diseño. 62	
Figura 3.8. Dimensiones y perfil de contenedor estándar de polietileno de alta densidad. 62	
Figura 3.9. Cápsula de irradiación de polietileno borado de alta densidad.....	63
Figura 3.10. Cápsula de irradiación de polietileno blanco de alta densidad.	64
Figura 3.11. Reactivo de nitruro de boro (BN) certificado.	65
Figura 3.12. Filtros de BN cilíndrico con silicona líquida de 2 mm de espesor.	66
Figura 3.13. Fragilización de la mezcla de nitruro de boro con silicona líquida.....	66
Figura 3.14. Fragilización de la mezcla de polvo de plomo y nitruro de boro (BN).....	67
Figura 3.15. Diseño final del filtro con polvo de nitruro de boro (BN).....	68
Figura 3.16. Estructura del cabezal en el sistema neumático-SNIM.	69

Figura 3.17. Monitores usados, balanza y muestras adosadas para la irradiación.....	71
Figura 3.18. Monitores adosados con filtro de nitruro de boro (BN) y sin filtro.	71
Figura 3.19. Curva del factor de ganancia para radioisótopos con $1 < Q_0 < 252$	73
Figura 4.1. Alambres de Cu usados para hallar gradiente de flujo.....	74
Figura 4.2. Configuración del alambre de Cu en el eje axial.	75
Figura 4.3. Distribución de flujo axial en la facilidad de irradiación con boro.....	76
Figura 4.4. Distribución de flujo axial en la facilidad de irradiación sin filtro.	76
Figura 4.5. Curva de iteración (α , $f(\alpha)$).....	80
Figura 4.6. Materiales usados en la preparación del estándar de Au.....	81
Figura 4.7. Proceso de preparación del comparador de oro.	82
Figura 4.8. Contenedores HDPE, usados para las muestras y estándar.	83
Figura 4.9. Material de referencia <i>SRM-1633c (Coal Fly Ash)</i>	83
Figura 4.10. Contenedor acondicionado con comparador de Au, muestra y filtro de BN.	85
Figura 4. 11. Contenedor acondicionado con comparador de Au y muestra sin filtro.	85
Figura 4.12. Espectro del Sm-153 sin filtro de boro.....	91
Figura 4.13. Espectro del Sm-153 con filtro de boro.....	92

RESUMEN

El presente trabajo de tesis tiene como finalidad evaluar el uso de boro como absorbente neutrónico, como principal componente de una facilidad móvil para el análisis con neutrones epitérmicos; a fin de mejorar la técnica de activación neutrónica (AAN) empleada en el laboratorio de técnicas analíticas (TEAN) de la Dirección de Investigación y Desarrollo del Instituto Peruano de Energía Nuclear-IPEN.

Para tal propósito se diseñó y fabricó un contenedor cilíndrico de características geométricas similares a los usados en el laboratorio, utilizando polietileno borado (al 5% de B) en su revestimiento exterior y nitruro de boro (BN) en su parte interna de $2,0 \pm 0,1$ mm de espesor, con una densidad superficial de 382 ± 2 mg/cm² y una razón de altura a diámetro de 2,3.

Para la cuantificación analítica se aplicó el método de estandarización K_{subcero} (K_0), desarrollado por (Simonits et al.,1980) en el Instituto de Ciencias Nucleares Gent-Bélgica; empleando el oro como comparador.

Se caracterizaron los parámetros de flujo neutrónico del reactor en la posición de irradiación empleada; para lo cual se utilizaron monitores de flujo en forma de alambres de aleación de Cu-1,55% Au, Al-2,7%Lu y láminas de Mo y Al-0,1%Co al 99,95% de pureza cada una.

Estos monitores de flujo fueron irradiados durante 1200 s, a una potencia del reactor de 0,2 MW; determinándose la relación de flujo térmico a flujo epitérmico un valor ($f = 30 \pm 3$), y la variación del comportamiento no ideal $1/E$ del flujo epitérmico ($\alpha = 0,18 \pm 0,02$); con una temperatura neutrónica de ($T_n = 42 \pm 2$ °C), calculándose el flujo térmico: $\Phi_{\text{th}} = (1,36 \pm 0,2)10^{13}$ ncm⁻²s⁻¹ y flujo epitérmico: $\Phi_{\text{epi}} = (4,54 \pm 0,2)10^{11}$ ncm⁻²s⁻¹.

Como material de estudio para la presente investigación de tesis se empleó la muestra de referencia certificada *NIST-SRM (1633c)-Coal Fly Ash* “muestras de carbón volcánico”.

Se determinaron los elementos: Sc, Yb, Na, K, Fe, La, Lu, Co, Ga, Th, As, Sm, Sb y U; tanto con filtro de boro como sin filtro, observándose una variación menor al 10% respecto a los valores certificados.

Se discute y se plantea recomendaciones para la aplicación del análisis por activación de neutrones epitérmicos, en el laboratorio de Técnicas Analíticas.

Palabras claves:

Neutrones epitérmicos, filtro neutrónico, interferencia espectral.

ABSTRACT

The purpose of this thesis work is to evaluate the use of boron as a neutron absorber as the main component of a mobile facility for analysis with epithermal neutrons; in order to improve the neutron activation technique (AAN) used in the analytical techniques laboratory (TEAN) of the Research and Development Directorate of the Peruvian Institute of Nuclear Energy-IPEN.

For this purpose, a cylindrical container with geometric characteristics similar to those used in the laboratory was designed and manufactured, using borated polyethylene (5% B) in its outer lining and boron nitride (BN) in its internal part of $2,0 \pm 0,1$ mm diameter, thickness, with a surface density of 382 ± 2 mg/cm² and a height to diameter ratio of 2,3.

For analytical quantification, the Ksubzero (K0) standardization method was applied, developed by (Simonits et al., 1980) at the Gent-Belgium Institute of Nuclear Sciences; using gold as a comparator.

The neutron flux parameters of the reactor in the irradiation position used were characterized; for which flow monitors were used in the form of Cu-1,55% Au, Al-2,7%Lu alloy wires and Mo and Al-0,1%Co sheets at 99.95% purity each.

These flow monitors were irradiated for 1200 s, at a reactor power of 0.2 MW.

Determining the relation of thermal flow to epithermal flow a value ($f = 30 \pm 3$), and the variation of the non-ideal behavior $1/E$ of the epithermal flow ($\alpha = 0,18 \pm 0,02$); with a neutron temperature of ($T_n = 42 \pm 2$ °C), calculating the thermal flow: $\Phi_{th} = (1,36 \pm 0,2) 10^{13}$ ncm⁻²s⁻¹ and epithermal flow: $\Phi_{epi} = (4,54 \pm 0,2) 10^{11}$ ncm⁻²s⁻¹.

As study material for the present thesis investigation, the certified reference sample NIST-SRM (1633c)-Coal Fly Ash "samples of volcanic carbon" was used.

The elements were determined: Sc, Yb, Na, K, Fe, La, Lu, Co, Ga, Th, As, Sm, Sb and U; both with a boron filter and without a filter, observing a variation of less than 10% with respect to the certified values.

It discusses and proposes recommendations for the application of the analysis by activation of epithermal neutrons, in the laboratory of Analytical Techniques.

Keywords:

Epithermal neutrons, neutron filter, spectral interference.

INTRODUCCIÓN

En el laboratorio de técnicas analíticas (TEAN) de la Dirección de Investigación y Desarrollo del Instituto Peruano de Energía Nuclear (IPEN), se evalúan diferentes tipos de muestras tanto para estudios de investigación como de análisis químico.

La técnica empleada por excelencia es el análisis por activación neutrónica (AAN), basada en la medición de la radiación electromagnética emitida por radioisótopos producidos por el bombardeo y absorción de neutrones en los diversos elementos químicos presentes en la muestra. Para tal efecto, se emplea el reactor RP-10 como fuente de neutrones, cuyo flujo neutrónico tiene una distribución anisotrópica, con un espectro de energías de neutrones entre 0,5 eV a 20 MeV.

Esta técnica emplea para su aplicación la componente térmica y epitérmica del espectro neutrónico, es decir neutrones con energía cinética de 0,025 eV a 1 keV, activándose los isótopos respectivos mediante ambas componentes según sus parámetros nucleares. En las diversas muestras, especialmente las de naturaleza silícea la presencia de Al y Na en niveles macros de concentración; deriva en la formación de radioisótopos activados mayormente por la componente térmica generando una radiación Compton que enmascara e interfiere espectralmente los picos gamma de los radioisótopos de interés como ^{76}As , ^{239}Np , ^{122}Sb entre otros, que se activan principalmente por la componente epitérmica.

Tal efecto de enmascaramiento deviene en un detrimento de los niveles del límite de detección, así como un aumento en la incertidumbre de la medición.

No hay antecedentes de aplicación del análisis de activación por neutrones epitérmicos (ENAA) en el laboratorio de TEAN, más aún de una facilidad epitérmica móvil.

Convencionalmente se emplea el cadmio como absorbente térmico, que presenta una alta sección transversal de $(20600 \pm 400 \text{ barn})$ (Molnar, 2000); no obstante, la activación de varios de sus isótopos genera emisión de radiación gamma muy intensas; impidiendo por normativas de protección radiológica la manipulación y tratamiento espectral inmediato, por lo que se debe esperar un periodo largo de decaimiento, dificultando o imposibilitando la determinación de radionucleidos de corto periodo de semidesintegración.

Una alternativa al cadmio (^{113}Cd), es el empleo de boro (^{10}B); que posee una sección transversal de absorción de neutrones térmicos $(0,5 \pm 0,1 \text{ barn})$ (Molnar, 2000), convirtiéndolo

en un excelente absorbente y de uso recomendado para minimizar las interferencias espectrales producidas por radioisótopos como ^{28}Al y ^{24}Na .

Considerando que los análisis por activación neutrónica (AAN), en el laboratorio de TEAN se realiza mayormente, empleando la facilidad neumática para el transporte de muestras al reactor (SNIM), se diseñó y fabricó dos contenedores cilíndricos acoplados; uno de polietileno borado (al 5% de B) en su revestimiento externo y con las mismas características geométricas como aerodinámicas que los usados en el laboratorio y el segundo de menor diámetro y en el espacio entre ellos se insertó polvo de nitruro de boro (BN) compactado mecánicamente siguiendo lo recomendado por (Rossitto et al.,1972).

Para la cuantificación de los analitos de interés se aplica el método de estandarización Ksubcero (K_0) modificado por (El Nimr et al.,1981); empleando el oro como comparador, pero cambiando el cadmio por el boro; siendo esta la segunda propuesta de la investigación.

Se procedió a validar cada etapa analítica, caracterizándose el flujo de neutrones del reactor RP-10 en la posición de irradiación empleada; determinando los parámetros f (la relación entre el flujo térmico a epitérmico) y α (que describe cuánto se desvía el flujo de neutrones epitérmicos del ideal $1/E$).

Para la validación metodológica se empleó la muestra de referencia certificada *NIST-SRM-1633c (Coal Fly Ash)*, siendo evaluados los radionúclidos; ^{153}Sm , ^{177}Lu , ^{239}Np , ^{175}Yb , ^{140}La , ^{76}As , ^{122}Sb , ^{46}Sc , ^{24}Na , ^{72}Ga , ^{233}Pa , ^{59}Fe , ^{60}Co , obteniéndose una diferencia relativa menor de 10% al valor certificado.

El trabajo se cierra con una discusión y recomendaciones para la aplicación de una nueva metodología analítica en el laboratorio de técnicas analíticas (TEAN).

CAPÍTULO I

PLANTEAMIENTO DE LA INVESTIGACIÓN

1.1. Diagnóstico y evaluación del problema

En el laboratorio de Técnicas Analíticas del Instituto Peruano de Energía Nuclear-IPEN, se desarrolla la técnica de análisis por activación neutrónica empleando el reactor RP-10; como fuente de neutrones, con un flujo neutrónico de amplio espectro de energías desde los rápidos, intermedios epitérmicos y térmicos. Por sus parámetros nucleares, los isótopos de ^{28}Al y ^{24}Na , logran un alto grado de activación produciéndose una señal espectral muy intensa que enmascara a los demás radionúclidos de interés, impidiendo su adecuada detección. A fin de eliminar o reducir tales interferencias, se propone en esta investigación implementar la técnica de análisis de activación con neutrones epitérmicos (ENAA); diseñando y fabricando para tal propósito un contenedor (cápsula de irradiación) usando el boro (^{10}B) en forma de nitruro de boro (BN) como filtro de neutrones térmicos.

1.2. Definición del problema de investigación

Mediante la técnica de análisis por activación neutrónica (AAN), no es posible determinar adecuadamente ciertos radioisótopos de interés debido a la interferencia espectral producidos por radioisótopos como ^{28}Al y ^{24}Na cuya activación tiene una fuerte componente térmica, originado un enmascaramiento de la señal de los radioisótopos de interés en detrimento de su nivel de detección; imposibilitando su cuantificación, especialmente en matrices silíceas.

Como una alternativa se propone un sistema de irradiación móvil conteniendo nitruro de boro (BN), para la absorción de neutrones térmicos con el fin de mejorar la detección y cuantificación de los elementos de interés. Para tal efecto se cuenta con la infraestructura y material necesaria haciendo viable la propuesta mencionada.

1.3. Formulación del problema

¿Será posible implementar un sistema de irradiación móvil para aplicar análisis por activación con neutrones epitérmicos (ENAA), empleando nitruro de boro como filtro de neutrones térmicos?

1.4. Determinación de los objetivos

Solucionar la carencia de una facilidad experimental que permita la irradiación bajo un flujo de neutrones mayormente epitérmicos, utilizando el sistema neumático de irradiación de muestras (SNIM).

1.4.1. Objetivo general

Implementar la técnica de análisis por activación con neutrones epitérmicos (ENAA) usando nitruro de boro (BN) como filtro de neutrones térmicos, con el fin de mejorar el análisis elemental en diversos tipos de muestra.

1.4.2. Objetivos específicos

- Implementación de la técnica de análisis de activación con neutrones epitérmicos en el laboratorio de técnicas analíticas de la dirección de investigación y desarrollo (INDE).
- Diseño y fabricación de cápsulas de polietileno borado en forma de cilindros concéntricos conteniendo el polvo de nitruro de boro (BN).

1.5. Hipótesis de la investigación

1.5.1. Hipótesis general

Será posible implementar un sistema de irradiación móvil para aplicar ENAA, empleando nitruro de boro como filtro de neutrones térmicos.

1.5.2. Hipótesis específicas

- Implementar la técnica de análisis de activación con neutrones epitérmicos-ENAA en el laboratorio de técnicas analíticas de la dirección de investigación y desarrollo (INDE).
- Diseñar y fabricar cápsulas de polietileno borado en forma de cilindros concéntricos conteniendo el polvo de nitruro de boro (BN).

1.6. Justificación y delimitación de la Investigación

1.6.1. Importancia del tema

Poder satisfacer las demandas analíticas propias de laboratorio, así como de programas de investigación de elementos metálicos estratégicos en los diferentes ambientes geológicos metamórficos, rocas básicas, y ultra-básicas e intrusivas.

1.6.2. Justificación

Necesidad de cumplir los objetivos y poder implementar una facilidad epitérmica en el laboratorio de TEAN; a fin de optimizar la determinación de los elementos de interés presentes mayormente a nivel de trazas generalmente en muestras silíceas/geológicas.

1.6.3. Delimitación

Estudio analítico, usando boro como filtro de neutrones térmicos, y establecer un método de estudio para inter-comparación regional e internacional en las técnicas analíticas usando facilidad epitérmica móvil.

CAPÍTULO II

MARCO TEÓRICO

2.1. Antecedentes de la investigación

A nivel nacional, no se encontraron antecedentes relacionados con nuestra investigación. A nivel internacional los antecedentes más relevantes relacionados con nuestra investigación son las siguientes:

(Parry,1984) en su artículo demuestra que el uso de filtros de neutrones como cadmio, boro y cadmio más boro, reducen la actividad interferente de nucleídos de vida media larga como ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{51}Cr , ^{60}Co , y ^{64}Cu . Determinó la razón de Cd para 52 nucleídos de vida media corta. La irradiación con neutrones epitérmicos reduce las actividades de ^{20}F , ^{27}Mg , ^{28}Al , ^{38}Cl , ^{49}Ca , $^{46\text{m}}\text{Sc}$, ^{51}Ti , ^{56}Mn , and ^{66}Cu , por factores de 20-30. Y los límites de detección hallados para Ga, Br, Rb, Y, Mo, Rh, Pd, Ag, In, Sn, Sb, I, Ba, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb, Hf, W, Re, Pt, Au, Th y U están en el rango de 1- 6. Concluye que los filtros de neutrones térmicos mejoran la activación de algunos nucleídos de vida media corta.

(Ehmann et al.,1980) en su artículo, determinaron la influencia del filtro de boro y cadmio en la activación de nucleídos con diferentes energías de resonancia epitermal, investigaron usando ^{197}Au , ^{186}W , ^{59}Co , y ^{98}Mo , que tienen resonancias más importantes a 5, 19, 132, y 480 eV, respectivamente. Los monitores de elementos puros irradiaron bajo un filtro de carburo de boro (BC), un filtro de cadmio y sin filtro. Concluyen que la ratio de la activación con filtro de cadmio y con filtro de boro muestran claramente que la razón de activación Cd/B decrece con el incremento de la energía del neutrón de acuerdo a la ley $1/v$ para la función de excitación del ^{10}B . En este trabajo se determinó uranio por esta técnica ENAA, usando carburo de boro (BC) como filtro de neutrones térmicos, ya que este elemento es muy difícil de determinar en el carbón por neutrones térmicos convencionales (AAN).

(Xiaolin et al.,1996), diseñaron un sistema de irradiación de neutrones epitermales, eligieron Cd de 0,75 mm de espesor como material de blindaje de neutrones térmicos, para un sistema fijo instalado muy próximo en el lugar de irradiación n°7, cerca del reflector de berilio, este trabajo mejoró los límites de detección de nucleídos con vida media larga y secciones transversales integrales de alta resonancia. En este trabajo aplicaron ENAA utilizando un vial blindado con nitruro de boro (BN) móvil y blindaje de Cd, y determinaron I, In, Br, U, Th y Si en muestras geológicas, el contenido de I, In y Br en muestras geológicas son muy bajas y alta concentración de Al, Mn y Na con interferencias muy fuertes en su determinación. Por la tanto ENAA fue usado para determinar la interferencia de ^{24}Na y ^{56}Mn con alto nivel de radiactividad en la muestra geológica irradiada por neutrones térmicos; así que la determinación de Si es usualmente imposible por el método convencional de NAA, a pesar de que el Si es usualmente alto, en este trabajo de ENAA se usó BN como blindaje de neutrones térmicos y el contenido de Si en muestras geológicas fueron determinados midiendo ^{29}Al producido por la reacción nuclear $^{29}\text{Si} (n, p) ^{29}\text{Al}$.

(Radulovic et al.,2016) proporcionan una visión general de las posibilidades del uso de material de nitruro de boro para adaptar la sensibilidad energética de las reacciones de captura radiactiva, con una perspectiva de experimentos de activación integral y validación de datos nucleares en el rango epitermal. Se discute la parametrización de la función de transmisión de neutrones y la determinación de sus parámetros para un contenedor de nitruro de boro (BN) con un grosor de pared de 4 mm. Se realizó un extenso trabajo de medición experimental en el reactor nuclear JSI TRIGA Mark II. Se irradiaron muestras de 7 materiales dosimétricos de neutrones diferentes, en forma de láminas en la posición de irradiación del tubo neumático en el anillo exterior del núcleo del reactor, las muestras fueron irradiadas desnudo en un contenedor de cadmio y nitruro de boro (BN).

2.2. Reactor nuclear de investigación

Los reactores de investigación alcanzan una enorme importancia en el desarrollo de la ciencia y la aplicación de la tecnología nuclear. Son utilizados en la investigación básica, producción de radioisótopos, dispersión neutrónica y radiografía, análisis por activación neutrónica; así como para la caracterización y el ensayo de materiales. Además de la enseñanza y capacitación, el análisis por activación neutrónica es la aplicación de los reactores de investigación más ampliamente utilizada. Prácticamente cualquier reactor que funcione a una potencia térmica de 10 a 30 kilovatios es capaz de proporcionar suficiente flujo neutrónico para irradiar muestras destinadas a aplicaciones selectivas de esta técnica de análisis. Las muestras que pueden analizarse con este método proceden de distintos campos, como la medicina, la nutrición, la biología, la química, la ciencia forense, el medio ambiente y la minería.

2.2.1. Propiedades físicas del neutrón

El neutrón es una partícula cuyo radio medio es $\sim 0,8 \times 10^{-15} \text{m}$ (0,8 fermi); su masa en energía es de $939,565 \text{ MeV}/c^2$ (masa en Kg es $1,67493 \times 10^{-27} \text{kg}$); con espín - $\frac{1}{2}$ según la estadística de Fermi. Es neutra, sin carga eléctrica neta; la vida promedio del neutrón en estado libre es 882 s (es decir la vida media es 611 s); después de la cual decae en un protón, un electrón y un antineutrino. Su momento magnético es $-1,913 \mu\text{N}$, (magnetón nuclear $\mu\text{N} = 5,051 \times 10^{-27} \text{JT}^{-1}$), ioniza la materia solo indirectamente. Como el neutrón es una partícula sin carga eléctrica, viaja en línea recta, desviándose de su camino solo cuando colisiona con un núcleo para dispersarse en una nueva dirección o ser absorbida, ni los electrones que rodean (nube de electrones atómicos) a un núcleo, ni el campo eléctrico causado por un núcleo cargado positivamente afectan el vuelo del neutrón. En resumen, el neutrón colisiona con los núcleos, no con los átomos, los neutrones térmicos o fríos tienen las longitudes de onda similares a los espaciamientos atómicos. Se pueden usar en experimentos de difracción de neutrones para determinar la estructura atómica y / o magnética de un material. Una propiedad descriptiva de la transmisión de neutrones a través de la materia es la longitud media del camino libre λ , que es la distancia media que recorre un neutrón entre las interacciones, tomado de (Lamarsh et al.,2001).

2.2.2. Espectro de neutrones de un reactor nuclear

Para la técnica del análisis por activación neutrónica, la distribución o espectro de energías de los neutrones producidos en un reactor nuclear es muy importante, estos determinan las posibles reacciones nucleares; la distribución difiere por tipo de reactor y para las distintas posiciones en el núcleo de un mismo reactor. La energía de los neutrones en el reactor se clasifica por regiones y se representa con una función matemática.

Región de energía térmica [$E < 0,2 \text{ eV}$]:

En la región térmica, los neutrones están en equilibrio térmico con los átomos del material moderador (en la situación idealizada donde no hay absorción presente). Es decir, los neutrones se comportan como un gas fuertemente diluido. No todos estos neutrones tienen la misma energía, hay una distribución de energías, conocida como la distribución de Maxwell-Boltzmann, se define como:

$$M(E) = \frac{2\pi\sqrt{E}}{(\pi KT)^{3/2}} e^{-\frac{E}{KT}} \quad (2.1)$$

En el cual:

E = Energía de los neutrones en [eV];

K = $8,52 \times 10^{-5} \text{ eV}/^\circ\text{K}$ (Constante de Boltzmann);

$M(E)$ = Función de distribución, normalizado a 1.

$$\int_0^{\infty} M(E) dE = 1 \quad (2.2)$$

Para la densidad de flujo térmico de neutrones, se tiene la función de distribución del espectro térmico:

$$\Phi_{th}(E) = n_0 v M(E) = \sqrt{\frac{2E}{m}} n_0 \frac{2\pi\sqrt{E}}{(\pi KT)^{3/2}} e^{-\frac{E}{KT}} \quad (2.3)$$

En el cual:

n_0 = Densidad térmica total de neutrones;

E = KT (Energía más probable, para la cual el espectro es máximo).

La velocidad a esta energía ($E=0,025 \text{ eV}$, energía cinética a temperatura ambiente), es de (2200 m/s), esta energía es importante porque los datos de referencia, las secciones transversales, se tabulan para esta velocidad. Esta distribución es válida para el equilibrio

térmico completo, como en el reactor nuclear siempre habrá algo de absorción este equilibrio nunca será completo; como resultado del comportamiento $1/v$, los neutrones de baja energía se absorben preferentemente, lo que conduce a un cambio del espectro a energías más altas.

Región de energía epitérmica [$1\text{eV} < E < 0,1\text{Mev}$]:

Entre la región rápida y la región térmica hay una región de energía intermedia que se conoce como la región epitérmica. En esta región, la dependencia $1/E$ es típica, causada por el proceso de desaceleración. La dispersión elástica elimina una fracción constante de la energía cinética de neutrones por colisión. Por lo tanto, el neutrón pierde grandes cantidades de energía por colisión a energías más altas, que a energías más bajas. El hecho de que los neutrones pierdan una fracción constante de energía cinética por colisión hace que el flujo de neutrones dependiente de la energía tienda a acumularse a energías más bajas. El flujo en esta región se puede representar a través de la expresión:

$$\Phi_e(E) = \Delta(E) \frac{\phi_e}{E} \tag{2.4}$$

En el cual:

ϕ_e = Constante;

$\Delta(E)$ = Función de empalme que varía entre 0 y 1, entre la región térmica y epitérmica;

E = Energía de los neutrones.

Tomando una energía umbral μkT , donde μ es una constante empírica, de valor 4 para un reactor moderado con agua liviana, $\Delta(E)$ se puede representar como una función escalón; para diferentes posiciones de irradiación, existen desviaciones del comportamiento ideal de la componente epitérmica, las cuales pueden representarse como:

$$\Phi_e(E, \alpha) = \Delta(E) \frac{\phi_e}{E^{1+\alpha}} \tag{2.5}$$

Donde alfa (α) es un parámetro característico de la posición de irradiación.

Región de neutrones rápidos [$E > 1 \text{ KeV}$]

Todos los neutrones producidos por la fisión nacen con alta energía cinética. En general, más del 99 % de los neutrones de fisión son los neutrones rápidos, pero la fracción exacta depende del nucleído a ser fisionado y también depende de la energía cinética de neutrones incidente. Por ejemplo, la fisión de ^{235}U con neutrones térmicos produce 2,43

neutrones, de los cuales 2,42 neutrones son los neutrones rápidos 0,01585 neutrones (0,01585 / 2,43 = 0,0065) son los neutrones retardados; esta reacción se puede apreciar en el esquema de la figura (2.1).

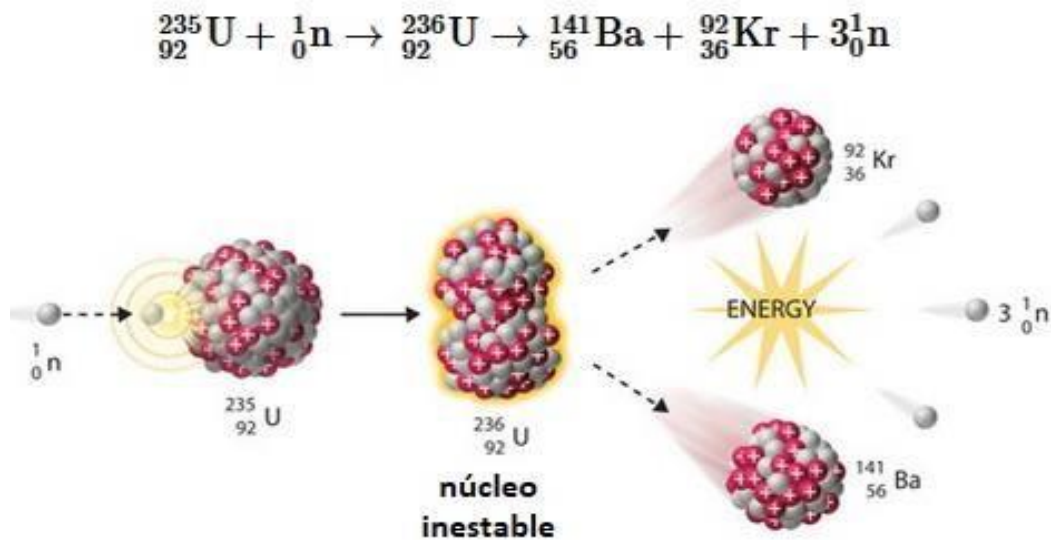


Figura 2.1. Esquema del proceso de fisión nuclear del ${}^{235}\text{U}$
 [Fuente: <https://www.liceoagb.es/quimigen/nuc6.html>]

Los neutrones de fisión tienen energías cinéticas entre 0,1 MeV y 17 MeV; la energía cinética neutrónica media es de aproximadamente 2 MeV y la energía de neutrones más probable es de aproximadamente 0,7 MeV. El espectro rápido de neutrones se aproxima con la siguiente función de distribución normalizada a uno (Beckurtz et al.,1964).

$$\chi(E) = 0,453e^{-1,036E}\text{senh}(\sqrt{2,29E}) \quad (2.6)$$

En el cual:

E = Energía de los neutrones [Mev];

$\chi(E)$ = Función distribución que está normalizada a uno.

$$\int_0^{\infty} \chi(E)dE = 1 \quad (2.7)$$

La distribución de los neutrones en función de la energía en el núcleo del reactor se subdivide, en tres componentes; ver la distribución de energías en el esquema de la figura (2.2).

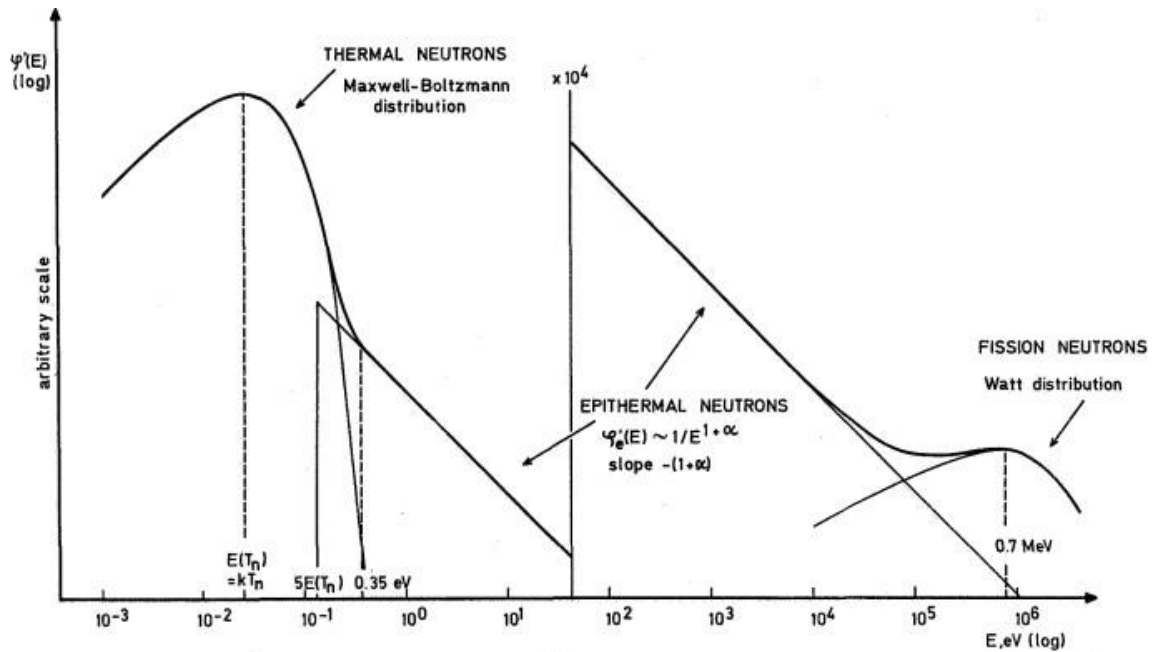


Figura 2.2. Esquema del espectro de flujo de neutrones del reactor nuclear $\phi'(E)$ versus E .
[Fuente: (De Corte et al.,1987)]

2.2.3. Parámetros de flujo neutrónico en el reactor

La determinación de las concentraciones del analito en una muestra irradiada en un punto del núcleo del reactor, usando el método de estandarización Ksubcero (K_0); requiere el conocimiento de los valores de algunos parámetros de flujo neutrónico en la posición de irradiación de la muestra tales como:

α = El índice de no idealidad del espectro de neutrones epitérmicos;

$f = \frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}}$ (La relación de flujo térmico a epitérmico);

T_n = La temperatura de neutrones en la posición de irradiación.

Estos parámetros f y α para la estación neumática de irradiación se determinan por activación de un conjunto de monitores de flujo de alta pureza, tanto en el contenedor estándar sin filtro, así como en el contenedor borado con filtro de boro; el procedimiento y los cálculos de los valores determinados se muestran en la sección (4.1.2).

2.2.4. Interacción de los neutrones con la materia

Si un neutrón interactúa con la materia al acercarse a las proximidades del núcleo, su trayectoria puede desviarse de tal manera que el núcleo no cambia su número atómico ni su masa atómica. Esta interacción produce primero un núcleo compuesto (excitado), que luego decae (se desintegra) hasta alcanzar un producto final; este proceso se representa en general por:



En el cual: X (núcleo blanco), x (partícula incidente o proyectil), Y (núcleo producto, y (producto emitido), Q (energía liberada). La reacción de absorción de neutrones (n, γ) es llamada absorción radiactiva o captura radiactiva. La absorción de neutrones puede resultar en otras reacciones; (n, p), (n, d), etc. Una reacción muy importante es la reacción de fisión que se simboliza como (n, f).

En la reacción de fisión el neutrón es absorbido y el núcleo receptor se divide, cualquier reacción de absorción diferente a la reacción de fisión es llamada reacción de captura. Las reacciones nucleares con neutrones pueden ser; de dispersión, absorción y fisión, estas reacciones nucleares dependen de la energía del neutrón incidente, del número másico y la sección eficaz del núcleo blanco.

2.2.4.1. Dispersión

a) Reacción de dispersión elástica

Generalmente, una reacción de dispersión elástica de neutrones ocurre cuando un núcleo objetivo emite un solo neutrón después de una interacción neutrón-núcleo. En una reacción de dispersión elástica entre un neutrón y un núcleo objetivo, no se transfiere energía a la excitación nuclear, este tipo de procesos se representa en símbolos como (n, n).

b) Reacción de dispersión inelástica

En una reacción de dispersión inelástica entre un neutrón y un núcleo objetivo, parte de la energía del neutrón incidente se absorbe en el núcleo de retroceso y el núcleo

permanece en el estado excitado. Por lo tanto, mientras el impulso se conserva en una colisión inelástica, la energía cinética del "sistema" no se conserva. El proceso se simboliza como (n, n') . El producto puede ser radiactivo.

c) **Dispersión (n,2n)**

En este tipo de "dispersión" umbral, el núcleo compuesto excitado emite dos neutrones. La energía mínima requerida para que esta reacción se lleve a cabo es de 10 MeV.

2.2.4.2. **Absorción**

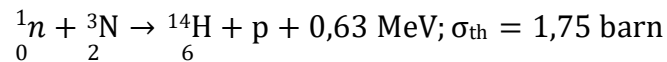
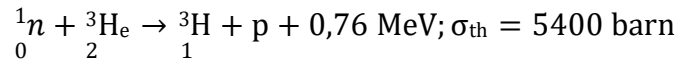
La reacción de absorción de neutrones es el tipo más importante de reacciones que tienen lugar en un reactor nuclear. Las reacciones de absorción son reacciones en las que el neutrón se absorbe por completo y se forma un núcleo compuesto; El nuevo núcleo se encontrará en un estado excitado, con un exceso de energía aproximadamente igual a la suma de la energía cinética inicial del neutrón y la energía de unión. La probabilidad de este proceso es máxima cuando la suma de estas energías es la necesaria para elevar al núcleo compuesto a algunos de sus posibles estados cuánticos excitados. Esta es la característica muy importante, porque el modo de descomposición de dicho núcleo compuesto depende de la energía del neutrón. Por lo tanto, puede seguir una variedad de emisiones o decaimientos, las reacciones de absorción más importantes se dividen por el canal de salida en dos reacciones siguientes:

a) **Captura radiactiva o reacción (n, γ):**

La mayoría de las reacciones de absorción resultan en la pérdida de un neutrón junto con la producción de uno o más rayos gamma. Esto se conoce como una reacción de captura, y su sección transversal se denota por (σ_γ) . Para el rango de neutrones térmicos este tipo de reacción es la más común, disminuyendo la probabilidad con el aumento de la energía del neutrón hasta que se hace despreciable para neutrones rápidos.

b) Reacción tipo (n, p):

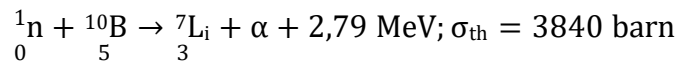
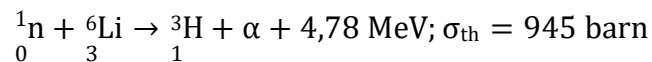
En este tipo de reacción nuclear, el núcleo compuesto formado decae emitiendo un protón. Aunque esta reacción es del tipo umbral, es decir, el neutrón debe tener una energía cinética mínima, hay dos excepciones importantes para neutrones térmicos:



La primera reacción es empleada para detectar neutrones térmicos en las facilidades de dispersión de neutrones, y la segunda, para control de la potencia térmica de un reactor nuclear.

c) Reacción tipo (n, α):

En este tipo de reacción nuclear, el núcleo compuesto formado decae emitiendo una partícula alfa. Esta reacción también es del tipo umbral, sin embargo, como en el caso anterior, presenta excepciones para neutrones térmicos:

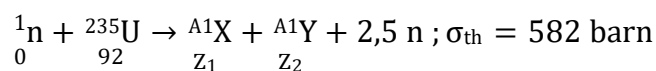


Esta ecuación describe la captura de neutrones en el boro, que se diluye en el refrigerante. El ácido bórico se usa en plantas de energía nuclear como un compensador a largo plazo de la reactividad del combustible nuclear.

2.2.4.3. Fisión

La reacción de fisión inducida por neutrones, consiste en que el neutrón incidente entra en el núcleo objetivo pesado (núcleo fisionable), formando un núcleo compuesto que es excitado a un alto nivel de energía ($E_{\text{excitación}} > E_{\text{crítico}}$) que la del núcleo, dividiéndose en dos grandes fragmentos de fisión. Se libera una gran cantidad de energía en forma de radiación y fragmentos. El proceso de fisión puede producir 2, 3 o más neutrones libres y estos neutrones pueden desencadenar una mayor fisión y dan lugar a una reacción en cadena. Para comprender el proceso de fisión, debemos analizar los procesos que ocurren

dentro del núcleo a ser fisionado. Existen excepciones donde un neutrón térmico es capaz de producir la fisión del núcleo, el más conocido es:



En el cual X e Y representan los productos de la fisión del uranio con sus respectivos (Z, A), la fracción de neutrones producidos es un promedio (2,5).

En general la función de sección transversal $\sigma(n, \gamma)$ o $\sigma(v)$ versus v se puede interpretar como una dependencia $\sigma(v) \approx 1/v$ o $\sigma(E)$ versus E como una dependencia de $\sigma(E) \approx 1/E^{1/2}$ [$\log \sigma(E)$ versus $\log(E)$ es lineal con pendiente $-1/2$], en el cual arriba de eV se superponen varias resonancias, ver figura (2.3), solo algunas reacciones nucleares (n, γ) de interés en AAN, muestran desviación significativa de dependencia $1/v$ en la región debajo de 1,5 eV; (debido a resonancias de baja frecuencia). Tomado de (De Corte et al.,1979).

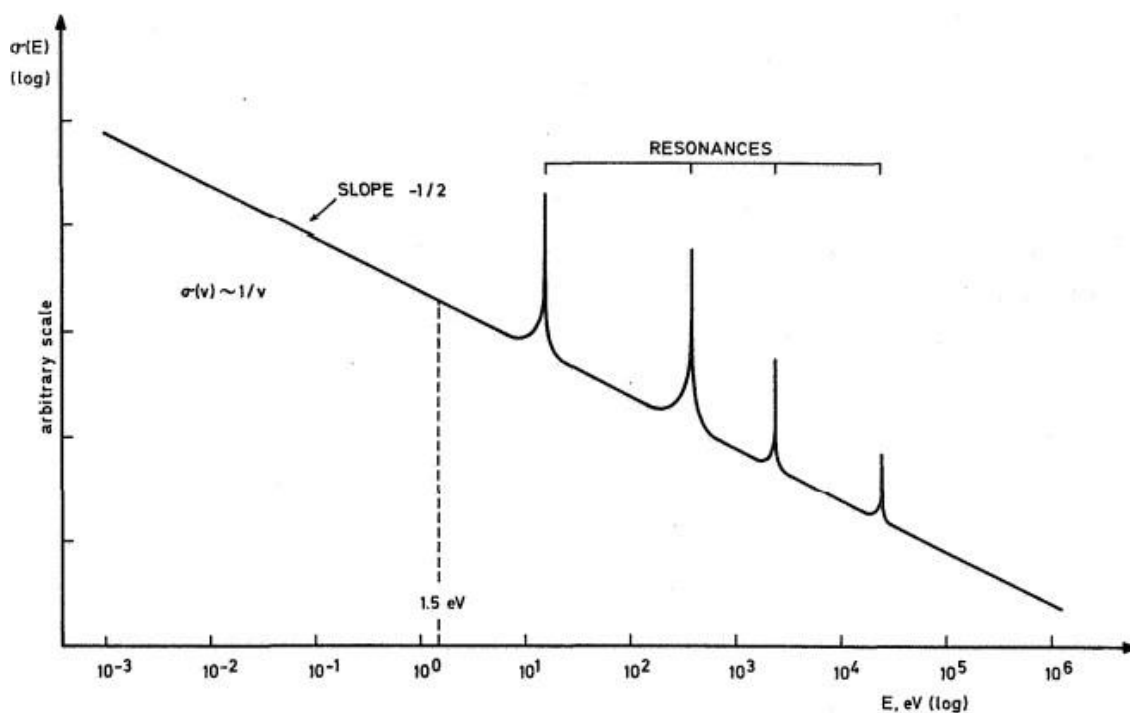


Figura 2.3. Esquema de la función de sección eficaz (n, γ) $\sigma(E)$ versus E
[Fuente: Tomado de (De Corte et al.,1987)]

2.3. Principios del análisis por activación neutrónica

2.3.1. Antecedentes históricos

(Hevesy et al.,1936), desarrolló un método de análisis por activación; y observó que los elementos irradiados con neutrones eran radiactivos, algunos elementos se identificaban por su periodo de semidesintegración que por la energía de radiación emitida. La técnica de análisis de activación de neutrones (AAN) no era aún aplicable debido a que no se disponía flujos de neutrones adecuados. Sin embargo, cuando los reactores de investigación alcanzaron altos flujos, la técnica logró el gran salto. Además, el desarrollo de espectrómetros de rayos gamma de alta resolución como los detectores HPGe acoplados a analizadores de altura de pulso multicanal (MCA) ayudó mucho a explorar las capacidades y ventajas del carácter multi elemental de la técnica.

El desarrollo de la técnica de análisis por activación neutrónica, su impacto en la investigación de elementos traza y sus aplicaciones en ciencias ambientales, así como en la biología, la medicina, la arqueología, la criminología, la geoquímica y la industria están bien documentadas. Siendo ésta una técnica analítica multi elemental muy sensitiva capaz de dar información cualitativa y cuantitativa sobre la composición elemental, mayoritaria, minoritaria y de trazas, de muchos tipos de matrices.

2.3.2. Características del análisis de activación neutrónica

El principio fundamental del análisis por activación se basa en la irradiación de una matriz de muestras con neutrones, que inducen reacciones nucleares con los núcleos de los elementos de la muestra del tipo (n, γ) y los productos de la reacción generalmente son radiactivos y decaen emitiendo radiaciones características (rayos gamma- γ) propias de cada radioisótopo que es la identidad de los elementos a cuantificarse. Los rayos gamma provenientes de tal desexcitación directa son denominados rayos gamma inmediatos (emitidos en un período de tiempo del orden de 10^{-12} s hasta 10^{-16} s). Este fenómeno se puede apreciar en el esquema de la figura (2.4).

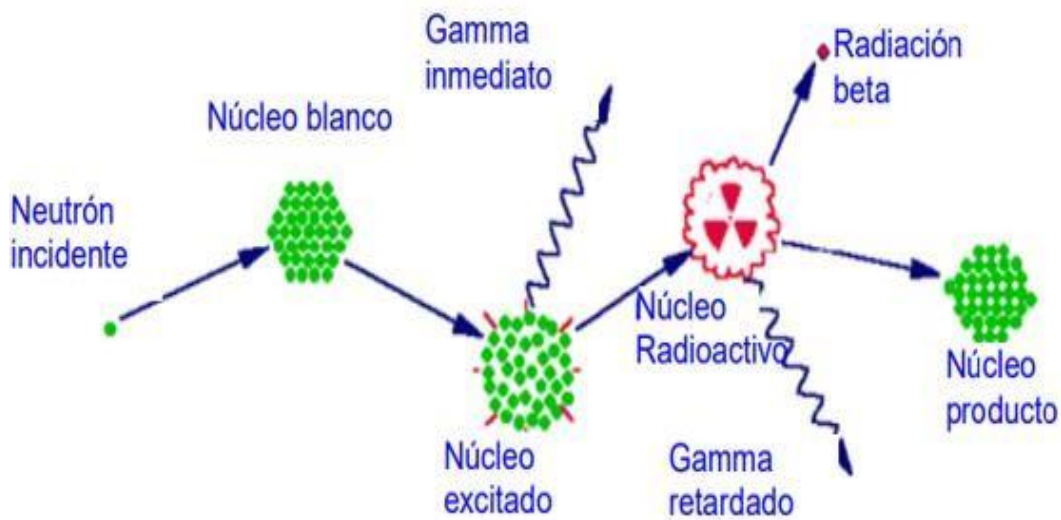


Figura 2.4. Esquema del proceso de interacción neutrónica
 [Fuente: Tomado de http://web.missouri.edu/~umcreactorweb/pages/ac_naa2.shtml]

En la mayoría de los casos esta nueva configuración del núcleo compuesto es aún inestable y buscará desexcitarse (o decaer) emitiendo una o más partículas y rayos gamma secundarios. Dicho proceso o fenómeno es comúnmente denominado radiactividad (o decaimiento radiactivo) y al isótopo inestable se le llama núcleo radiactivo (o radioisótopo).

El proceso de decaimiento ocurre en un tiempo que es característico de cada radioisótopo y que puede tomar desde fracciones de segundo hasta varios años, mientras que la tasa a la que decae una población de radioisótopos, el número de decaimientos por unidad de tiempo, es llamado actividad, tomado de (Miloslav, 1970).

2.3.3. La ecuación general de activación

La actividad (A), se define como la tasa a la que una población de radioisótopos (N) decaen emitiendo una o más partículas de cualquier tipo y se define como:

$$A = \lambda N \quad (2.8)$$

Las unidades de medida de la actividad están dadas en Bequerel (Bq) y/o en Curio (Ci), la equivalencia entre ellas es ($1\text{Bq}=1\text{decaimiento/s}=2,703 \times 10^{-11}\text{Ci}$). (λ) es la constante de decaimiento radiactivo, es característica de cada radioisótopo se mide en (s^{-1}), la cual representa la probabilidad de que un radioisótopo decaiga por unidad de tiempo.

Por otra parte, el número de decaimientos esperados (dN) en intervalo de tiempo (dt) dado es proporcional al número de radioisótopos presentes, se define como:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2.9)$$

Integrando la ecuación (2.9) se obtiene el número de radioisótopos presentes $N(t)$ luego de un tiempo (t) de decaimiento; si en $t=0$, $N(0) = N_0$, se tiene:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.10)$$

Combinando las ecuaciones (2.8) y (2.10), se obtiene la ley del decaimiento radiactivo:

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (2.11)$$

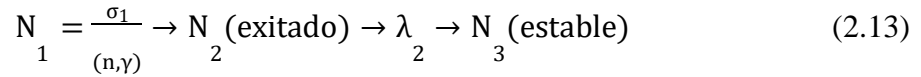
Un parámetro importante es el periodo de semidesintegración $T_{1/2}$ (medido en segundos, minutos, horas, días, años, etc.), definido como el tiempo que ha de transcurrir para que la mitad de los radioisótopos presentes hayan decaído; se expresa como:

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.12)$$

De la ecuación (2.12), este tiempo es característico de la especie radiactiva o radioisótopo. En una interacción nuclear, la carga, la masa y energía de una partícula (o proyectil) incidente determinan su probabilidad de interacción con un átomo objetivo, que se supone que está en reposo. Su masa y la carga también afectan la probabilidad de interacción. Una partícula (s) que proviene del núcleo compuesto también tienen masa, carga y energía cinética que también influye en la probabilidad de cualquier interacción dada. Estos efectos son colectivamente descritos por la sección transversal (sección eficaz) de la interacción, denotada con (σ_i) , donde (i) se refiere al producto de la interacción; esta sección transversal depende del material objetivo y las características de la partícula incidente.

Las unidades de la sección eficaz (σ), están en términos de área aparente por átomo objetivo en barns ($1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2 = 10^{-24} \text{ cm}^2$); se describe como la suma total de las propiedades nucleares que determinan si una reacción nuclear es favorable o no.

Si consideramos una muestra con (N_1) núcleos blancos con sección eficaz (σ), irradiados a un flujo constante de neutrones (Φ); durante el tiempo de irradiación (t_i); de acuerdo a la reacción:



En el cual:

- σ_1 = Sección eficaz de reacción (barn);
- λ_2 = Constante de desintegración(s^{-1});
- N_1 = Núcleos blancos;
- N_2 = Núclido excitado (radioisótopo formado);
- N_3 = Núclido estable.

Entonces si (N_1) es considerado constante; y denotamos como $R = \sigma_1\Phi$ a la tasa de reacción (n, γ), esto es el ritmo con el cual ocurren reacciones del tipo (n, γ) por unidad de tiempo, se tendrán (N_2) radioisótopos formados (con $N_2 \ll N_1$); cuyo incremento en función del tiempo desde el inicio de la irradiación se describe por la ecuación diferencial:

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 \sigma_1 \Phi - \lambda_2 N_2 \quad (2.14)$$

Integrando la ecuación (2.14) entre $t = 0$ y para un tiempo dado de irradiación (t_i), para $N_2 = 0$ a $t = 0$, la solución para N_2 , a cualquier tiempo de irradiación (t_i) es:

$$N_2 = \frac{\Phi\sigma_1 N_1}{\lambda_2} [1 - e^{-\lambda_2 t_i}] \quad (2.15)$$

Combinando la ecuación (2.8) y (2.15), se obtiene la ecuación general de activación:

$$A(t_i) = \lambda_2 N_2 = \Phi\sigma_1 N_1 [1 - e^{-\lambda_2 t_i}] = \frac{6,02 \times 10^{23} w \Phi \theta \sigma_1 (1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t_i})}{M} \text{ (d/s)} \quad (2.16)$$

En el cual:

- $A(t_i)$ = Actividad de N_2 , radioisótopos formados al tiempo (t_i), después de la irradiación;
- N_1 = $\frac{6,02 \times 10^{23} w \theta}{M}$ (Número de átomos del núcleo blanco bombardeado);
- N_A = $6,02 \times 10^{23}$ (Número de Avogadro);
- w = Masa de la muestra irradiada (g, mg o μ g);
- θ = Abundancia isotópica del isótopo que sufre la reacción nuclear;
- M = Masa atómica del elemento considerado; (Miloslav, 1970).

- Φ = Flujo o fluencia de neutrones;
 σ_1 = Sección eficaz de activación (barn; 1 barn = 10^{-24} cm² o 10^{-28} m²);
 R = $\Phi\sigma_1$ (Tasa de reacción nuclear (n, γ));
 t_i = Tiempo de irradiación.

Obsérvese que si el tiempo de irradiación $t_i \rightarrow \infty$, en la ecuación (2.16); entonces se tiene que $(1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t_i}) \rightarrow 1$, de forma que podemos definir la actividad saturada como:

$$A_{\text{sat}} = A(t_i \rightarrow \infty) \equiv N_1 R = N_1 \sigma_1 \Phi \quad (2.17)$$

La cual se interpreta como la actividad máxima posible que se puede inducir en una muestra con N_1 núcleos blancos presentes bajo una tasa de reacción (R), tomado de (IAEA, 1988).

El objeto del Análisis por Activación Neutrónica (AAN), es conocer la actividad justo al término de la irradiación $A(t_i)$. Esto se logra a través de un sistema de detección de la radiación emitida por la muestra; es de interés medir dicho tipo de radiación para poder identificar y luego cuantificar a los radioisótopos formados durante la activación.

La detección y medición de la radiación gamma se desarrolla en la sección (2.5.3), después de irradiar la muestra con neutrones, ésta se traslada del punto de irradiación hacia el sistema de detección de radiación gamma. Como transcurre un tiempo de decaimiento (t_d) entre el fin de la irradiación y el inicio de la detección (o conteo), la actividad de la muestra, se corrige a partir de la ecuación (2.16) como:

$$A(t_d) = A(t_i) e^{-\lambda t_d} \quad (2.18)$$

Como transcurre un tiempo (t_c) durante la medición (o conteo) de la radiación, la actividad de la muestra justo al final del proceso se corrige como:

$$A(t_c) = A(t_d) e^{-\lambda t_c} = A(t_i) e^{-\lambda t_d} e^{-\lambda t_c} \quad (2.19)$$

De las ecuaciones (2.16) y (2.19), la actividad de radioisótopos corregida por decaimiento y conteo se determina por:

$$A(t_c) = \Phi \sigma_1 N_1 (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} e^{-\lambda t_c} \quad (2.20)$$

Si un radioisótopo al decaer tiene una probabilidad (I_γ) de emitir un rayo gamma con cierta energía E, entonces el número de rayos gamma (N_γ) con energía E emitidos por la muestra durante el proceso de detección será:

$$N_\gamma = I_\gamma \frac{[A(t_d) - A(t_c)]}{\lambda} \quad (2.21)$$

Como el sistema de detección tiene una eficiencia ε_p (adimensional) para medir los rayos gamma de energía E, entonces sólo se registrarán $N_p = \varepsilon_p N_\gamma$, rayos gamma con dicha energía durante la medición. La eficiencia ε_p del sistema de detección será discutida en la sección (2.5.4). De lo anterior, la actividad justamente al término de la irradiación $A(t_i)$, es calculada a partir de las ecuaciones (2.18), (2.20) y (2.21), como:

$$A(t_i) = \frac{N_p \lambda}{\varepsilon_p I_\gamma} \frac{1}{e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad (2.22)$$

En el cual:

- N_p = Número de rayos gamma registrados (área neta);
- λ = Constante de decaimiento del radioisótopo (s^{-1});
- ε_p = Eficiencia del detector (adimensional);
- I_γ = Probabilidad de emisión de rayos gamma (%);
- t_d = Tiempo de decaimiento (s);
- t_c = Tiempo de contaje (s).

2.3.4. Determinación de la concentración del analito en la muestra

Como el número de isótopos (número de núcleos) de un elemento dado, para una muestra con masa total w, es:

$$N = \frac{N_A \theta \rho w}{M} \quad (2.23)$$

En el cual:

- N = Número de núcleos de un isótopo;
- M = Masa atómica del elemento;
- θ = Abundancia del isótopo de dicho elemento;
- N_A = Número de Avogadro;
- ρ = Fracción del elemento en la muestra (concentración);
- w = Masa total de la muestra.

De la ecuación (2.23), despejando la variable (ρ) que representa la fracción del elemento en la muestra y se determina por:

$$\rho = \frac{NM}{N_A \theta w} \quad (2.24)$$

Combinando (2.16) con (2.24), se tiene la ecuación que sirve para determinar la fracción del analito (ρ) en la matriz determinado por:

$$\rho = \frac{A(t_i) M}{R N_A \theta w (1 - e^{-\lambda t_i})} \quad (2.25)$$

En el cual:

ρ = Fracción del elemento en la muestra (matriz) a analizar;

$A(t_i)$ = Actividad específica de la muestra al término de la irradiación;

R = $\Phi \sigma$ (Tasa de Reacción (n, γ));

M = Masa atómica del elemento;

θ = Abundancia del isótopo de dicho elemento;

N_A = Número de Avogadro;

w = Masa total de la muestra;

t_i = Tiempo de irradiación en el análisis,

λ = Constante de decaimiento del radioisótopo (s^{-1}).

Los parámetros (M, θ, N_A, λ) se toman de la literatura, por ser constantes nucleares, combinando las ecuaciones (2.16) y (2.25), la fracción (ρ) del analito en la muestra se determina por:

$$\rho = \frac{(N_p \lambda) M}{w e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) (1 - e^{-\lambda t_i}) N_A \theta I_\gamma s_p R} \quad (2.26)$$

Donde (N_p), será corregido por pérdidas debido a fenómenos de coincidencia y tiempo muerto de detección. Si se define el parámetro T , relacionado con la dependencia temporal (parámetro temporal), como:

$$T = e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (2.27)$$

Usando la ecuación (2.27), la ecuación (2.26), se puede reescribir de la siguiente forma:

$$\rho = \left[\frac{N_p}{T_w s_p} \right] \left[\frac{\lambda M}{N_A \theta I_\gamma} \right] \frac{1}{R} \quad (2.28)$$

Por definición, $[N_p/T_w s_p]$ es una cantidad conocida experimentalmente y $[\lambda M/N_A \theta I_\gamma]$ es constante; entonces para poder determinar la fracción (ρ) del analito en la muestra, se requiere determinar la tasa de reacción (R) para una reacción nuclear (n, γ), tomado de (Arboccó, 2007).

(Hogdahl, 1965) señala que para la activación nuclear se debe utilizar preferentemente la reacción nuclear (n, γ) producida por neutrones térmicos y epitérmicos, el reactor nuclear ofrece las ventajas de una mayor sensibilidad analítica (alto flujo) y la activación de muchos nucleidos (amplio espectro).

Según la convención de (Hogdahl, 1965), en el reactor nuclear, la velocidad de reacción por núcleo (tasa de reacción), R (en s^{-1}), de un nucleido se define como:

$$R = \int_0^\infty \sigma(v)\Phi(v)dv = \int_0^\infty \sigma(E)\Phi(E)dE \quad (2.29)$$

En el cual:

$\sigma(v)$ = Sección eficaz de reacciones (n, γ) en (barn), para neutrones con v (cm/s);

$\sigma(E)$ = Sección eficaz de reacciones (n, γ) en (barn), para neutrones de energía E [eV];

$\Phi(v)$ = Flujo de neutrones en $[cm^{-3}]$, para una velocidad v del neutrón;

$\Phi(E)$ = Flujo de neutrones en $[cm^{-2}s^{-1}eV^{-1}]$, para una energía E del neutrón.

De la ecuación (2.29), determinar la tasa de reacción de nuclear (R en s^{-1}), no es simple; porque no conocemos la forma de las funciones integrables de $\sigma(E)$ y $\Phi(E)$.

Sin embargo, existen convenciones que simplifican esta dificultad; siendo la convención de (Hogdahl, 1965), una de las más empleadas en ENAA. Esta convención se basa en el hecho experimental de que, si una muestra es irradiada en una cápsula de cadmio de 1 mm de grosor, la cápsula absorberá completamente los neutrones de energías por debajo de la energía de corte, $E_{Cd} = 0,55$ eV (sub cádmicos), permitiendo que los de energías más

altas (epicádmicos) pasen libremente. Por lo tanto, la velocidad de reacción por núcleo, según (Bode,1996), está dado por:

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v)\phi(v)dv = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v)\phi(v)dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\phi(v)dv \quad (2.30)$$

En el cual:

$$v_{Cd} = \sqrt{\frac{2E_{Cd}}{m_n}} \text{ (velocidad del neutrón a la energía de corte de cadmio (} E_{Cd} = 0,55\text{eV}).$$

Para reacciones (n, γ) sin resonancias por debajo de 0,55eV (que significa factor de Westcott $g = 1$), como $\sigma(v) \sim 1/v$ hasta v_{Cd} [de hecho, hasta los $\sim 1,5$ eV];

$\sigma(v) = \frac{\sigma_0 v_0}{v}$ [de la convención de (Wescott, 1955); con σ_0 definida como la sección eficaz de reacción (n, γ) del isótopo para una velocidad del neutrón de $v_0 = v(\sim 293^\circ\text{K})$, los valores de σ_0 pueden ser encontrados en la literatura, para diversas reacciones (n, γ)];

$\Phi(v) = n(v)v$ (Densidad de flujo térmico).

Reemplazando: $v_{Cd} = \sqrt{\frac{2E_{Cd}}{m_n}}$ y $\Phi(v) = n(v)v$ en (2.30), se tiene la tasa de reacciones de la contribución de neutrones térmicos:

$$\int_0^{v_{Cd}} \sigma(v)\Phi(v)dv = \int_0^{v_{Cd}} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \Phi(v)dv = \sigma_0 \frac{v_0}{v} \int_0^{v_{Cd}} n(v)dv = \sigma_0 \Phi_{th} = R_{th} \quad (2.31)$$

Donde, el flujo de neutrones térmicos convencional, Φ_{th} en [$\text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$], está dado por:

$$\Phi_{th} = v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv \quad (2.32)$$

La última integral de la ecuación (2.30), puede ser escrita como:

$$\int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\Phi(v)dv = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\Phi(E)dE = R_{epi} \quad (2.33)$$

Considerando la ecuación (2.5), donde $\Phi(E) \sim \frac{1}{E^{1+\alpha}}$; para energías mayores que 0,35 eV, el flujo de neutrones epitérmicos; descrito por (De Corte et al.,1979), como:

$$\Phi_e(E) = \Phi(E_{ref}) \frac{(E_{ref})^\alpha}{E^{1+\alpha}} \quad (2.34)$$

En el cual:

E_{ref} = Es una energía de referencia escogida arbitrariamente (usualmente, por convención 1eV), reemplazando la ecuación (2.34) en (2.33) se tiene:

$$\int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\Phi(E)dE = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{(E_{ref})^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} [\Phi(E_{ref})E_{ref}]dE = I_0(\alpha)\Phi_{epi} = R_{epi} \quad (2.35)$$

En el cual:

$I_0(\alpha)$ = Integral de resonancia;

Φ_{epi} = Flujo de neutrones epitérmicos convencional, en [$ncm^{-2}s^{-1}$].

Con:

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{(E_{ref})^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (2.36)$$

Y luego se tiene la ecuación siguiente para el flujo epitérmico como:

$$\Phi_{epi} = \Phi_{epi}(E_{ref})E_{ref} \quad (2.37)$$

Es posible sustituir las ecuaciones (2.31) y (2.35) en la ecuación (2.30) y expresar la velocidad de reacción (tasa de reacción) por núcleo objetivo como la contribución térmica y epitermal de neutrones definidos por la convención siguiente de (Hogdahl,1965).

$$R = R_{th} + R_{epi} = \Phi_{th}\sigma_0 + \Phi_{epi}I_0(\alpha) \quad (2.38)$$

2.3.5. Método de estandarización K_0

El método de estandarización K_0 -ENAA, fue desarrollado por (Simonits et al.,1975); en el Instituto de Ciencias Nucleares en Gate-Bélgica; como una alternativa de los métodos de análisis por activación absoluta y comparativa, consiste en la parametrización de los datos experimentales y teóricos del método absoluto, en una sola cantidad que se determinan rápidamente; el procedimiento para la determinación de la concentración de un analito en una muestra, es irradiar la muestra conjuntamente con el estándar de oro (comparador), eliminando la necesidad de estándares para cada analito estudiado.

Este método se implementó en el instituto de energía nuclear (IPEN), desde mediados de 1994, tomado de (Montoya et al.,2010).

La ecuación paramétrica usa algoritmos de cálculo de concentraciones en una hoja electrónica de Excel, dada por:

$$Q_a = \frac{(Np/wt_{mSDC})_a k_{0,Au}(c) s_c f(\alpha) + Q_{0,c}(\alpha)}{(Np/wt_{mSDC})_c k_{0,Au}(a) s_a f(\alpha) + Q_{0,a}(\alpha)}$$

Los subíndices a y c se refieren al analito y comparador respectivamente.

(Simonits et al.,1980), presentaron el método de K_0 , donde definen el factor k_0 de un isótopo de elemento a analizar, con referencia al comparador de oro (Au), como:

$$k_{0,Au}(a) = \frac{M_{Au} \theta_a I_{\gamma a} \sigma_{0,a}}{M_a \theta_{Au} I_{\gamma Au} \sigma_{0,Au}} \quad (2.39)$$

En el cual:

El índice “a” = Representa el analito (elemento de muestra a analizar);

El índice “Au” = Es para el comparador de oro (y se refiere a la reacción $^{197}\text{Au} (n, \gamma)^{198}\text{Au}$, con $E_\gamma = 411,8 \text{ keV}$ y $K_{0,Au} = 1$);

M = Masa atómica del elemento irradiado;

I_γ = Probabilidad de emisión gamma por descomposición para transición considerada;

σ_0 = La sección eficaz para neutrones térmicos (a $v=2200 \text{ m/s}$).

Este método requiere la caracterización precisa de irradiación y detección, el uso de constantes nucleares de la literatura (factores k_0 , Q_0 y constantes de desintegración); así como la determinación de parámetros necesario para calcular la actividad de las muestras irradiadas (eficiencia de detección e intensidades gamma).

La caracterización precisa de la instalación de irradiación requiere determinar la relación entre neutrones térmicos y epitérmicos (f) y el parámetro (α), relacionado con la distribución del flujo de neutrones epitérmicos, aproximadamente dada por $\frac{1}{E^{1+\alpha}}$. Es una medida del flujo de neutrones epitérmicos que tiene un comportamiento ideal $1/E$. Estos parámetros son característica de la posición de irradiación en el reactor nuclear; así mismo un parámetro de gran importancia a determinar es la eficiencia de detección en el rango de energía de interés y la geometría de la disposición experimental, además; las constantes nucleares k_0 y $Q_0 = I_0/\sigma_0$, donde I_0 es la integral de resonancia para la reacción (n, γ),

que se necesita conocer para la determinación de la concentración de un elemento particular en la muestra.

Usando el método Ksubcero (K_0), la concentración (ρ) puede calcularse mediante la ecuación:

$$\rho_a = \frac{A_{sp,a}}{A_{sp,Au}} \frac{s_{p,Au}}{s_{p,a}} \frac{1}{k_{0,Au}(a)} \frac{(G_{th,Au})f + (G_{e,Au})Q_{0,Au}(\alpha)}{(G_{th,a})f + (G_{e,a})Q_{0,a}(\alpha)} \quad (2.40)$$

Y la actividad específica se define como:

$$A_{sp} = \frac{N_p/t_m}{wSDC} \quad (2.41)$$

En el cual:

A_{sp} = Tasa de conteo específica;

N_p = Número de recuentos netos bajo la absorción total máxima energía en el rango considerado durante el tiempo de medición t_m ;

w = Masa de la muestra irradiada o comparador;

t_m = Tiempo de medición (s);

S = $(1 - e^{-\lambda t_i})$ (Factor de saturación);

λ = La constante de decaimiento;

t_i = Tiempo de irradiación en segundos;

D = $e^{-\lambda t_d}$ (Factor de decaimiento);

t_d = Tiempo de decaimiento en segundos;

C = $\frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda t_m}$ (Factor de contaje);

t_m = Tiempo de medición en segundos;

ϵ_p = Eficiencia de detección de energía máxima E_γ ;

$k_{0,Au}(a)$ = Factor k_0 para el isótopo analizado, con referencia al comparador de oro;

G_{th} = Factor de corrección de auto blindaje para neutrones térmicos (≤ 1);

G_e = Factor de corrección de auto blindaje para neutrones epitérmicos (≤ 1);

f = $\frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}}$ (Relación entre los flujos térmicos y epitérmicos);

Q_0 = $\frac{I_0}{\sigma_0}$ (Relación de integral de resonancia y la sección eficaz para neutrones térmicos).

Debemos precisar algunos factores de corrección de la ecuación (2.40), que describe a G_{th} y G_e como:

1. G_{th} (≤ 1), para la auto absorción de neutrones térmicos en la muestra; es decir cuando el flujo neutrónico en la muestra se reduce drásticamente, por la alta absorción de neutrones por los isotopos que contiene, este efecto de matriz depende de la densidad nuclear, del espesor de la muestra y de la sección eficaz σ_0 .
2. G_e (≤ 1), Para la auto absorción de neutrones epitérmicos por parte de la muestra, el cual depende, al igual que en el caso anterior, de la densidad nuclear, del grosor de la muestra y de ciertos parámetros de resonancia.

2.3.6. Incertidumbres en el método de estandarización K_0

A) Debido a las incertezas de Q_0 , f , α , ϵ_p , k_0 :

Es difícil dar en general una descripción final de la precisión del método de estandarización K_0 , de hecho la precisión depende de varios parámetros descritos en la sección (2.3.5); así como la magnitud de Q_0 , f y α , la geometría de contaje y la gravedad de los efectos de coincidencia real, el uso de las constantes nucleares, las masas medidas, la contribución de incertidumbres de la balanza usada, la humedad en las muestras y comparador, las masas medidas de la muestra y comparador, el uso del cronómetro para establecer el periodo de contaje, etc. Sin embargo, es necesario estimar en gran medida la precisión, basándose en consideraciones con respecto a las incertidumbres inducidas por los pasos y parámetros relevantes. En cuanto a la contribución en las incertezas debido a los parámetros usados, mencionaremos lo recomendado por (De Corte et al.,1987).

Para condiciones “promedio” de irradiación y conteo de reacciones (n , γ), con valores de Q_0 medidos y sin dificultades especiales de [interferencia (n , n'), g (T_n) $\neq 1$, etc.]. El resultado de incertidumbres estimados para (AAN), que se resumen en la tabla (2.1).

Tabla 2.1. Incertidumbres estimadas para estandarización K_0

Incertidumbres en el resultado del análisis	
Inducido por	Contribución
k_0	$\approx 1 \%$
Q_0	$\approx 1 \%$
α	$\approx 1.5 \%$
f	$\approx 1 \%$
Conversión y medición de ϵ_p	$\approx 2 \%$
Corrección de coincidencia real	$\approx 1.5 \%$
Total (suma en cuadratura)	$\approx 3.5 \%$

B) Incertidumbres aleatorias

El parámetro principal que se utiliza en la medición de una magnitud física es la incertidumbre de la medición asociada a la medida, se tienen:

Incertidumbre de Medida: Cantidad asociada al resultado de la medición determinada, caracteriza la dispersión respecto al valor hallado.

Magnitudes de Entrada (x_i): Pueden ser aquellas que se determinan durante la medición y desde allí se obtienen sus incertidumbres. También pueden provenir de fuentes externas como manuales, certificados, etc.

Valor Estimado: Son los resultados obtenidos en las mediciones, así que el estimado de la magnitud se obtiene de la relación del modelo usado.

Varianza, Desviación Estándar: Si las variables de entrada (x) y la magnitud de salida (y) siguen distribuciones determinadas de probabilidad, el indicador de dispersión sería la varianza y la desviación estándar (raíz cuadrada de la varianza).

Evaluación de incertidumbre estándar tipo aleatorio: Estas fuentes provienen de la aleatoriedad de la variable y puede ser evaluada por métodos estadísticos. Si tenemos una variable medida “n” veces, bajo las mismas condiciones y por el mismo observador se puede demostrar que el valor promedio de todos los valores observados será:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (2.42)$$

En el cual: x_i = son los valores observados, y la incertidumbre asociada al valor promedio es la desviación estándar de la media, definida como:

$$\sigma_x = \left\{ \frac{\sum_i^n [x_i - \bar{x}]^2}{n(n-1)} \right\}^{1/2} \quad (2.43)$$

El coeficiente de variación: Es la relación entre el tamaño de la media y la variabilidad del detalle, se calcula dividiendo la desviación estándar entre la media, lo que multiplicado por 100 nos ofrece un porcentaje, el coeficiente de variación se define como:

$$CV = \frac{\sigma_x}{\bar{x}} \quad (2.44)$$

C) La determinación de incertidumbre combinada:

La incertidumbre combinada $u_c(y)$ para magnitudes no correlacionadas, como en nuestro caso particular, se determina mediante la siguiente ecuación:

$$u_c(y) = \sqrt{\sum U_i(y)^2} \quad (2.45)$$

En el cual $U_i(y)$ son las contribuciones de incertidumbre que se definen de la siguiente manera:

$$U_i(y) = C_i U(x_i) \quad (2.46)$$

El término C_i es llamado coeficiente de sensibilidad ($C_i = \frac{\partial f}{\partial x_i}$), siendo “f” un modelo matemático del mensurando.

D) La determinación de incertidumbre expandida:

Se halla multiplicando la incertidumbre estándar por un factor de cobertura (k):

$$U = k U_c(y) \quad (2.47)$$

Donde k, se elige por el nivel de confianza de la medición. En general, k tomará valores de 2 o 3 si se requiere un nivel de confianza de aproximadamente 95 % o 99 % respectivamente, según (De Corte et al.,1987).

2.4. Análisis por activación con neutrones epitérmicos (ENAA)

El análisis de activación por neutrones epitérmicos, se emplea actualmente en pocos laboratorios radio analíticos. Este tipo de análisis de activación logra la misma confiabilidad

que el análisis por activación neutrónica convencional y amplía el número de elementos que se pueden medir instrumentalmente en materiales biológicos, rocas silíceas y carbón; utilizando cadmio como filtro de irradiación. Las propiedades nucleares de Cd son idóneas como filtro de neutrones; es decir tiene una sección transversal muy alta (1990 barns) para ^{113}Cd y una fuerte disminución en la sección transversal ver figura (2.5), de aproximadamente 0.4 eV, definida como la “energía de corte de Cd”, que hace que este filtro sea transparente a los neutrones epitérmicos e impenetrable para los neutrones térmicos. Sin embargo, la desventaja de usar Cd como filtro es la alta radioactividad inducida en el contenedor, que produce problemas de seguridad radiológica en la extracción y manipulación de muestras irradiadas que imposibilita la determinación de radionucleidos de periodo corto, así como el reúso del contenedor. En cambio, el boro que tiene alta sección eficaz térmica y baja absorción epitérmica parece ser adecuado como sustituto del Cd en ENAA. Con el incremento de la energía de los neutrones, la sección transversal de ^{10}B , disminuye monótonamente siguiendo la “ley $1/v$ ” (v = velocidad del neutrón) y no muestra una energía de corte nítida en contraste con ^{113}Cd , ver figura (2.5); por lo que la disminución de la sección transversal monótona es suficiente para permitir el uso efectivo del ^{10}B como filtro para ENAA.

La principal ventaja del boro como filtro de neutrones es el hecho que los productos de reacción de captura de neutrones térmicos, ^7Li y ^4He , no son radiactivos, según la reacción nuclear:

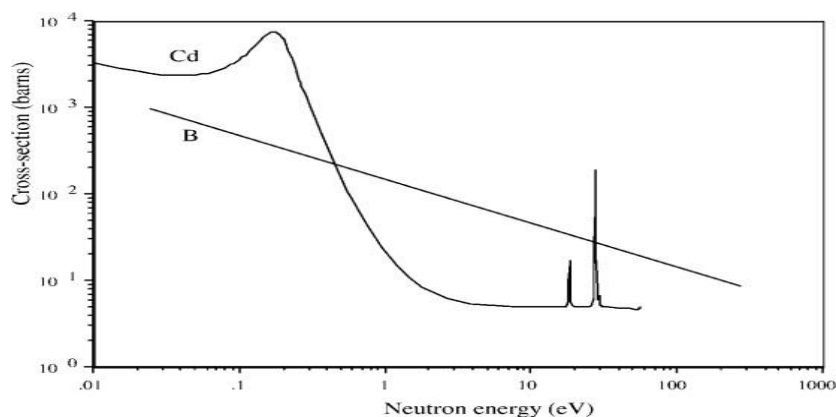
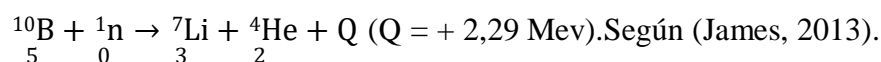


Figura 2.5. Sección transversal de absorción de neutrones versus energía para Cd y B
[Fuente: Tomado de (James, 2013)]

2.4.1. Ventajas de uso de neutrones epitérmicos

En el análisis de activación, es importante que la actividad inducida en la muestra sea tal que el análisis espectral permita la determinación cuantitativa y la identificación del número de elementos presentes. En la mayoría de los casos, la actividad de los elementos presentes en la matriz, o incluso de algunas impurezas predominantes, no permiten observar la señal espectral de radioisótopos de interés de elementos presentes en bajas concentraciones debido al efecto de interferencia espectral tipo Compton producido por elementos predominantes como el ^{24}Na y ^{28}Al . La activación selectiva por medio de neutrones epitérmicos puede favorecer los análisis de las reacciones nucleares que producen los radioisótopos de interés que tiene una alta integral de resonancia en comparación con la sección eficaz para neutrones térmicos. (Brune et al.,1964), definió un "factor de ventaja" "*Advantage Factor = Fa*"; dada por la siguiente expresión:

$$F_a = \frac{(R_{Cd})_i}{(R)_{Cd,a}} \quad (2.49)$$

En el cual:

$(R_{Cd})_i$ = Razón de cadmio del nucleido interferente;

$(R)_{Cd,a}$ = Razón de cadmio del nucleido (analito) a analizar.

Es necesario examinar las razones de cadmio de los elementos implicados para poder definir si conviene o no la activación por neutrones epitérmicos. La razón de cadmio R_{Cd} , puede determinarse experimentalmente o calcularse mediante la ecuación deducida por (Brune et al.,1964), esta razón se define como la relación entre la actividad obtenida para el flujo total de neutrones entre la actividad obtenida solo por el flujo epitérmico por unidad de tiempo y en la misma posición de irradiación, se define por:

$$R_{Cd} = \frac{\Phi_{th}\sigma + \Phi_{epi}(I+0,44\sigma)}{\Phi_{epi}(I+0,44\sigma)} \quad (2.50)$$

Para conocer el orden de magnitud del flujo epitérmico, en un punto dado del reactor, se acostumbra a medir la "razón de cadmio" que corresponde al oro (R_{Cd}^{Au}); si se conoce σ (sección transversal neutrones térmicos) e I (integral de resonancia, neutrones epitérmicos), para un determinado nucleido es fácil de conocer su razón de cadmio a través de la expresión:

$$R_{Cd} = 1 + \frac{\sigma(0,44\sigma^{Au} + I^{Au})}{\sigma^{Au}(0,44\sigma + I)} (R_{Cd}^{Au} - 1) \quad (2.51)$$

Es importante tener en cuenta que el espesor del revestimiento de cadmio utilizado puede influir en el valor de la relación de cadmio, si el núclido que se está examinando tiene picos de resonancia para neutrones con energías cercanas al límite de absorción.

(Radulovic et al.,2016), define la razón del cadmio y boro como:

$$R_{Cd} = \frac{A_{bare}}{A_{Cd}} \quad , \quad R_B = \frac{A_{bare}}{A_B} \quad (2.52)$$

En el cual:

A_{bare} = Actividad específica normalizada de la muestra desnudo;

A_{Cd} = Actividad específica normalizada de la muestra con cubierta de cadmio;

A_B = Actividad específica normalizada con cubierta de boro (nitruro de boro).

De la ecuación (2.49) y la ecuación (2.52), haciendo la extensión para cubierta de boro (BN); se determina el factor de ventaja (o ganancia), para la irradiación en contenedores con filtro de nitruro de boro como:

$$F_a = \frac{(R_B)_i}{(R)_B} = \frac{\left(\frac{A_{bare}}{A_B}\right)_i}{\left(\frac{A_{bare}}{A_B}\right)_{B,a}} \quad (2.53)$$

En el cual:

El subíndice i = Se refiere al elemento interferente;

El subíndice a = Se refiere el analito (elemento a analizar).

2.4.2. Determinación de la concentración usando el filtro de boro

Si deseamos expresar la cantidad del analito en la muestra en términos de su concentración ρ_a ($\mu\text{g/g}$), será necesario hacer la extensión de la ecuación (2.40), para análisis de activación epitérmica (ENAA), usando filtro de cadmio y se puede expresar en términos de ($\mu\text{g/g}$), según (De Corte et al.,1987), como:

$$\text{ENAA} : \quad \rho_a, \text{ppm} = \frac{\left[\left(\frac{N_p}{t_m}\right)_{Cd}\right]_a}{\left[(A_{sp})_{Cd}\right]_m} \cdot \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,c}(a)} \cdot \frac{F_{Cd,m} G_{e,m} Q_{0,m}(\alpha)}{F_{Cd,a} G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,m}}{\epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.54)$$

En el cual, los subíndices a y m se refieren al analito y comparador respectivamente, y F_{Cd} es el factor de transmisión para neutrones epitérmicos; explica el hecho de que la tasa

de recuento $(A_{sp})_{Cd}$ de un radionucleido cubierto de cadmio es, en algunos casos significativamente diferentes de $(A_{sp})_e$, la tasa de recuento específico del radionucleido desnudo que sería inducido por los neutrones epitérmicos que abarcan el rango de energía correspondiente. Aquí F_{Cd} se define como:

$$F_{Cd} = \frac{(A_{sp})_{Cd}}{(A_{sp})_e} \quad (2.55)$$

De la ecuación (2.55), hacemos una extensión para el factor de boro, hallando una relación que corrige los resultados determinados por la ecuación (2.40), calculados en el algoritmo de la Macro en Excel del laboratorio-TEAN, y se define como:

$$F_B = \frac{(A_{sp,B})_{Au}}{(A_{sp,e})_a} \quad (2.56)$$

En el cuál:

$(A_{sp,B})_a$ = Actividad específica con cubierta de boro del analito;

$(A_{sp,e})_a$ = Actividad específica sin filtro de boro del analito;

$(A_{sp,B})_{Au}$ = Actividad específica con cubierta de boro del comparador (Au);

$(A_{sp,e})_{Au}$ = Actividad específica sin filtro de boro del comparador (Au).

Teniendo en cuenta la ecuación (2.40), se aplica para el estudio ENAA usando boro (BN) como filtro de neutrones térmicos, como:

$$\rho_a(\text{ppm}) = \left[\frac{A_{sp,a}}{A_{sp,Au}} \right] \frac{s_{p,Au}}{s_{p,a}} \frac{1 \times 10^6}{k_{0,Au}(a)} \frac{(G_{th,Au})f + (G_{e,Au})Q_{0,Au}(\alpha)}{(G_{th,a})f + (G_{e,a})Q_{0,a}(\alpha)} \quad (2.57)$$

En el cual:

$A_{sp} = \frac{N_p(t_v)}{w_{SDC}}$ (Actividad específica normalizada);

t_v = Tiempo vivo;

t_r = Tiempo real.

$k_{0,Au}$ = Se determina con la ecuación (2.39);

$$\begin{aligned} \varepsilon_{p,Au} &= \text{Eficiencia relativa para el pico de energía de } E_\gamma = 411,8 \text{ keV del } ^{198}\text{Au}; \\ \varepsilon_{p,a} &= \text{Eficiencia relativa para el pico de energía del radioisótopo analizado}; \\ f &= \frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}} \text{ (Razón de flujos, se determina experimentalmente);} \\ Q_0 &= \frac{I_0}{\sigma_0} \text{ (Razón entre la integral de resonancia y sección eficaz para; } v = 2200 \text{ m/s).} \end{aligned}$$

De las ecuaciones (2.56) y (2.57) se sigue que, para el desarrollo y aplicación del método de estandarización K_0 , en la determinación de las concentraciones de las matrices silíceas analizadas se requiere determinar previamente los parámetros de flujo neutrónico, en la posición de irradiación, a saber:

- Cálculo experimental de la razón de flujos (f);
- Cálculo experimental del valor de (α);
- Cálculo de Q (α);
- Cálculo eficiencias (ε_p) para la configuración geométrica, muestras-detector;
- Uso de factores k_0 referenciales, compilados;
- Corrección de N_p por pérdidas debido a fenómenos de coincidencia, tiempo muerto de detección e interferencias de rayos gamma respectivamente;
- Correcciones de eficiencia;
- Correcciones por factor de boro (BN).

2.4.3. Determinación de los parámetros del espectro de neutrones f y α .

Para aplicar el método de estandarización K_0 , se desarrollan procedimientos prácticos y precisos que considere la distribución epitérmica del flujo neutrónico. Se observa que la dependencia de $\approx 1/E^{1+\alpha}$ del espectro epitérmico, con $\alpha \neq 0$ es una regla general descrita por (Ryves, 1969). Si se irradian conjuntamente el estándar de oro (índice Au) y el analito (índice a) con una cubierta de Boro (índice B) y sin ella, se pueden determinar los factores k_0 sin la necesidad de introducir f y Q (α) (Girardi et al., 1965).

$$k_{0,Au}(a) = \frac{A_{sp,Au} - (A_{sp,Au})_B}{A_{sp,a} - (A_{sp,a})_B} \frac{G_{th,a}}{G_{th,Au}} \frac{S_{p,a}}{S_{p,Au}} \quad (2.58)$$

Hay dos formas de obtener de manera experimental el valor de la relación del flujo térmico sobre el epitérmico (f), en cualquier canal de un determinado reactor:

- a) La relación de cadmio y
- b) Los métodos multi-isotópicos.

a) Método de relación de cadmio:

$$f = (F_{Cd}R_{Cd} - 1)Q_0(\alpha) \frac{G_e}{G_{th}} \quad (2.59)$$

En el cual:

$R_{Cd} = \frac{A_{sp}}{(A_{sp})_{Cd}}$ (La razón de cadmio, relación entre la actividad específica del radionúclido irradiado sin recubrimiento de cadmio y la actividad específica del radionúclido irradiado con recubrimiento de cadmio);

F_{Cd} = Factor de transmisión epitérmica de cadmio.

Este método es muy sencillo, pero tiene el inconveniente que el flujo de neutrones térmicos varía significativamente no sólo a lo largo del canal, sino en un mismo contenedor de muestras y por lo menos cada contenedor requeriría más de una pareja de monitores de oro (con cadmio y sin cadmio), complicando el procedimiento del análisis.

b) Método bi-isotópico de (Simonits et al., 1980), usando la ecuación (2.39) para dos isótopos (índice a, b), se puede obtener f, recordando que $k_{0,a}(a)/k_{0,c}(b) = k_{0,b}$ mediante:

$$f = \frac{G_{e,a} \frac{k_{0,c}(a)\epsilon_a}{k_{0,c}(b)\epsilon_b} Q_a(\alpha) - G_{e,b} \frac{A_{sp}(a)}{A_{sp}(b)} Q_b(\alpha)}{G_{t,b} \frac{A_{sp}(a)}{A_{sp}(b)} - G_{t,a} \frac{k_{0,c}(a)\epsilon_a}{k_{0,c}(b)\epsilon_b}} \quad (2.60)$$

Obsérvese que ahora el problema se ha trasladado a la determinación de (α) y la consecuente evaluación de $Q(\alpha)$. Como se determinó en (2.35) y de (2.36), $Q(\alpha)$ se define como:

$$Q(\alpha) = \frac{I(\alpha)}{\sigma_0} = \frac{(1eV)^\alpha}{\sigma_0} \int_{E_{Cd}} \frac{\sigma(E) dE}{E^{1+\alpha}} \quad (2.61)$$

Si se determina α , entonces será posible realizar la integración de (2.54). Sin embargo, si no se conoce la función $\sigma(E)$, podría llevarnos a una incertidumbre en la determinación de $Q(\alpha)$. Por lo que, parece más adecuado calcular $Q(\alpha)$ de una manera sencilla, tabulando los valores $Q(\alpha = 0)$ compilados en la literatura, a través del cálculo de α , a valores $Q(\alpha)$, hallados en (Ryves, 1969).

Para poder determinar ello, es necesario la introducción del concepto de Energía de Resonancia Efectiva (\bar{E}_r) tomado de (Jovanovic et al.,1985).

Esta energía sería la de una hipotética resonancia simple que da como resultado la misma tasa de reacción (n, γ) por resonancia que las verdaderas resonancias del isótopo. Por lo que, \bar{E}_r debe depender de la distribución de flujo neutrónico epitérmico, y por lo tanto de α , y se denota como $\bar{E}_r(\alpha)$. Y se define como:

$$\bar{E}_r(\alpha)^{-\alpha} = \frac{I'(\alpha)}{I'(\alpha = 0)} \quad (2.62)$$

En el cual:

$I'(\alpha)$ y $I'(\alpha=0)$; son denominadas como las integrales de resonancia reducidas (al substraerse el comportamiento $\sim 1/v$). En términos de la expresión de (Breit et al.,1936).

$$\bar{E}_r(\alpha)^{-\alpha} = \frac{1}{\sum_i w_i} \sum_i w_i (E_{r,i})^{-\alpha} \quad (2.63)$$

Con: $w_i = \left(\frac{z\Gamma_\gamma\Gamma_n}{\Gamma}\right)/E_{r,i}^2$

En el cual:

z = Factor de peso estadístico (adimensional);

Γ_γ = Anchura de resonancia radiante en (eV);

Γ_n = Anchura de resonancia neutrónica en (eV);

Γ = Anchura de resonancia total en (eV);

$E_{r,i}$ = i-ésima resonancia del isótopo en (eV).

Ha sido demostrado, que $\bar{E}_r(\alpha)$ puede ser aproximado por un valor \bar{E}_r independiente de α , calculado como:

$$\ln(\bar{E}_r) = \frac{1}{\sum_i w_i} \sum_i w_i \ln(E_{r,i}) \quad (2.64)$$

Por todo lo anterior, la conversión $Q(0) \rightarrow Q(\alpha)$ puede ser escrita:

$$Q(\alpha) = (Q(0) - 0,249)\bar{E}_r^{-\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha+1)(0,55)^\alpha} \quad (2.65)$$

En 1979 una primera generación de valores \bar{E}_r para 96 isótopos de interés analítico fue publicada por (Moens, 1979). El cálculo se realizó en base a la ecuación (2.64) y en los

parámetros de resonancia. En 1986, una segunda generación de valores \bar{E}_r fue computada para 126 isótopos de interés analítico (Jovanovic et al.,1984). Con esto, la determinación experimental de α (in situ) puede lograrse por vías del método de los multi monitores, metodo adoptado en el presente trabajo (De Corte et al.,1979).

Un conjunto de N comparadores (mono estándares; índice j=1, 2, N) son irradiados conjuntamente con un comparador de referencia (mono estándar; índice r), bajo todo el espectro neutrónico. Luego, las actividades son medidas en un detector con eficiencia (ϵ_p) bien conocida. Si todos los comparadores tienen una dependencia $\sigma(v) \approx 1/v$ hasta $\approx 1,5$ eV; α se puede obtener de la pendiente ($-\alpha$) de la recta que se obtiene al graficar $\log(\bar{E}_i)^{-\alpha} B_j$ versus $\log(\bar{E}_i)$; con B_j definido como:

$$B_j \equiv \frac{\frac{A_{sp}(i)}{\epsilon_j} \frac{A_{sp}(r)}{\epsilon_r}}{\frac{Q_j(\alpha)}{G_{th,j}} - \frac{Q_r(\alpha)}{G_{th,r}}} \quad (2.66)$$

Por lo tanto, α puede ser calculada iterando la ecuación siguiente:

$$\alpha + \frac{\frac{\sum_j^N \log(\bar{E}_{r,j})}{N} \left\{ \log\{(E_{r,j})^{-\alpha} B_j\} - \frac{\sum_j^N \log\{(E_{r,j})^{-\alpha} B_j\}}{N} \right\}}{\left\{ \log(E_r) - \frac{\sum_j^N \log(\bar{E}_{r,j})}{N} \right\}} = 0 \quad (2.67)$$

Donde el comparador de referencia no está incluido en las series. El mínimo de comparadores es de tres (N=2 más uno de referencia), y han de ser medidos en condiciones tales que los fenómenos de coincidencia sean despreciables.

2.5. Espectrometría gamma

La espectrometría gamma es una técnica asociada a la detección y procesamiento de la radiación gamma. La emisión de rayos- γ es un proceso natural por lo que un núcleo que fue excitado, pierde su energía. La transición gamma es el paso de un estado nuclear excitado a un estado de menor excitación en donde el núcleo conserva su número atómico y másico; los posibles estados excitados son resultado de: a) procesos de decaimiento radiactivo, b) reacciones nucleares, c) excitación directa desde el estado base y d) transiciones en el núcleo.

Esta técnica requiere de detectores, donde se dispone de dos importantes tipos tales como los centelladores inorgánicos como NaI (TI) y detectores semiconductores de alta resolución (HPGe), diseñados para medir la distribución espectral de la radiación incidente que genera la señal ya sea en forma de fotones o de pulsos de voltaje que permiten determinar la energía de la partícula incidente, tomado de (James, 2013).

2.5.1. Interacción de los rayos gamma con la materia

La interacción de la radiación- γ , con la materia se produce a través de los tres procesos siguientes:

Efecto fotoeléctrico, es la colisión de un rayo- γ con un electrón del material y le transfiere toda su energía, por lo que el rayo- γ desaparece y el electrón adquiere una energía cinética igual a la energía del rayo- γ menos la energía de enlace del electrón al átomo; que se representa como:

$$E_e = h\nu - E_b \quad (2.68)$$

En el cual:

E_e = Energía que recibe el electrón;

$h\nu$ = Energía del fotón- γ ;

E_b = Energía necesaria para arrancar el electrón del átomo.

El mecanismo de interacción del efecto fotoeléctrico se observa en la figura (2.6)

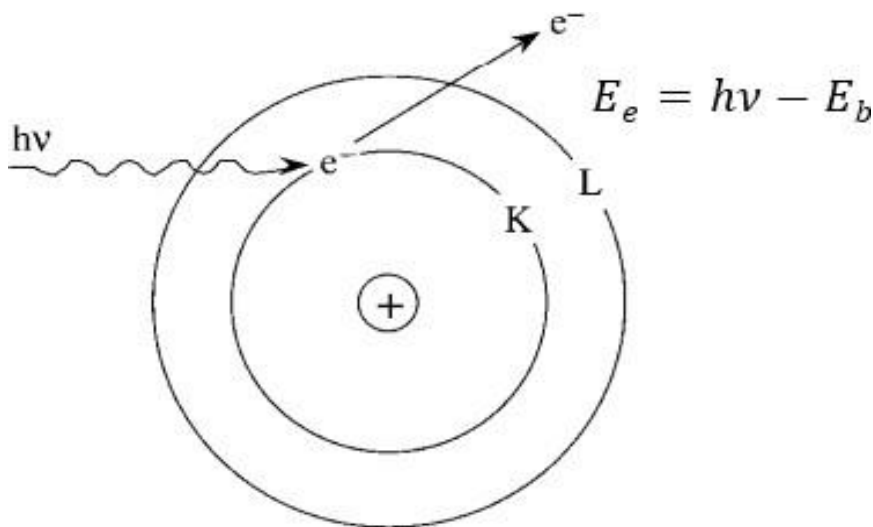


Figura 2.6. Esquema del efecto fotoeléctrico
[Fuente: Tomado de (James, 2013)]

Efecto Compton, es la colisión de un rayo- γ con un electrón del material de forma elástica. El rayo- γ le transfiere parte de su energía al electrón como energía cinética, desviándose luego con la energía restante de la transferencia, se produce la emisión gamma de menor energía; este efecto se ve como un *scattering* elástico entre un fotón y un electrón libre, ver figura (2.7), describe el fenómeno. En una colisión elástica de un fotón de energía $h\nu$ y un electrón libre, el rayo gamma sale en una dirección θ y con energía $h\nu'$. El electrón sale en una dirección tal que se conserve la cantidad de movimiento o momento. De la ley de conservación del momento, el fotón reduce su impulso dado por:

$$P_{\text{fotón}} = \frac{E}{c} = \frac{hf}{c} = \frac{h}{\lambda} \quad (2.69)$$

La disminución en el momento del fotón debe traducirse en una disminución de la frecuencia (aumento en la longitud de onda $\Delta \lambda = \lambda' - \lambda$). El desplazamiento de la longitud de onda aumentó con el ángulo de dispersión de acuerdo con la fórmula de Compton:

$$\Delta \lambda = \lambda' - \lambda = \frac{h}{m_e c} (1 - \cos(\theta)) \quad (2.70)$$

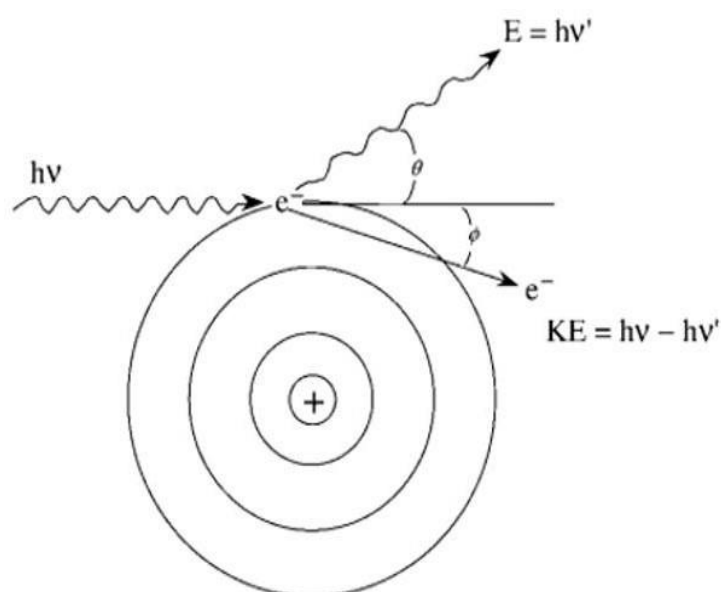


Figura 2.7. Esquema del efecto Compton
[Fuente: Tomado de (James, 2013)]

En espectrofotometría, el borde de Compton es una característica del espectrógrafo que resulta de la dispersión de Compton en el centellador o detector. Esta característica se debe a los fotones que sufren la dispersión de Compton con un ángulo de dispersión de 180°

y luego escapan del detector. Cuando un rayo gamma se dispersa del detector y escapa, solo una fracción de su energía inicial puede depositarse en la capa sensible del detector. Depende del ángulo de dispersión del fotón, cuánta energía se depositará en el detector. Esto conduce a un espectro de energías. La energía del borde de Compton corresponde al fotón retro dispersado completo, se puede apreciar este fenómeno en la figura (2.8).

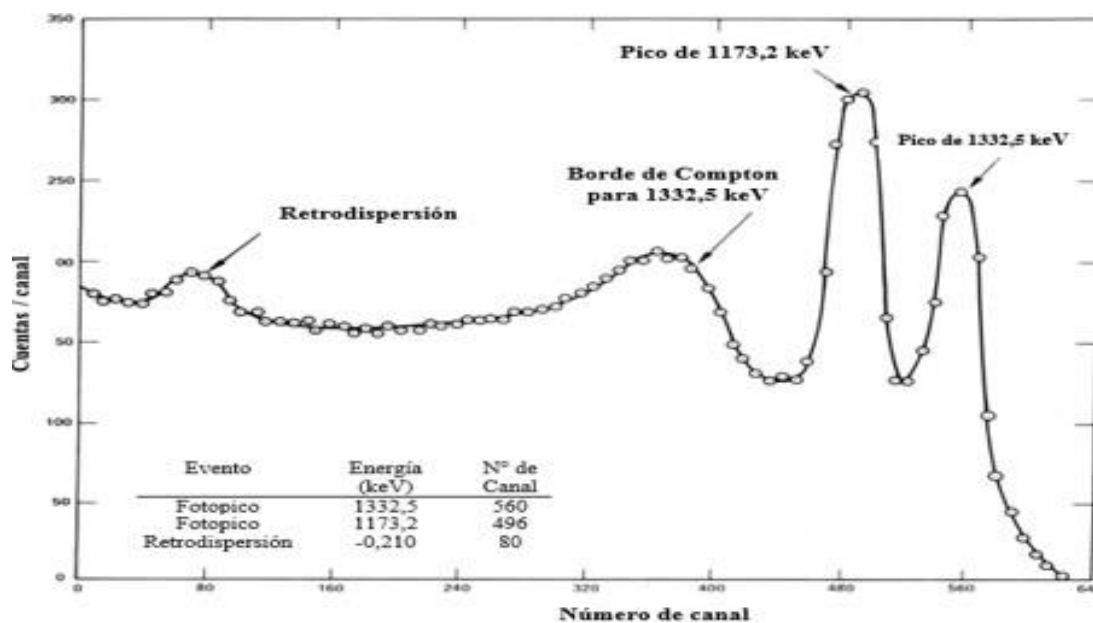


Figura 2.8. Esquema del borde Compton de ^{60}Co en un detector sólido centellador
 [Fuente: Tomado de <https://www.nuclear-power.net/>]

La producción de pares es un fenómeno de la naturaleza donde la energía se convierte directamente en materia, se puede ver de dos maneras diferentes. Una es como partícula y antipartícula y la otra es como partícula y agujero. La primera se puede representar mediante la formación de electrones y positrones, a partir de un paquete de energía electromagnética (fotón de alta energía - rayos gamma) que viaja a través de la materia. Cuando un rayo- γ se aproxima al campo eléctrico de un núcleo puede ocurrir la producción de pares. En este caso el rayo- γ se transforma completamente en un par electrón-positrón. Como la suma de las masas del par electrón-positrón es de 1,02 MeV, dicho fenómeno no puede ocurrir si la energía del rayo- γ es menor que esta cantidad. Si la energía del rayo- γ es superior a los 1,02 MeV, el excedente es repartido entre el electrón y el positrón como energía cinética, los cuales han de moverse en direcciones opuestas (por la conservación del momento). Cuando el positrón colisiona con otro electrón, ambos se aniquilan, produciéndose dos rayos gamma de 0,51 MeV cada uno (también debido a la conservación del momento y de la energía). Este evento se puede apreciar en la figura (2.9).

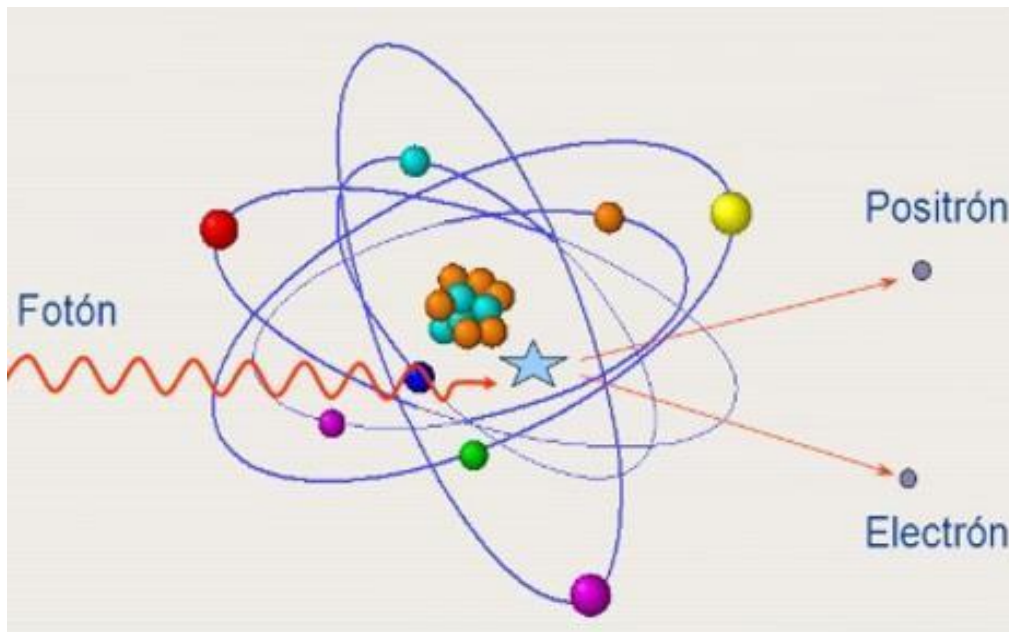


Figura 2.9. Esquema del efecto producción de pares
 [Fuente: Tomado de http://images.slideplayer.es/2/300957/slides/slide_47.jpg]

La probabilidad de producirse cada uno de estos procesos, efecto fotoeléctrico, efecto Compton o producción de pares, dependen de un parámetro llamado coeficiente de absorción para el proceso considerado, y el valor del parámetro es una función de la energía del fotón incidente. Este parámetro nos indica la probabilidad de absorción del fotón gamma por el detector.

Se puede expresar la sección eficaz de absorción total del cristal mediante la suma de las secciones de cada suceso:

$$\tau_{\text{total}} = \tau_{\text{fotoeléctrico}} + \tau_{\text{Compton}} + \tau_{\text{p.pares}} \quad (2.71)$$

Cada uno de los efectos predomina a diferentes energías de los fotones. A bajas energías de los rayos gamma (cientos de keV) predomina el fotoeléctrico, a energías medianas (alrededor de 1 MeV), el Compton y a energías mayores, la producción de pares.

En la figura (2.10), se aprecia la contribución de cada suceso a la sección eficaz total en función de la energía del fotón. Tomado de (James, 2013).

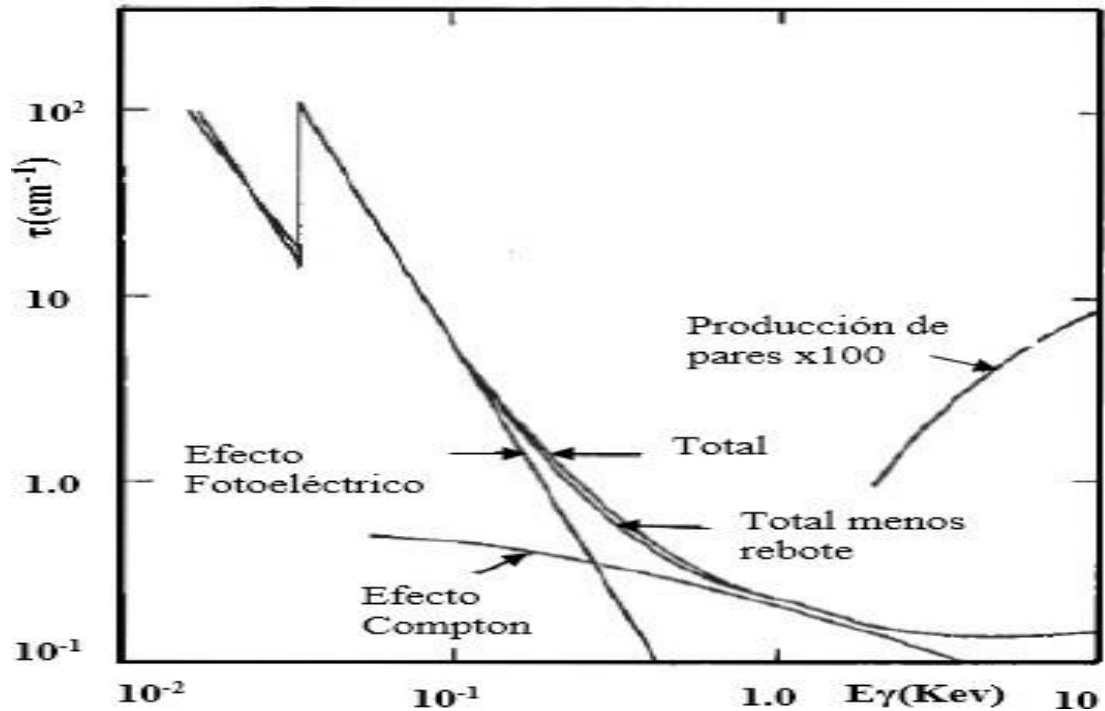


Figura 2.10. Esquema de la sección eficaz total versus energía del fotón
 [Fuente: Tomado de <https://www.nuclear-power.net/>]

2.5.2. Espectroscopía de rayos gamma con detectores semiconductores (HPGe)

Cuando se requiere una debida identificación de los picos gamma se debe usar; un detector semiconductor asociado a una cadena electrónica. Este tipo de detector trabaja, bajo un voltaje de determinado, capta la radiación gamma emitida colectando la carga producida, que es directamente proporcional a la energía cedida por la radiación. La amplitud de la señal originada es directamente proporcional a la carga generada por el detector y se procesa a través del preamplificador; la señal es posteriormente amplificada y conformada en el amplificador, a valores de altura de pulso entre 0,1 V y 10 V y tiempos comprendidos entre 0,1 μ s y 10 μ s. Las señales analógicas generadas se convierten en señales digitales a través del convertidor analógico digital (ADC), tomado de (Mendoza, 2011).

Los datos a la salida del ADC son transferidos y almacenados en un analizador multicanal, en donde son clasificados según su amplitud de voltaje en diferentes niveles, llamados canales, obteniendo finalmente un histograma (espectro gamma) cuya evaluación mediante diversos algoritmos de cálculo permite identificar y cuantificar la presencia del

elemento en la muestra irradiada. En este trabajo el tratamiento de los espectros se realizó con el programa Genie2K, versión 2.0 (Canberra) que incluye el procesamiento de la señal.

En la figura (2.11) se muestra el esquema general de la cadena de detección de radiación gamma.

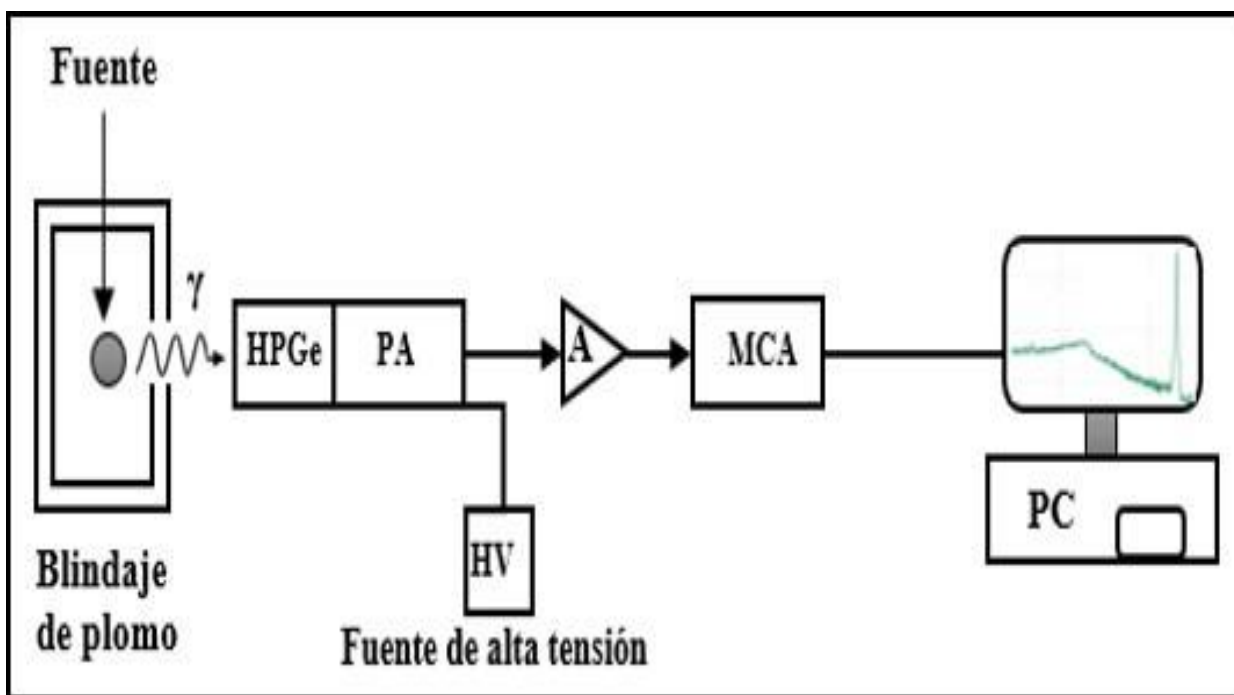


Figura 2.11. Esquema del sistema de detección de radiación gamma
[Fuente: Tomado de TEAN]

Las especificaciones técnicas y físicas del detector empleado en la investigación, según *Germanium Detectors User's Manual-9231358E-TEAN*, son: Marca Canberra modelo GC15022; de estado sólido de germanio intrínseco tipo p, con un volumen de cristal de $90,8 \times 90,0 \text{ mm}^3$; con 5,63 mm de distancia desde la ventana y el cristal, con eficiencia relativa $\geq 150 \%$ y resolución $\leq 2,200 \text{ keV}$ (respecto al pico de 1,33 MeV) y $\leq 1,300 \text{ KeV}$ (respecto al pico de 122 KeV de ^{60}Co), y relación pico/Compton $\geq 80 : 1$, con una cubierta del criostato con material de aluminio de 1,5 mm de espesor, asociado a una cadena de medición. El detector está montado dentro de una estructura metálica, tal como se aprecia en la figura (2.12).

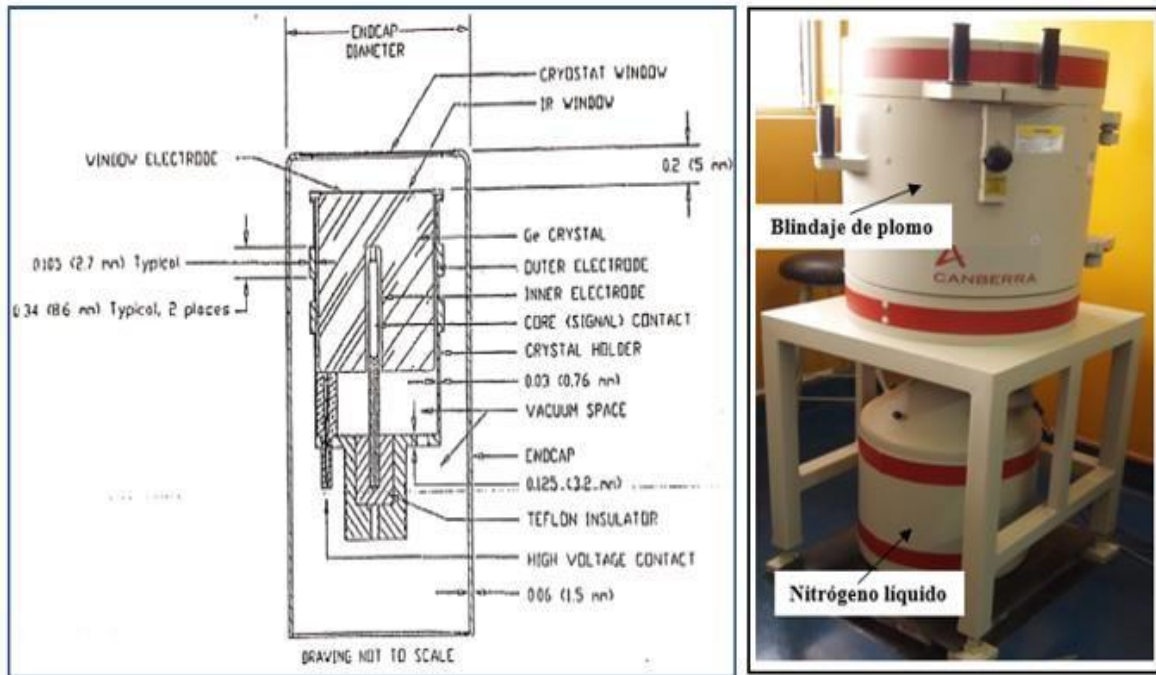


Figura 2.12. Esquema y corte transversal del detector HPGe de alta resolución
 [Fuente: Tomado de TEAN]

2.5.3. Detección y cuantificación de la radiación gamma

Los sistemas de espectroscopía gamma generalmente son caracterizados por los parámetros de resolución, eficiencia del detector y la relación pico/Compton. El ancho de los picos gamma está determinado por la resolución del detector. La cifra más común utilizada para expresar la resolución del detector es el ancho total a la mitad del máximo (FWHM). dada por la ecuación:

$$R_{\text{resolución}} = \frac{\text{FWHM}}{E_0} \quad (2.72)$$

En el cual:

FWHM = Ancho total a la mitad del máximo de la Gaussiana;

E_0 = Es el valor de la energía del centroide de la curva.

Una adecuada resolución permite discriminar picos gamma cercanos en energía y realizar una óptima identificación espectral. Los detectores de germanio hiperpuro (HPGe), que operan a temperatura del nitrógeno líquido son usados principalmente en análisis por

activación neutrónica (AAN), para fines de investigación y servicios de análisis presentando eficiencias relativamente altas y en diferentes formas, es decir tipos coaxiales y de pozos.

Para el cálculo de la resolución según (Adams et al.,1970), dada por la ecuación (2.73), se realiza previamente la calibración de energía del detector.

$$\text{FWHM}(E) = a_0 + a_1E + a_2E^2 \quad (2.73)$$

Para poder determinar los coeficientes a_i , con ($i = 0, 1, 2$), se usan multi estándares (fuentes puntuales) de radioisótopos con fotopicos bien separados y conocidos. En el AAN es importante conocer las energías de los rayos gamma registrados (o pulsos registrados) para la identificación de los radioisótopos formados durante la activación y su subsecuente cuantificación. La resolución del detector es una cantidad adimensional, usualmente expresada en porcentaje y mientras más pequeño sea su valor, mejor podrá el detector diferenciar dos radiaciones cuyas energías estén cerca una de otra. Esta relación funcional entre la energía (E) del rayo gamma y el canal (n) donde se ubica el centroide del fotopico es llamada calibración de energía del detector (Arboccó, 2007).

Para determinar la resolución, se grafican las energías en función del canal (n) donde se ubican los fotopicos y se hace un ajuste polinómico de segundo orden; obteniéndose los coeficientes de ajuste b_i ($i = 0,1,2,3,4$, etc.) en algunos casos se alcanza una mayor precisión empleando un ajuste polinómico de mayor orden, dada por la ecuación:

$$E(n) = b_0 + b_1n + b_2n^2 + b_3n^3 + b_4n^4 \quad (2.74)$$

Una vez que se obtiene la curva de calibración se pueden identificar unívocamente las energías de los rayos gamma registrados (o fotopicos) de otras muestras.

2.5.4 Eficiencia del sistema de detección

Para poder cuantificar el número de rayos gamma emitidos por una muestra irradiada es indispensable el conocimiento de la eficiencia relativa del sistema de detección (ϵ_p), para la geometría de la muestra irradiada; que se define como el cociente entre el número de fotones (N_p) de energía E registrados por el detector en el pico de energía plena y el número de fotones N_γ de la misma energía E emitidos por la muestra radiactiva, que se expresa por:

$$\epsilon_p = \frac{N_p}{E_\gamma} \quad (2.75)$$

La ecuación (2.75), puede describirse; considerando las correcciones temporales por decaimiento y conteo del modo siguiente:

$$\epsilon_p = \frac{A_n \lambda \left(\frac{t}{t_r}\right)}{f_a I_\gamma A_0 (e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_r})} \quad (2.76)$$

Donde:

A_0 = Es la actividad inicial de la fuente desde su fabricación;

A_n = Es el área neta corregida por coincidencia;

f_a = Factor de atenuación gamma (=1);

λ = Constante de desintegración del radioisótopo;

t_r = Tiempos de conteo real prefijado;

t_v = Tiempo vivo prefijado;

I_γ = Es la intensidad absoluta del pico de energía plena, tomado de (Mendoza, 2011).

La eficiencia de un detector, depende de las condiciones experimentales de medición; como distancia muestra-detector, geometría de la muestra, voltaje de operación del sistema electrónico del detector. Para determinar la eficiencia se mide radioisótopos de fuentes multi estándares cuasi puntuales con actividades conocidas a una geometrías de medición para el presente caso (50 mm y 185 mm), en donde los fenómenos de coincidencia sean despreciables, de este modo es posible graficar la curva $\ln(\epsilon_p)$ versus $\ln(E)$; esta curva se puede separar en regiones de diferentes energías y los pares ordenados energía versus eficiencias evaluadas se pueden ajustar mediante una regresión polinómica según la función de ajuste que permite unir las regiones, dadas por:

$$\ln(\epsilon_p) = c_1 + c_2 \ln(E) + c_3 \ln(E^2) + c_4 \ln(E^3) + c_5 \ln(E^4) \quad (2.77)$$

En la ecuación (2.75), el número de radiación gamma N_p con energía E registrados por el detector se debe corregir por coincidencia, estos fenómenos se producen cuando dos o más radiaciones gamma emitidas (por radioisótopos), sin retraso apreciable (radiación en cascada), pueden dar lugar a la deposición total o parcial de energía en el detector. En la aplicación de la técnica de análisis de activación nuclear-AAN, los rayos- γ medidos en forma experimental son importantes si sus energías son $>$ a 100 keV; la razón de esto es la presencia

del fondo Compton que se acumulan en el espectro por contribución de rayos- γ de mucha energía, así como efecto de la radiación continua por desintegración beta que acompaña generalmente a los procesos de decaimiento radiactivo (De Corte et al., 1994).

Para determinar el factor de corrección por fenómenos de coincidencia se requiere conocer la probabilidad de aumento $S(A)$, la probabilidad de pérdida $L(A)$ de números $N_{p,A}$ de rayos- γ (A) registrados debido a fenómenos de coincidencia. La relación de este factor de corrección por fenómenos de coincidencia COI, se puede determinar a través de la expresión siguiente:

$$COI = [1 - L(A)][1 + S(A)] \quad (2.78)$$

Si $N_{p,A}$ es el número de rayos gamma (A) observados en el espectro, el número $N_{p,A}^C$ de rayos gamma (A) corregido por fenómenos de coincidencia se define como:

$$N_{p,A}^C = \frac{N_{p,A}}{COI(A)} \quad (2.79)$$

2.6. Interferencia espectral en análisis por activación neutrónica

En el análisis por activación, se requiere optimizar la relación entre la actividad del elemento de interés con respecto a la inducida sobre otros elementos presentes en la muestra; este criterio justifica el análisis por activación con neutrones epitérmicos, donde se emplean filtros de Cd o de boro (BN) para absorber los neutrones térmicos, y reducir el enmascaramiento producido por el continuo Compton en el espectro de rayos gamma.

Suponiendo que la fuente decae ligeramente durante el periodo de conteo, a saber, la tasa de conteo es constante; por lo que el área neta de los picos se determina sumando el contenido de los (n) canales incluido en el pico y la resta de los recuentos de fondo. El fondo debajo del pico, ver figura (2.13), se estima como; cerca de la base del pico, tanto en el lado de energía inferior como el lado de mayor energía del pico se selecciona una región con $\frac{n}{2}$ canales, del número medio de recuentos en cada una de estas regiones, el número de recuentos de fondo por canal en el pico se estima, tomado de (Bode, 1996).

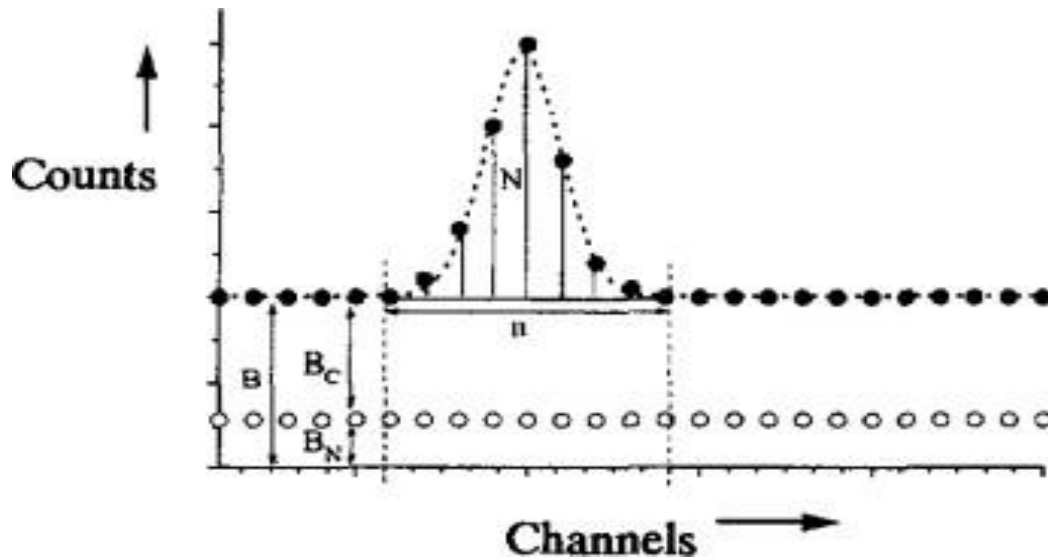


Figura 2.13. Esquema de un pico de rayos gamma sobre un fondo liso
[Fuente: Tomado de (Bode, 1996)]

Si T es el número total de recuentos debajo del pico, B el número promedio de recuentos de fondo por canal y (n) el número de canales incluidos en el pico, el área neta se calcula por:

$$N = T - nB \quad (2.82)$$

Con una desviación estándar:

$$\sigma_N = \sqrt{T + nBc} \quad (2.83)$$

Definimos el número de recuentos detectables N_m después de restar el fondo como:

$$N_m = A_m \cdot \sigma_{Nm} \quad (2.84)$$

Siendo A_m el recíproco del error fraccionario y σ_{Nm} la desviación estándar de N_m ; el valor de A_m depende de los resultados; si se tiene una precisión del 10 %, $A_m \approx 10$; si una precisión del 50 % es suficiente, $A_m \approx 2$.

(Cooper, 1970), deriva la siguiente expresión para el área de pico mínima detectable después de restarle el fondo:

$$N_m = A_m \left\{ [2bR_1 \{B_{C2,1} + B_{N,1}\} + \frac{A_m^2}{4}]^{0.5} + \frac{A_m}{2} \right\} \quad (2.85)$$

En el cual:

$B_{C2,1}$ = Número de recuentos por canal debido al continuo Compton del rayo gamma 2 interferido en la ubicación del rayo gamma de interés;

$B_{N,1}$ = Fondo natural en recuentos por canal en la ubicación del rayo gamma 1 de interés;

- R_1 = La resolución en el pico del rayo gamma 1, el rayo gamma de interés;
- b = El factor que cuando se multiplica por la resolución da el número n canales en el pico: $bR_i=n$.

La expresión se puede reescribir como:

$$N_m = \frac{A_m^2}{2} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{4(2nB_{t,1})}{A_m^2} \right]^{0,5} \right\} \quad (2.86)$$

En el cual:

$$B_{t,1} = B_{C2,1} + B_{N,1}$$

La definición del límite de determinación (detección) según (Currie, 1968) es:

$$L_Q = k_Q \cdot \sigma_Q \quad (2.87)$$

En el cual:

k_Q = El recíproco de la desviación estándar requerida y

σ_Q = La desviación estándar de la señal neta

Según (Currie, 1968), la ecuación de límite de determinación puede ser elaborado en el futuro para el caso de la determinación de un nivel de fondo, como ocurre con mediciones de la radioactividad y se define por:

$$L_Q = \frac{k_Q^2}{2} \left\{ 1 + \left[1 + \frac{4\sigma_0^2}{k_Q^2} \right]^{0,5} \right\} \quad (2.88)$$

En el cual:

σ_0 = La desviación estándar del fondo total en la ubicación del pico.

En el enfoque de (Cooper, 1970), el número promedio de recuentos de fondo por debajo del pico B es derivado de promediar la suma de $\frac{n}{2}$ términos independientes en cada lado del pico. Por lo tanto $2nB_{t,1} = \sigma_0^2$ y dado que $A_m = k_Q$, las expresiones de Cooper y Currie concuerdan. Los factores que determina los límites de detección en AAN, si asumimos que no es apreciable la actividad de decaimiento, durante el tiempo de contaje; entonces la tasa mínima desintegración detectable D_m , se deriva de la ecuación (2.85) definido por:

$$D_{m,1} = \frac{A_m}{s_{p,1} a_{\gamma 1} t} \left\{ \left[2bR_1 \{ B_{C2,1} + B_{N,1} \} + \frac{A_m^2}{4} \right]^{0,5} + \frac{A_m}{2} \right\} \quad (2.89)$$

En el cual:

$\epsilon_{p,1}$ = La eficiencia del fotopico rayo gamma 1 a distancia entre la fuente y el detector;

$a_{\gamma 1}$ = La abundancia de rayos gamma 1 en la desintegración

t = tiempo de contaje(s).

(Cooper, 1970), determina del estudio de interferencias, la forma del espectro de rayos gamma, y la ubicación del pico de interés en el espectro, este procedimiento es observada en la figura (2.14); en el cual el punteado, indica la forma del espectro de fondo.

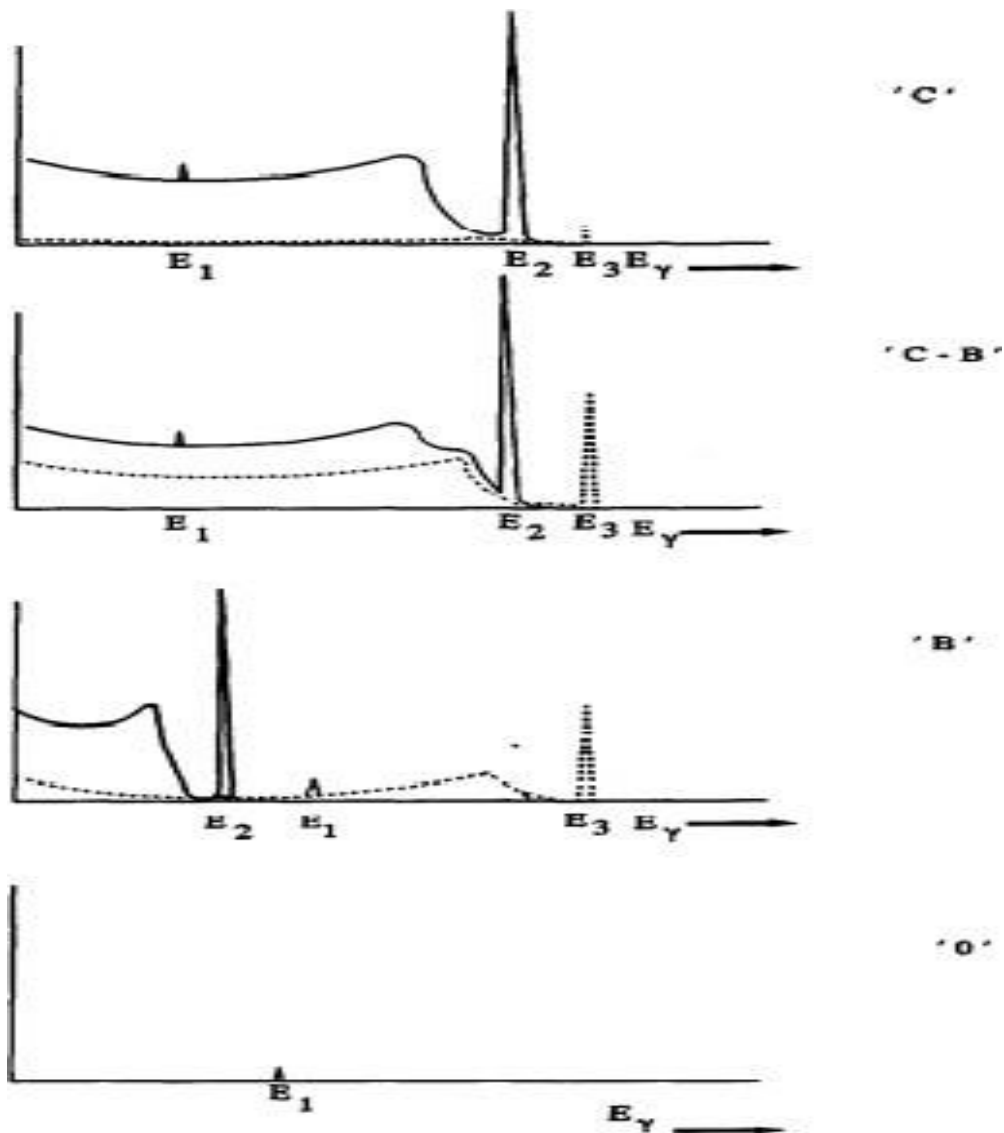


Figura 2.14. Esquema de detección de un pico en un espectro de rayos gamma
[Fuente: Tomado de (Cooper, 1970)]

- a) La tasa de contaje de la fuente es alta y/o el error requerido no están bajo y, por lo tanto, $2bR_1\{B_{C2,1} + B_N\} \gg \frac{A_m^2}{4}$.
- i) El pico E_1 se encuentra en un continuo Compton dominante, pero la contribución del fondo natural es despreciable; este caso se denota con 'C'.
 - ii) El pico E_1 se ubica en un continuo de Compton y el fondo natural no es despreciable; este caso se denota 'C-B'.
 - iii) El pico E_2 se ubica al lado de alta energía del fotopico dominante en el espectro, sobre el fondo natural. Ahora la contribución del Compton al fondo no es relevante; este caso se denota con 'B'.
- b) La tasa de contaje de la fuente en la región de interés es muy baja y el error fraccionario requerido es bajo, por lo tanto $2bR_1\{B_{C2,1} + B_N\} \leq \frac{A_m^2}{4}$; en este caso se denota por 'O'.

Para cada caso, la ecuación (2.89) se puede simplificar aún más:

- c) Si la tasa de contaje de muestra es alta desde $2bR_1\{B_{C2,1} + B_{N,1}\} \gg \frac{A_m^2}{4}$, la ecuación (2.89) se simplifica en primer lugar a:

$$D_{m,1} = \frac{A_m \cdot \sqrt{2bR_1\{B_{C2,1} + B_{N,1}\}}}{s_{p,1} \cdot a_{\gamma 1} \cdot t} \quad (2.90)$$

De esta ecuación se puede ver que los límites de detección que se pueden alcanzar con un detector dado, están determinados por la relación:

$$f_S = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1(B_{C2,1} + B_{N,1})}} \quad (2.91)$$

(Cooper, 1970), denotó esta expresión para la comparación de detectores, aquí esta relación se utiliza como factor determinante de sensibilidad (límite de detección), denotado por f_S ; en donde el subíndice S se utiliza para distinguir los casos 'C', 'C-B', 'B' y 'O'. El factor se determina para los tres casos:

- (1). Caso 'C': El pico se encuentra sobre un fondo de Compton y el fondo natural puede ser despreciable y el límite de detección o sensibilidad se define como:

$$f_C = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1 B_{C2,1}}} \quad (2.92)$$

(2). Caso 'C-B': Si el pico de interés se encuentra en continuo en el que ni el fondo Compton, ni el fondo natural se puede despreciar en este caso se define el límite de detección o sensibilidad como:

$$f_{C-B} = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1(B_{C2,1} + B_{N,1})}} \quad (2.93)$$

Cabe señalar que en un espectrómetro con un escudo de supresión de Compton (CS), el blindaje pasivo reduce el fondo para $E_\gamma > 250\text{keV}$, en un factor de aproximadamente 4, y $(B_{N,1})_{\text{CSS}} \div 0.25B_{N,1}$, así:

$$(f_{C-B})_{\text{CSS}} = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1(B_{C2,1} + 0.25B_{N,1})}} \quad (2.94)$$

(3). Caso 'B': El pico está ubicado en el sito de alta energía del pico (S) que causa la radioactividad inducida. Aun así, el pico está en el continuo Compton del fondo natural y luego comparable al caso 'C', se define como:

$$f_B = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1 \cdot B_{N,1}}} \quad (2.95)$$

Y para un sistema CSS:

$$(f_B)_{\text{CSS}} = \frac{s_{p,1}}{\sqrt{R_1(0,25B_{N,1})}} \quad (2.96)$$

d) En la segunda situación, denotada con el caso 'O', se debe detectar un pico en un espectro de una fuente con una radioactividad muy baja, y

$2bR_1\{B_{C2,1} + B_{N,1}\} \leq A_m^2/4$; ahora la ecuación (2.89) se puede reescribir como:

$$D_{m,1} = \frac{A_m}{s_{p,1} a_{\gamma 1} t} \left\{ \left[\frac{A_m^2}{4} \right]^{0,5} + \frac{A_m}{2} \right\} = \frac{A_m^2}{s_{p,1} \cdot a_{\gamma 1} \cdot t} \quad (2.97)$$

Los límites detección alcanzables ahora estarán determinados por el factor:

$$f_0 = \varepsilon_{p,1} \quad (2.98)$$

CAPÍTULO III

PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL Y METODOLOGÍA

3.1. Instrumentación experimental

El trabajo experimental se desarrolló en el Centro Nuclear RACSO, perteneciente al Instituto Peruano de Energía Nuclear-IPEN. Este capítulo tiene como finalidad la descripción del procedimiento experimental, uso de las instalaciones del reactor nuclear, sistema neumático de irradiación de muestras, detectores, calibración en energía y determinación de las eficiencias relativas, selección del comparador y aplicación de programas de cálculo, la adquisición y procesamiento de datos se realizaron en el laboratorio de TEAN, para el posterior análisis por activación neutrónica epitérmica (ENAA) de las muestras objeto del estudio, a través del método de estandarización K_0 .

3.1.1. El reactor nuclear RP-10

El reactor nuclear de investigación RP-10 es un reactor de 6 MW de potencia térmica nominal, tipo tanque-abierto, utiliza agua liviana como moderador, refrigerante y blindaje; como reflectores se usan elementos de grafito y berilio.

En 16 de setiembre del 2019 a las 22:31 horas, se repitió la experiencia de aproximación a crítico de Fermi, dando una segunda partida de nacimiento, esta vez con la incorporación de nuevos elementos combustibles, siliciuros de uranio (U_3Si_2). El primer nacimiento ocurrió el 30-11-1988, pero utilizando elementos de combustible de óxido de uranio (U_3O_8), ambos del tipo MTR (*Material Testing Reactor*) o de geometría tipo paralelepípedo, con un enriquecimiento de 20%. El tanque del reactor contiene el núcleo, facilidades de irradiación, el sistema de refrigeración primario y dispositivos de vigilancia y control. Los componentes del núcleo están colocados sobre una placa grilla de 10 x 10 posiciones. El núcleo está ubicado en el fondo del tanque de 11 m de altura. El núcleo es un arreglo de 9 elementos combustibles normales (ECN) y 5 elementos combustibles de control (ECC). En la figura (3.1), se puede apreciar el núcleo del reactor y la disposición del sistema neumático de irradiación-SNIM.

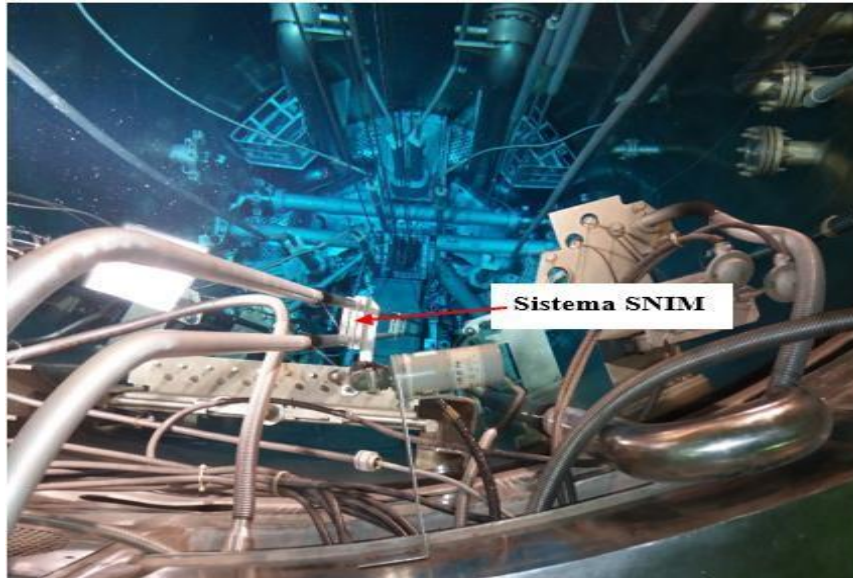


Figura 3.1. Esquema de la posición del sistema neumático-SNIM en el reactor RP-10
[Fuente: TEAN]

Los valores de flujo neutrónico en la posición B1 de la configuración nuclear N° 08B, fueron determinados empleando conjunto de monitores de alambre Cu-1,55% Au, Al-2,7% Lu, hojuelas de Mo y Al-0,1% Co al 99,95% de pureza cada una (Mendoza, 2011).

La nueva configuración del núcleo y de la posición de irradiación para el sistema neumático de irradiación se muestra en la figura (3.2).

	A	B	C	D	E	F	G	H	I
1			GR	BE	BE	BE	GR		CF
2		CF	GR	ECN-010	ECC-001	ECN-012	GR		
3		BE	CI	ECC-003	ECN-001	ECC-004	CI	BE	
4		BE	CI	ECN-003	CI	ECN-005	CI	BE	
5		BE	CI	ECC-006	ECN-007	ECC-007	CI	BE	
6			GR	ECN-017	ECN-015	ECN-019	BCF		
7			GR	GR	BE	GR	GR		
8			CF						

BE: Berilio;
 GR: Grafito;
 ECN: Elemento combustible normal;
 ECC: Elemento combustible de control;
 CI: Caja de irradiación;
 CF: Cámaras de fisión;
 BCF: Barra de control fina;
 B1: Posición del sistema neumático-SNIM.

Figura 3.2. Configuración del núcleo N°08, empleada desde el 16-09-2019
[Fuente: Tomado de Laboratorio de Física de Reactores-RENU]

3.1.2. Sistema neumático de transferencia de muestras (SNIM)

El reactor nuclear RP-10, cuenta con una facilidad de irradiación diseñada para el envío de muestras en forma automática a través de un sistema neumático de irradiación de muestras denominado (SNIM); es un sistema en circuito cerrado, conocido como “rabbit”, que conecta la estación de envío con la posición B1, en la periferia del núcleo del reactor, mediante mangueras de polietileno y un cabezal de aluminio de alta pureza, totalizando una longitud de 50 m. La muestra es transferida mediante aire comprimido, bajo una presión de 29 libras/pulg², controlándose el tiempo de irradiación tanto en forma automática como manual. Dado que el aire es el componente móvil de transferencia se produce la activación del argón y se genera ⁴¹Ar ($T_{1/2} = 1,827$ h; $E_{\gamma} = 1293,6$ keV) por lo cual se toman las precauciones radiológicas del caso, lo que involucra blindajes de plomo y empleo de tele pinzas y guantes descartables, así como aplicación de un tiempo de decaimiento adecuado; el tiempo de transferencia y retorno de la cápsula de irradiación es de 8 s, luego del cual las muestras son colocadas en la campana radioquímica para su posterior medición, según procedimiento establecido. El esquema y componentes del SNIM se muestran en la figura (3.3).

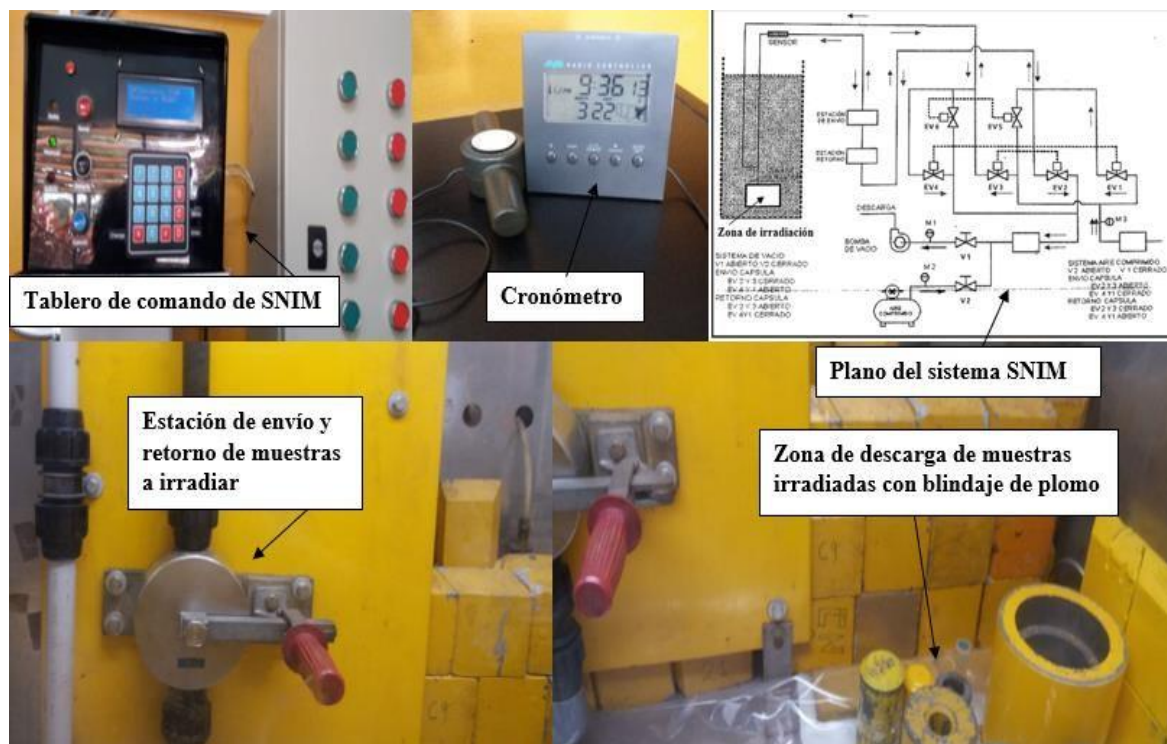


Figura 3.3. Esquema del sistema neumático-SNIM
[Fuente: Tomado de TEAN].

3.1.3. Calibración en energía del detector HPGe

Para la calibración en energía del espectro gamma se empleó la fuente patrón de ^{152}Eu , código (EMS-A1), certificada por el Organismo Internacional de Energía Atómica OIEA-*Division of Research and Laboratories -Vienna*, cuya actividad e incertidumbre se muestra en la tabla (3.1). La utilización de ^{152}Eu obedece al hecho de reunir características especiales, como emitir un conjunto de energías gamma de regular intensidad abarcando una extensa región de interés comprendiendo los picos gamma de 121,8 keV; 244,0 keV; 344,6 keV; 778,9 keV; 964,0 keV y 1408,0 keV. Sumando a lo mencionado, se destaca poseer un periodo de semidesintegración de 13 años lo suficiente para realizar estudios de estabilidad de los sistemas de medición en función del tiempo y calibraciones respectivas; sin mayor corrección del tiempo de decaimiento.

Tabla 3.1. Actividad de fuente gamma de ^{152}Eu certificados [Anexo 1]

Nucleído	Actividad +++ (kBq)	Error estadístico (%)	Error sistemático (%)+	Incertidumbre general redondeada de la actividad (%)++
^{152}Eu	355,7	$\pm 0,05$	$\pm 1,55$	$\pm 2,0$

+) Nivel de confianza: 99%
 ++) (Redondeo) suma de errores estadísticos y sistemáticos.
 ++++) calibración 01/01/1981

La calibración en energía se realizó previa a la medición por un lapso de tiempo de 3000 s, con posterior tratamiento mediante *Genie 2000TM Basic Spectroscopy Software* de la compañía *Mirion Technologies*. Los resultados de las calibraciones en energía del detector fueron descritos por las ecuaciones (2.70) y (2.71), se presentan en la tabla (3.2).

Tabla 3.2 Parámetros de calibración del detector HPGe, Canberra (GC15022)

Detector	Energía (keV)			FWHM (keV)	
	b_0	b_1	b_2	a_0	a_1
HPGe (GC15022).	2,825	4,975	6,279	0,8922	0,02924

En la figura (3.4) se muestra la curva de calibración en energía del detector HPGe de 150% de eficiencia relativa considerando un rango de energía de 0,1MeV – 2,0 MeV.

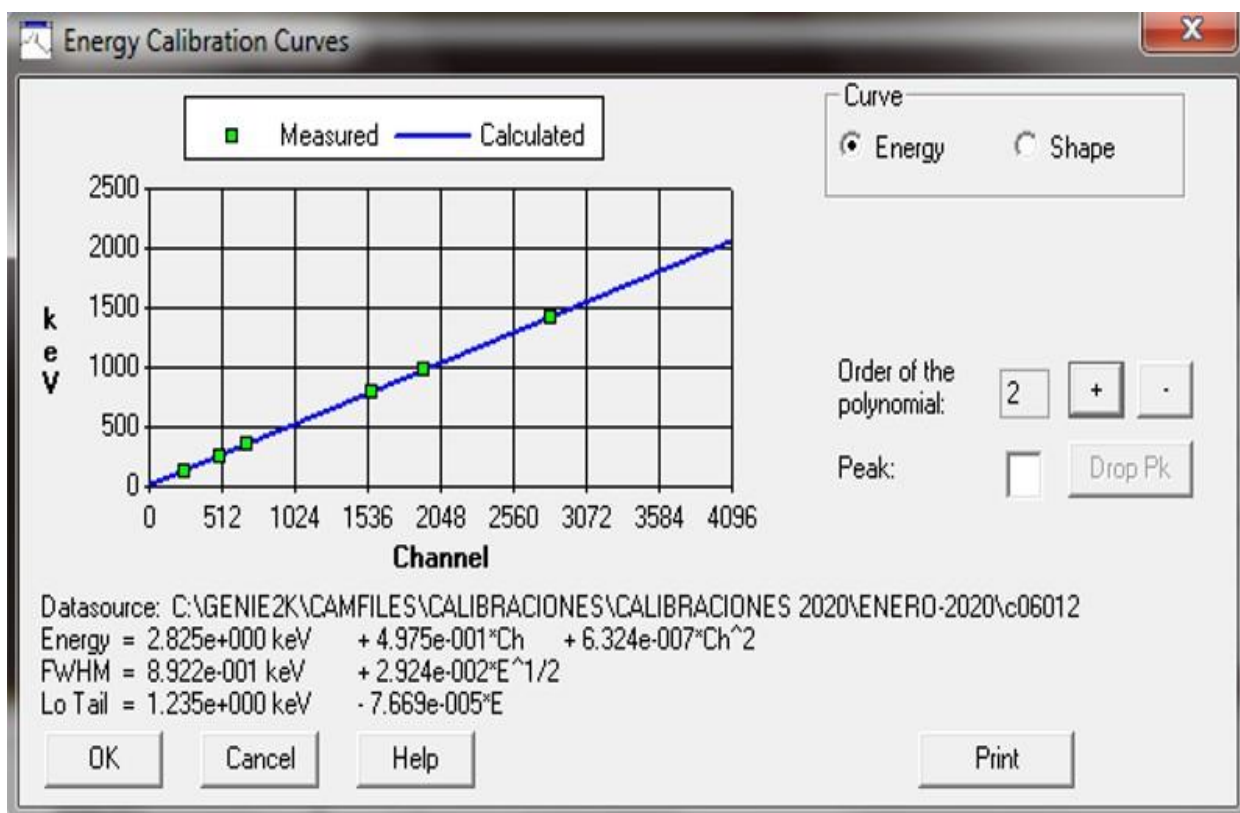


Figura 3.4. Curva de calibración, energía versus canal con ajuste de segundo grado
 [Fuente: Tomado de Software-TEAN)

La ecuación de ajuste de la calibración en energía está dada por:

$$E(C) = 2,825 + 0,4975 C + 0,0000006324C^2$$

Evidentemente tiende a una recta cuya pendiente de 0,4975 nos indica el factor de calibración expresado como keV/Canal pudiendo ubicar en el espectro los picos gamma de interés al dividir su energía entre dicho factor.

3.1.4. Cálculo de la eficiencia geométrica del detector HPGe

Se determinó la eficiencia geométrica del detector de Germanio hiper puro de marca CANBERRA, modelo GC15022-Número de serie 10849, para dos distancias de medición rutinaria $H_2 = 50 \pm 1$ mm y distancia de referencia $H_1 = 185 \pm 1$ mm, cuyo arreglo esquemático se detalla en la figura (3.5).

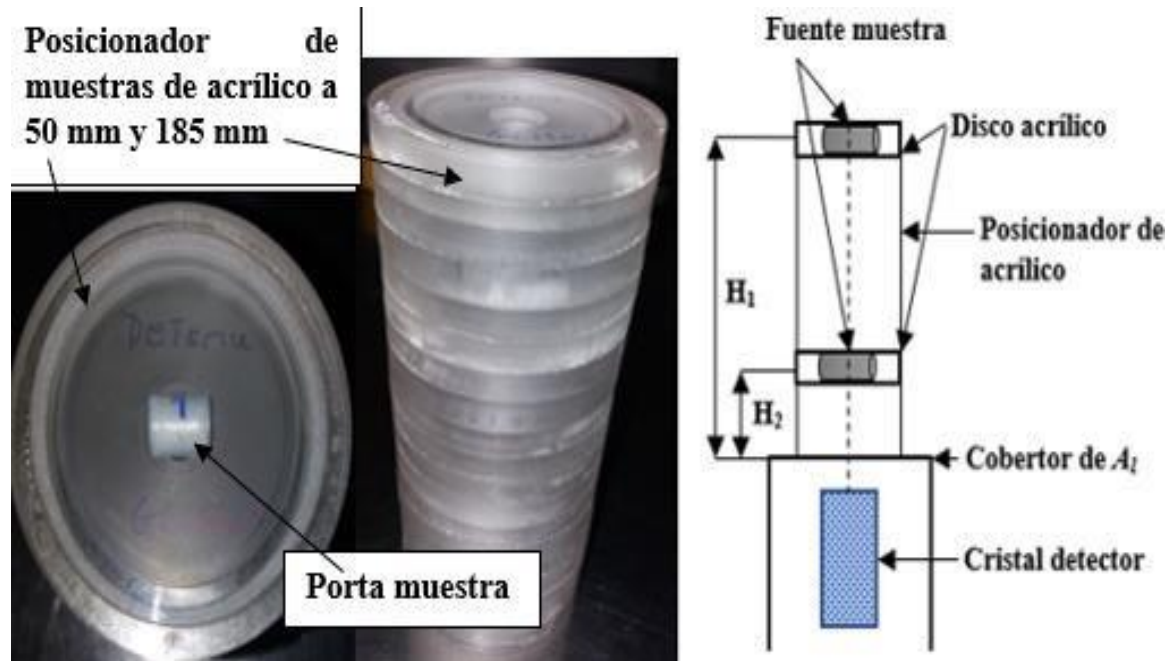


Figura 3.5. Esquema fuente-detector de geometrías, $H_1 = 185$ mm y $H_2 = 50$ mm
[Fuente: TEAN]

Para tal propósito se prepararon fuentes gamma secundarias de radioisótopos sin efecto de coincidencia verdadera: ^{141}Ce (Cerio), ^{51}Cr , ^{198}Au , ^{115}Cd , ^{137}Cs , ^{95}Zr , ^{86}Rb , ^{65}Zn , ^{142}Pr (Praseodimio), cuya actividad fue calibrada en un detector tipo-p coaxial marca Canberra de 70% de eficiencia relativa a una geometría de 185 mm. Tales fuentes, acondicionadas en envases de polietileno, ver figura (3.5) similares a los empleados en el análisis de rutina, fueron luego medidas en la geometría H_2 . Con las actividades predeterminadas se calculó la eficiencia tanto para geometría de 185 mm como de 50 mm ajustando los pares ordenados $\ln(\text{energía})$ vs $\ln(\text{eficiencia})$ a un polinomio de grado 4 en ambos casos. (ver figura 3.6)

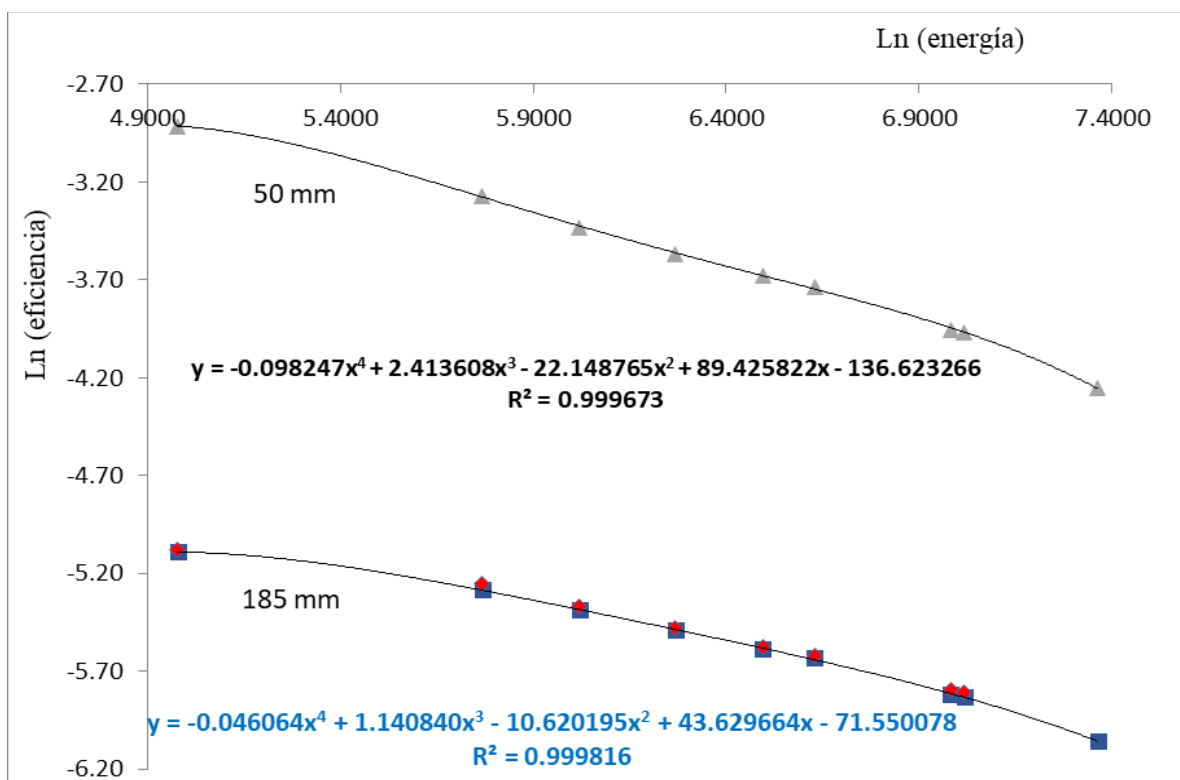


Figura 3.6. Curva de eficiencias geométrica del detector HPGe a 50 mm y 185mm
[Fuente: propia]

3.2. Implementación de facilidad epitérmica con boro como filtro de neutrones térmicos

Se presenta una descripción detallada del diseño y fabricación del contenedor de polietileno borado con nitruro de boro (BN) como filtro, de neutrones térmicos. Así mismo el acondicionamiento de muestras y comparadores, irradiación, medición y cuantificación multi elemental.

3.2.1. Diseño y fabricación del dispositivo móvil (contenedor)

El dispositivo móvil de irradiación fue fabricado a partir de una plancha de polietileno de alta densidad conteniendo 5% de boro, facilitada por la subdirección de desarrollo tecnológico (DETEC-IPEN), tal como observa en la figura (3.7).



Figura 3.7. Barra de polietileno borado y contenedor cilíndrico, fabricado según diseño [Fuente: propia]

El dispositivo móvil debe cumplir características técnicas para su uso en el sistema neumático (SNIM), como resistencia a fractura mecánica causada por caída libre hasta el punto de irradiación, además resistencia al debilitamiento por radiación; el diseño del contenedor borado debe tener tanto las dimensiones y forma del dispositivo originalmente empleado; que debe conservar la aerodinámica en su transporte al núcleo del reactor, como en el dispositivo original que se muestra en la figura (3.8).

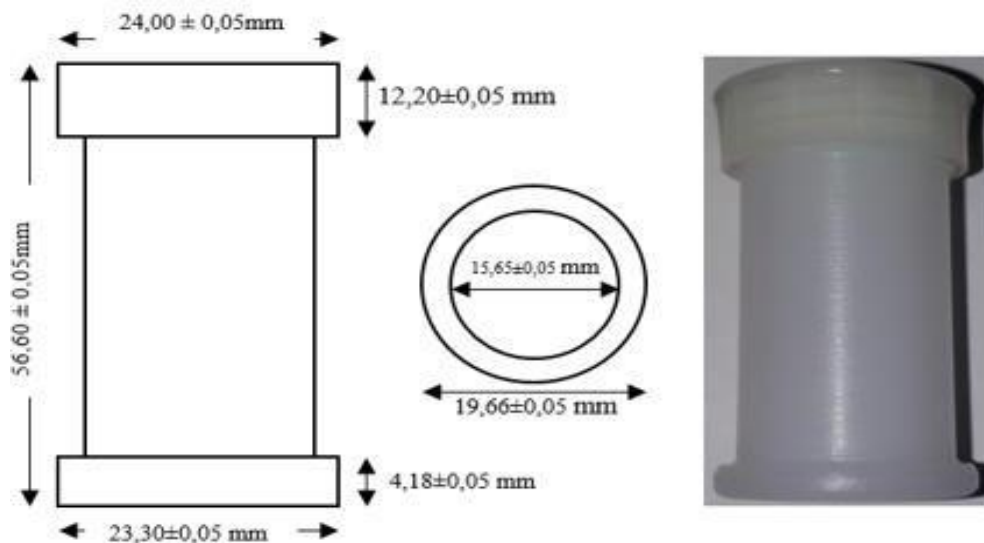


Figura 3.8. Dimensiones y perfil de contenedor estándar de polietileno de alta densidad [Fuente: Tomado de TEAN]

Se diseñó la cápsula de irradiación con dos cilindros concéntricos con tapas respectivas conteniendo el nitruro de boro en polvo, con 2mm de espesor tanto en la superficie lateral del cilindro como en la base y la tapa del mismo. El diseño y la fabricación se hizo en los talleres de maquinado de la empresa H&N empaquetaduras e importaciones S.A.C, ubicado en Av. Ramón Cárcamo N°547-Cercado de Lima-Perú. En la figura (3.9) se aprecia el plano del diseño y la cápsula de polietileno borado.

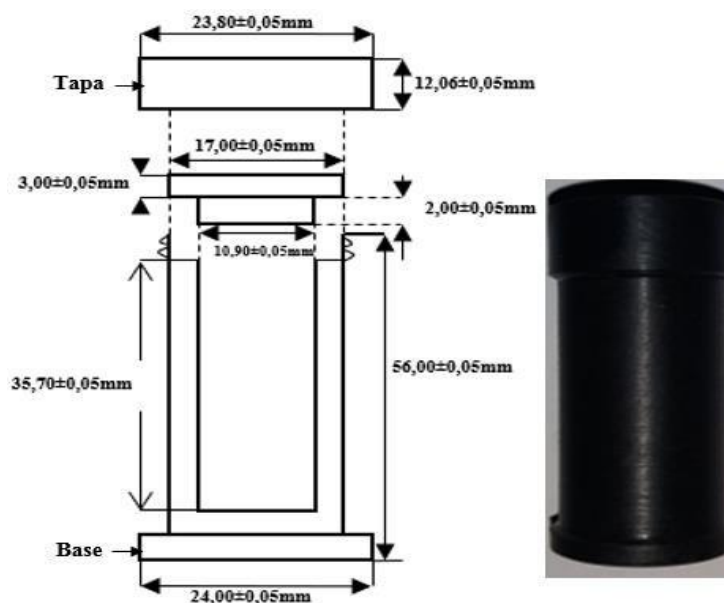


Figura 3.9. Cápsula de irradiación de polietileno borado de alta densidad
[Fuente: propia]

3.2.2. Análisis cualitativo por fluorescencia de rayos-x (FRX)

El análisis cualitativo de la cápsula fabricada se realizó mediante la técnica de fluorescencia de rayos-x (FRX) dispersiva en energía, en el laboratorio de espectrometría de rayos-X (TEAN/INCI/INDE); cuyo análisis cualitativo indicó presencia Fe, Cu, Zn y Pb. Ver el reporte en el [Anexo 2].

3.2.3. Análisis cuantitativo por activación neutrónica (AAN)

Para el análisis cuantitativo se empleó la técnica de activación neutrónica (AAN), extrayéndose para tal efecto dos (02) réplicas alrededor de 100 mg, en forma de hojuelas de la barra de polietileno borado. Las réplicas fueron acondicionadas juntamente a

comparadores de Na de 2000 μg de masa en una cápsula de irradiación de polietileno original tal como se muestra en la figura (3.10).

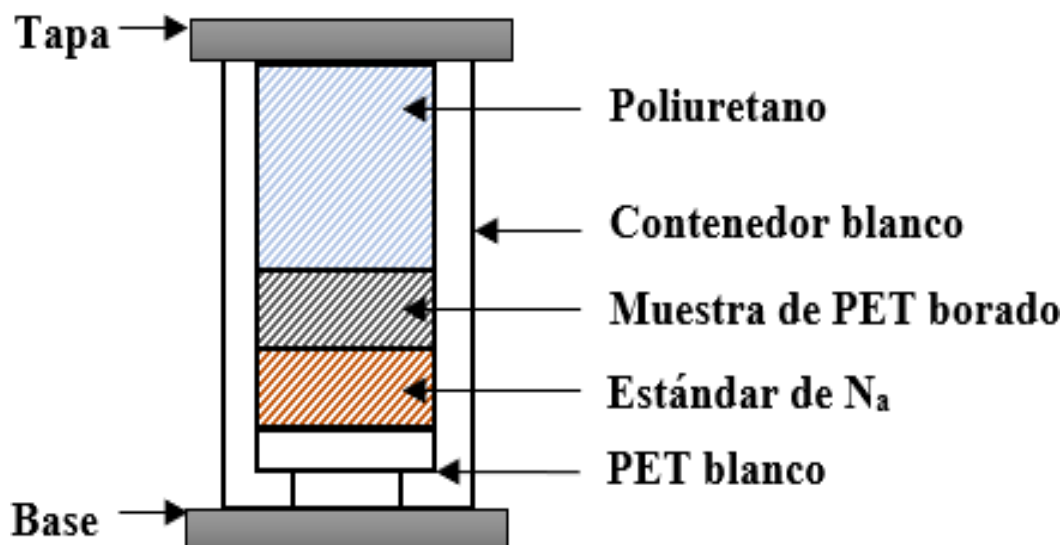


Figura 3.10. Cápsula de irradiación de polietileno blanco de alta densidad
[Fuente: propia]

Las muestras se irradiaron en el sistema neumático de irradiación de muestras (SNIM) a una potencia de 6 MW, con configuración N°08B del núcleo, con un tiempo de irradiación igual a 20 s. En la tabla (3.3) se resumen los códigos y masas de las muestras analizadas.

Tabla 3.3. Muestras de polietileno borado y estándar de sodio

Código PET	Código muestra	Código Estándar	Masa estándar	Masa muestra
		Sodio (Na)	$m \pm \Delta m (\mu\text{g})$	$m \pm \Delta m (\text{g})$
JCP3	PB03071219	pn350	$2000 \pm 0,0043$	$0,3498 \pm 0,0039$
JCP4	PB04071219	pn390	$2000 \pm 0,0044$	$0,3584 \pm 0,0038$

Las concentraciones halladas del orden de (ppm), de los elementos químicos y los resultados de la caracterización del material y el coeficiente de variación, se resumen en la tabla (3.4), permite concluir que las trazas de elementos hallados en el material usado para la fabricación de los contenedores no son muy representativas debido a la bajísima concentración de las mismas, que no deberá producir interferencias en y durante la irradiación de muestras.

Tabla 3.4. Concentración de elementos químicos en el polietileno borado

Muestras analizadas de polietileno borado/Sin Filtro de Boro				
Elemento	Código replica		Concentración Promedio	CV
	PB03071219	PB04071219	(mg/kg)	
Al	4553	-	4553	-
Cl	5892	5667	5779	2,7
I	< 30	< 30	-	-
Mn	9,5	8,8	9,2	5,8
Na	5364	5445	5405	1,1
Ti	4074	3720	3897	6,4
V	1,9	1,8	1,9	4,3

3.2.4. Acondicionamiento del dispositivo con nitruro de boro (BN)

Para el acondicionamiento del filtro de neutrones térmicos se usó el nitruro de boro en polvo, ver figura (3.11), del laboratorio *Merck KGaA, Frankfurter Strabe 250, 64293 Darmstadt (Germany)*, cuyo certificado de análisis es (1.12073.0050 *Boron nitride, Batch-S6997173*), se muestra en el [Anexo 3].



Figura 3.11. Reactivo de nitruro de boro (BN) certificado [Fuente: Tomado de TEAN]

Las especificaciones técnicas del reactivo, cuyo CAS es el N°10043-11-5 y algunas propiedades físicas y químicas son, su fórmula es BN, polvo de color blanco, inodoro su masa molar es 24,82 g/mol, con densidad de 2,34 g/cm³ a 20° C; y el tamaño de la partícula es del orden de 6-30 μm.

El proceso de acondicionamiento del filtro de nitruro de boro, fue complicado; debido a las características del material de polvo muy fino de tamaño de 6-30 μm , mecánicamente se trató de aglutinar con licowax sin resultado favorable, por lo que se probó aglutinar con silicona líquida y formar una mezcla homogénea y acondicionar el cilindro con presión usando un material de acero fabricado para el propósito, como se puede ver en la figura (3.12).



Figura 3.12 Filtros de BN cilíndrico con silicona líquida de 2mm de espesor [Fuente: propia]

Se logró el ensamble llevándose a prueba preliminar de irradiación en la caja, posición E4-4Y de la grilla del reactor a una potencia de 200 kW y una hora de irradiación.

Se observó que la película de silicona con polvo de nitruro de boro se fragiliza como se muestra en la figura (3.13), siendo inadecuado para su uso en el sistema neumático.



Figura 3.13. Fragilización de la mezcla de nitruro de boro con silicona líquida [Fuente: propia]

Se buscó mejorar el filtro tratando de aglutinar el nitruro de boro con licowax en primera instancia y luego, con plomo en polvo. En ninguno de los casos se logró aglutinar debido a que el manejo mecánico del polvo de nitruro de boro es complicado, también se estudió preparar con cera parafina, pero su temperatura de fusión de 56°C, hace inseguro su empleo en el sistema SNIM. En la figura (3.14) se puede observar que la mezcla de polvo de plomo fino y nitruro de boro no se pudo aglutinar aun usando la prensa hidráulica, pero si se logró obtener un disco de plomo solo; lo cual indica la imposibilidad del manejo mecánico del polvo de nitruro de boro.



Figura 3.14. Fragilización de la mezcla de polvo de plomo y nitruro de boro (BN)
[Fuente: propia]

Luego del trabajo preliminar, se concluyó que no hay forma de aglutinar el nitruro de boro por lo que se preparó el filtro de neutrones térmicos solamente con polvo puro de nitruro de boro (BN), sin mezcla de ninguna clase de aditamentos, el cual se acondicionó en el contenedor diseñado previamente en forma de dos cilindros concéntricos con presión de un tubo de acero inoxidable diseñado para confinar el polvo en todo el volumen del cilindro minimizando la posibilidad de que se disgregue por efecto de golpes una vez que se emplee en el sistema de neumático.

El corte transversal de la capsula con filtro de nitruro de boro se puede apreciar en la figura (3.15).

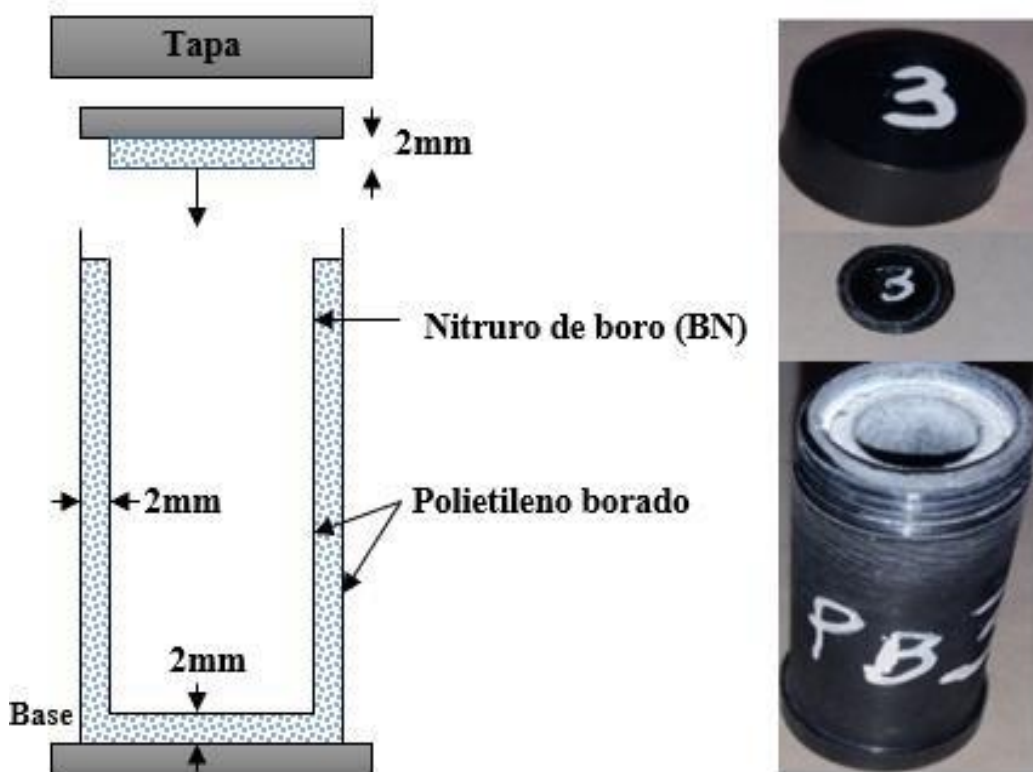


Figura 3.15. Diseño final del filtro con polvo de nitruro de boro (BN)
[Fuente: propia]

Después del acondicionamiento del filtro, las cápsulas diseñadas se sometieron a pruebas en el sistema neumático (SNIM): primero, en lo relacionado a su movilidad en el sistema neumático sin carga alguna, observándose tiempos de envío y retorno similares a las capsulas convencionales de 8 s.

La segunda prueba consistió en la resistencia al impacto por la caída libre dentro del cabezal de irradiación de 9 m de longitud; que es la parte que se encuentra sumergido en el tanque del reactor, hecho de aluminio código 1070 (pureza de 99,70 %), observándose estabilidad física de las cápsulas.

El cabezal de irradiación tiene un diámetro externo de $32,00 \pm 0,01$ mm y diámetro interior de $26,00 \pm 0,01$ mm, su parte inferior donde se aloja la cápsula tiene un diámetro de $60,0 \pm 0,1$ mm, como se puede observar en la figura (3.16).

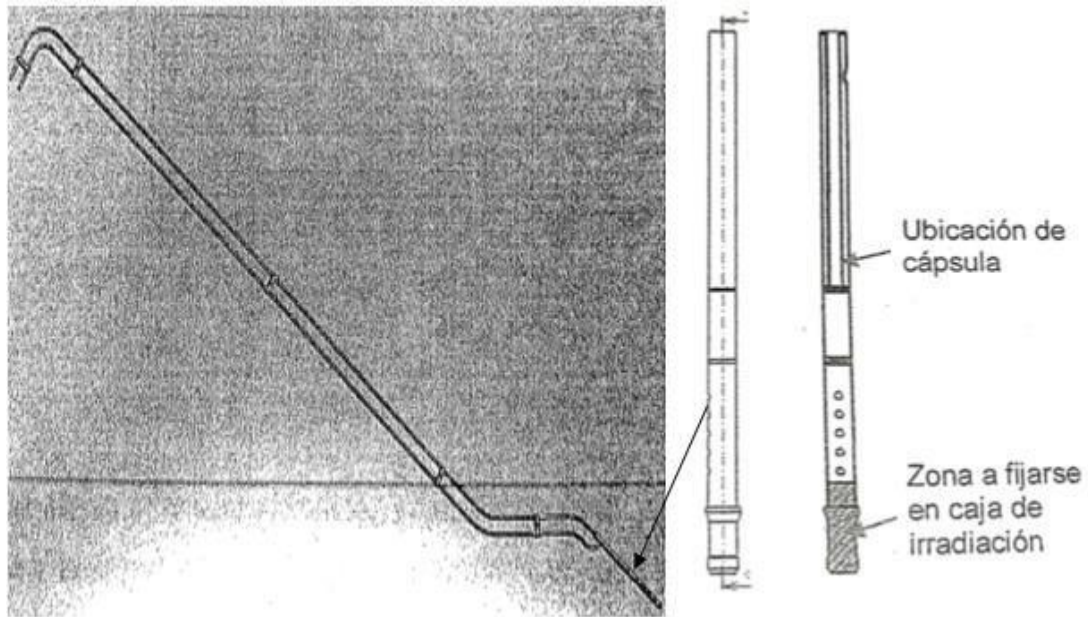


Figura 3.16. Estructura del cabezal en el sistema neumático-SNIM
[Fuente: Tomado de TEAN]

3.2.5 Determinación del factor de ganancia

En el análisis de activación de neutrones, donde el éxito relativo de un método a menudo depende de la cantidad de actividad inducida deseada en comparación con una actividad interferente, la activación epitermal es claramente de mucho interés. Se puede obtener un beneficio considerable si la reacción nuclear que produce el nucleido de interés tiene una alta activación de integral de resonancia en comparación con su sección eficaz de neutrones térmicos; es decir $Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0}$ sea muy alta. Esto puede expresarse más cuantitativamente por medio de un factor de ganancia, para este propósito, se seleccionaron monitores que se activan tanto con neutrones térmicos como epitérmicos, cuyas características nucleares se muestran en la tabla (3.5).

Tabla 3.5. Datos nucleares de monitores usados según referencias (De Corte et al.,2002)

Reacción nuclear	Producto	θ (%)	$E\gamma(\text{keV})$	$I\gamma$ [20]	$T_{1/2}$	$\bar{E}(\text{eV})$	$\sigma_0(\text{b})$	$I_0(\text{b})$	$Q_0(0)$	K_0
$^{94}\text{Zr} (n, \gamma)^{95}\text{Zr}$	^{95}Zr	17,28	724,2 756,7	0,4417 0,5446	64,02d	$6260 \pm 4\%$	$0,051 \pm 2\%$	$0,271 \pm 3,9\%$	$5,31 \pm 3,3\%$	$0,00011 \pm 1,3$
$^{96}\text{Zr} (n, \gamma)^{97}\text{Zr}$	^{97}Zr	2,76	743,4	0,9795	16,74h	$338 \pm 2,1\%$	$0,0197 \pm 3,2\%$	$4,96 \pm 3,4\%$	$251,6 \pm 1\%$	$2,92\text{E}-07$
$^{197}\text{Au} (n, \gamma)^{198}\text{Au}$	^{198}Au	100	411,8	0,9556	2,695d	$5,65 \pm 7,1\%$	$98,7 \pm 0,1\%$	$1550 \pm 1,8\%$	$15,7 \pm 1,8\%$	1
$^{63}\text{Cu} (n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	^{64}Cu	69,17	511	0,3504	12,7h	$1040 \pm 4,8\%$	$4,69 \pm 2,3\%$	5,35	1,14	0,037
$^{176}\text{Lu} (n, \gamma)^{177}\text{Lu}$	^{177}Lu	2,59	208,4	0,1038	6,73d	0,158	$2100 \pm 2,4\%$	3507	1,67	0,0714
$^{98}\text{Mo} (n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	^{99}Mo	24,13	739,5	0,302	65,94h	$241 \pm 20\%$	$0,131 \pm 2,3\%$	$6,96 \pm 6,7\%$	$53,1 \pm 6,3\%$	$8,46\text{E}-05$
$^{59}\text{Co} (n, \gamma)^{60}\text{Co}$	^{60}Co	100	1173,2 1332,5	0,9985 0,9998	1925,3d	$136 \pm 5,1\%$	$37,1 \pm 0,4\%$	$73,9 \pm 2,7\%$	$1,993 \pm 2,7\%$	$1,32 \pm 0,5$

Los monitores seleccionados son materiales metálicos de referencia en forma de hojuelas y/o en forma de alambres, los cuales se cortaron apropiadamente con tijera de acero inoxidable ; teniendo en cuenta los cuidados de contaminación, se lavaron con alcohol de 96° y luego se lavaron con agua bidestilada, y se secaron con lámpara infrarrojo ,para después pesar en una balanza electrónica de marca METTLER TOLEDO, con una tolerancia de 0,01 mg; luego colocado cada monitor por separado en bolsas de polietileno esterilizados y finalmente se adosaron en forma de Sándwich, tal como se muestra en la figura (3.17).

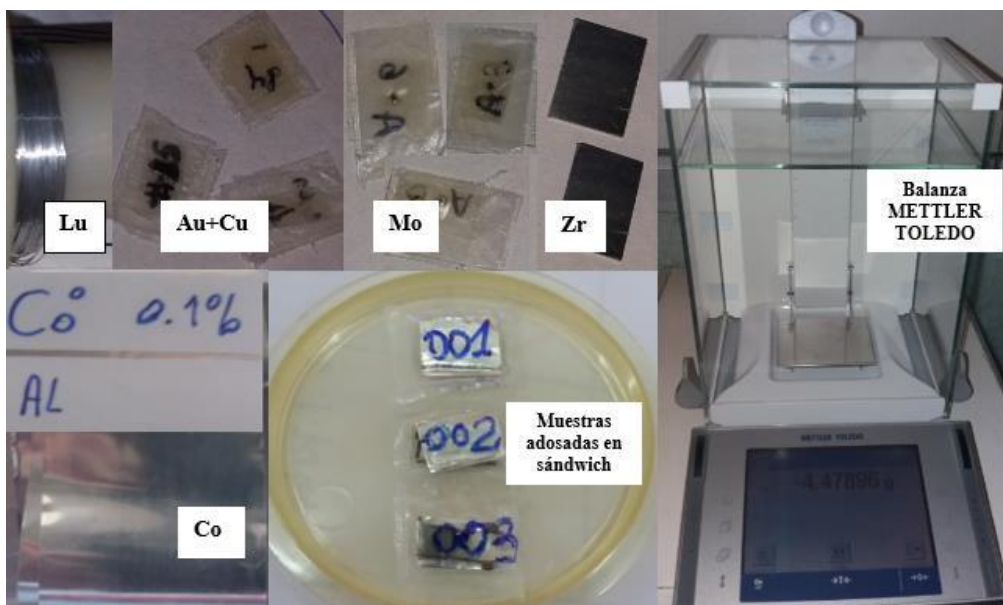


Figura 3.17. Monitores usados, balanza y muestras adosadas para la irradiación [Fuente: propia]

En la figura (3.18), se muestra la forma que se acondicionaron los monitores en la base del contenedor dentro de un material de poliuretano cortado simétricamente en el centro de este; tanto en el contenedor sin filtro (convencional); así como en el contenedor borado con filtro de nitruro de boro (BN). Las muestras fueron posteriormente codificadas y se consignan las masas, los datos de procedencia, las características de pureza, estos datos son consignados en la tabla (3.6).

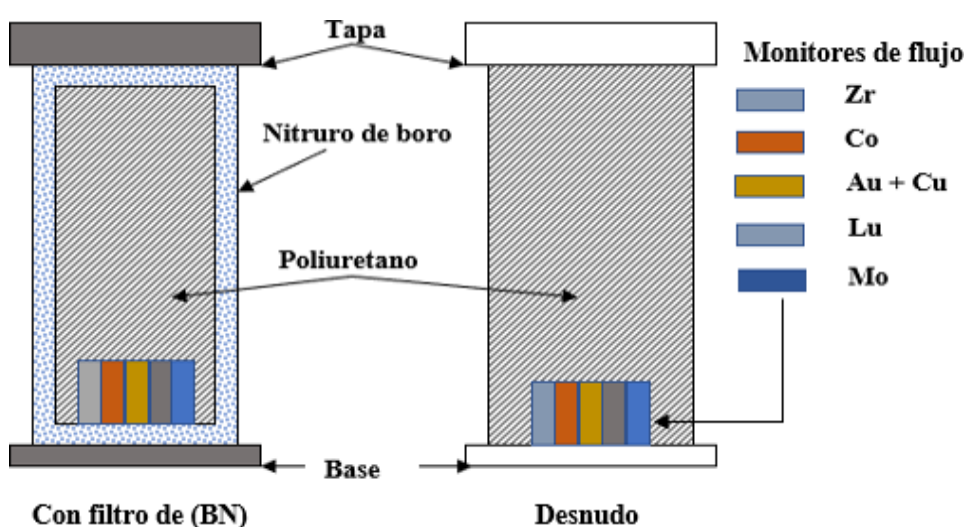


Figura 3.18. Monitores adosados con filtro de nitruro de boro (BN) y sin filtro [Fuente: propia]

Tabla 3.6. Datos de codificación de contenedor y de los monitores

Código PET	Código muestra	Masa muestra m±Δm(mg)	Ficha de datos	Procedencia
	Lu-185b	0,70±0,01	Alambre (Al-2,7% Lu) -0,25mm /99,95%	<i>Reactor, experiment, INC, CA94089-2231, USA.</i>
CP19				
Sin filtro	AuCu-185b	9,74±0,01 0,151(Au) 9,589(Cu)	Alambre (Cu- 1,55% Au)	
	Zr-185b	423,31±0,01		
	Mo-50b	5,07±0,01		
	Co-50b	21,92±0,01		
	Zr-185	347,34±0,01		
	AuCu-185	7,86±0,01	Alambre (Cu- 1,55% Au)	
PB6		0,122(Au) 7,738(Cu)		
Con filtro de nitruro de boro (BN)	Lu-185	0,70±0,01		
	Mo-50	5,43±0,01		
	Co-50	21,22±0,01	Al-0,1% Co (hojuela de 0,1mm)	<i>IRMM-527RA JRC-EC</i>

Los monitores, se irradiaron en la posición B1, de configuración del núcleo N°08, con una potencia de 6,00 MW, durante las pruebas en caliente en el sistema SNIM, con fecha 18 de octubre del 2019, durante 300 s; con una tasa de dosis < 300 mr/h, hora de inicio de operación 10:30:00 a.m., hora final de operación 13:00:00 p.m.; hora de llegada de potencia 11:06:00 a.m. y hora de bajada de potencia 15:51:00 p.m.; con una secuencia de barras BC1=47,1; BC2=0 y BCF= 50,5. Con una tasa de exposición en contacto con el contenedor cp19 de 840 mR/h y de 160 mR/h del contenedor PB6, por lo que se esperaron 3 días de decaimiento y su apertura para su posterior medición. Y luego de la medición, el tratamiento de los espectros se desarrolló en el espectrómetro gamma marca Canberra, para dos geometrías diferentes uno a 185 mm y otro a 50 mm, fuente-detector.

La viabilidad de la activación epitérmica requiere, en cada caso, el conocimiento de la ratio de actividades específicas sin cubierta con respecto a la cubierta de boro de los nucleidos involucrados en la posición de irradiación a utilizar. Estos valores fueron

determinados experimentalmente para un grupo de radioisótopos con valores de Q_0 , I_0 y σ_0 bien determinados (De Corte et al.,2002), la ratio de actividades específicas normalizadas se halla según la ecuación (2.52) y se presenta en la tabla (3.7) y las grafica de la curva de ganancias se muestran en la figura (3.19)

Tabla 3.7. Ratio de actividades específicas desnudo a cubierta con boro

Radioisótopo	$Q_0=I_0/\sigma_0$	Energía (Kev)	Asp (desnudo)dps ⁻¹	Asp (con filtro de B)dps ⁻¹	Ratio=(Aspd/AspB)
Zr-95	5,05	724,0	68,92454621	15,07848485	4,571
Zr-97	251,6	743,0	1597,354898	1262,825808	1,265
Zr-95	5,05	756,0	69,64365525	14,8959152	4,675
Au-198	15,7	411,8	7273159,36	2261741,604	3,216
Cu-64	1,14	511,0	2090725,829	368913,4126	5,667
Lu-177	1,67	208,0	55563,69755	13895,82976	3,999
Mo-99	53,1	739,5	2268,013448	1107,051116	2,049
Co-60	1,99	1173,0	9,264032656	1,64118143	5,645
Co-60	1,99	1332,5	9,146332799	1,653545325	5,531

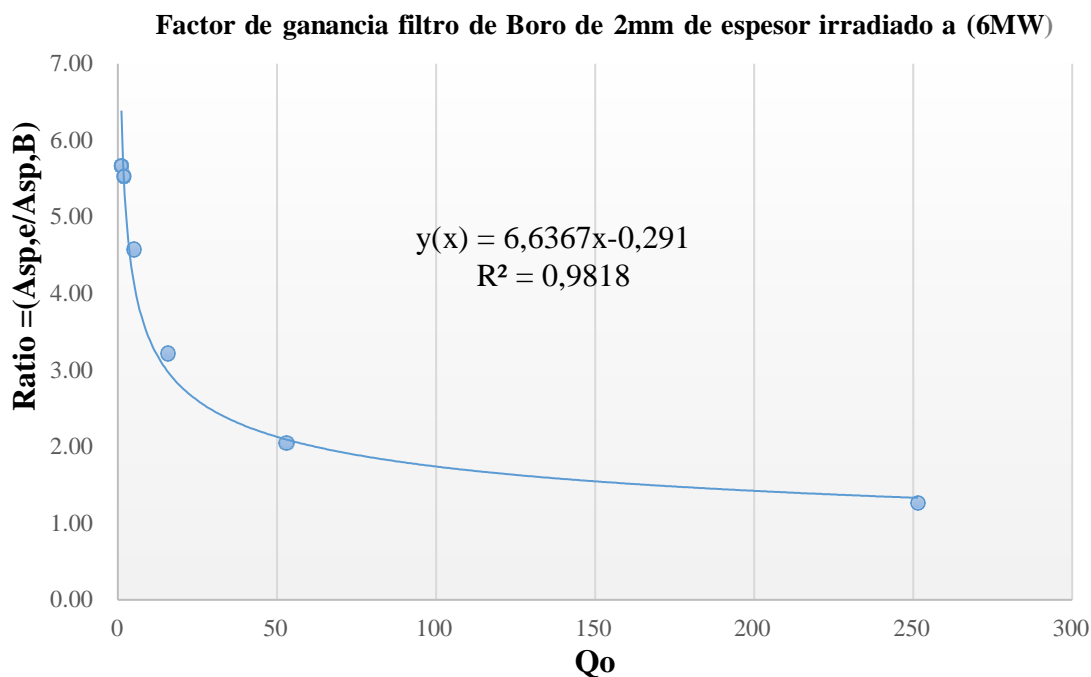


Figura 3.19. Curva del factor de ganancia para radioisótopos con $1 < Q_0 < 252$
[Fuente: propia]

CAPÍTULO IV

RESULTADOS EXPERIMENTALES

4.1. Irradiación y medición de muestras

Se determinó el gradiente de flujo neutrónico a lo largo de la capsula de irradiación fabricada (con boro), para corregir la diferencia por posición de irradiación entre el comparador de oro y la muestra, empleando alambre de cobre de 99,99 % de pureza; posteriormente, se determinó el factor de ganancia descrito en (3.2.5); con el grupo de monitores de tabla (3.5) seleccionados por las reacciones nucleares que presentan tanto con neutrones térmicos y epitérmicos. Finalmente, se caracteriza los parámetros de flujo neutrónico en la posición de irradiación preestablecida; para lo cual usamos otro grupo de monitores de alta pureza certificadas.

4.1.1. Determinación del gradiente de flujo

Para caracterizar el gradiente de flujo en el canal de irradiación del sistema neumático (B1), se usó como monitor de flujo dos (02) alambres de cobre electrolítico de 99,99% de pureza con un diámetro de $0,56 \pm 0,01$ mm, uno de $37,0 \pm 0,01$ mm y $47,0 \pm 0,01$ mm de longitud. Los datos nucleares para la reacción $^{63}\text{Cu} (n, \gamma)^{64}\text{Cu}$, con una abundancia $\theta = 69,17$ %, sección eficaz térmico $\sigma_{th} = 4,28$ barn, integral de resonancia $I_0 = 4,88$ barn, periodo de semidesintegración $T_{1/2} = 12,74$ h, pico gamma $E_{\gamma} = 511,0$ keV, $Q_0 = 1,1$; $E_r = 1040$ eV. Los alambres usados se pueden apreciar en la figura (4.1).

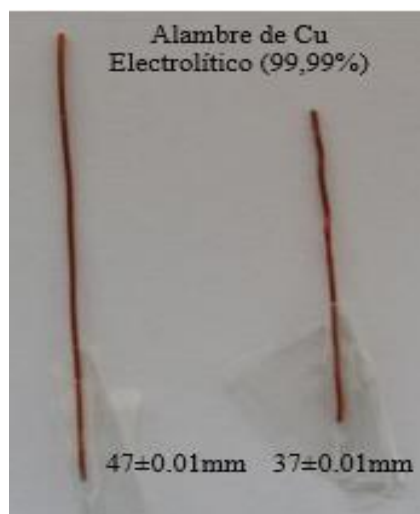


Figura 4.1. Alambres de Cu usados para hallar gradiente de flujo
[Fuente: propia]

Se acondicionaron en el eje con simetría axial de un soporte de poliuretano en forma cilíndrica cortado con la misma altura de las dimensiones internas de las cápsulas, tanto para el contenedor convencional (de color blanco); así como para el contenedor diseñado con filtro de nitruro de boro (BN) como se pueden apreciar en la figura (4.2).

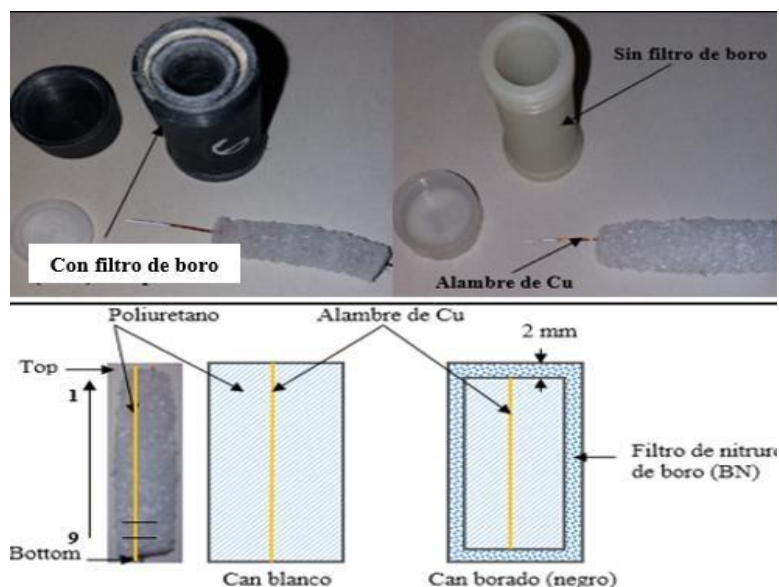


Figura 4.2. Configuración del alambre de Cu en el eje axial
[Fuente: propia]

El proceso de irradiación se efectuó el 20 de junio de 2019 bajo los siguientes parámetros: Configuración del núcleo (N°08), potencia de 0,200 MW, modo 4 de operación, facilidad de sistema neumático, (600,0±0,1 s) de tiempo de irradiación, secuencia de barras BC1=48,8, BC2=100 y BCF= 41,9 y tasa de exposición en contacto luego de la apertura de 0,6 mR/h. La cápsula convencional y la cápsula borada fueron enviadas mediante el SNIM a la posición B1 de la grilla del reactor en forma consecutiva para minimizar la variación de flujo entre uno y otro envío. Finalizada la irradiación, los alambres de cobre fueron extraídos de los contenedores de polietileno siguiendo los procedimientos y protocolos de seguridad colocándolos en blindajes de plomo esperando 4 días para su decaimiento adecuado para luego cortar el alambre en nueve segmentos de $\approx 5,2\pm 0,1$ mm y $\approx 4,1\pm 0,1$ mm de longitudes y pesada en balanza de 0,01 mg de precisión. Toda la medición se realizó en el mismo detector HPGe y a la misma distancia, con tiempo de conteo suficiente para lograr una incertidumbre de área menor al 0,5 %. Se calculó la actividad normalizada al tiempo final de irradiación de cada segmento graficando su variación en función de la longitud, tal como se muestra en las figuras (4.3) y (4.4).



Figura 4.3 Distribución de flujo axial en la facilidad de irradiación con boro [Fuente: RENU]

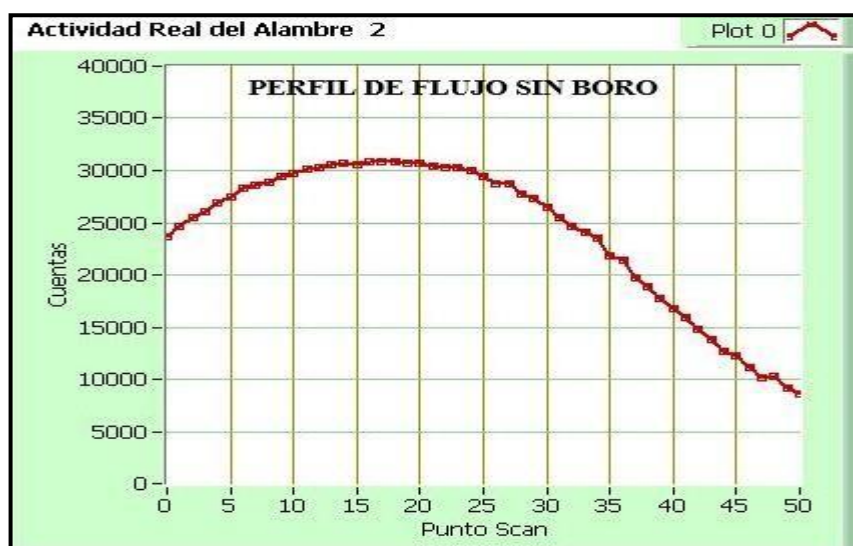


Figura 4.4 Distribución de flujo axial en la facilidad de irradiación sin filtro [Fuente: RENU]

La distribución axial del flujo neutrónico en los dos tipos de cápsula es diametralmente opuesta, según la gráfica de la figura (4.3), el comportamiento en la cápsula borada está marcada por la presencia mayor de BN en su base y por consiguiente de una mayor absorción de los neutrones térmicos en toda la longitud del contenedor, muestra mayor flujo epitérmico; en cambio en la figura (4.4), se observa una distribución natural Maxwelliana, demuestra la presencia predominante del flujo de neutrones térmicos.

En tabla (4.1), se muestra las actividades normalizadas determinadas para ambos tipos de cápsula o contenedor y su diferencia relativa porcentual.

Tabla 4.1. Actividades normalizadas de los alambres de cobre con y sin boro

Posición del monitor de flujo	Asp (con boro B) ^a	Asp(desnudo) ^b	Ratio=(Aspd/AspB) ^c	% ^d
1(top)	15948041,92	15088524,3	0,94610513	5,4
2	15829092,22	15245854,3	0,96315405	3,7
3	15473103,17	15862511,5	1,02516679	-2,5
4	15258054,75	15879086,4	1,04070189	-4,1
5	15306696,89	16210824,3	1,05906744	-5,9
6	15337860,94	16438450,2	1,07175638	-7,2
7	14684672,32	16708407,1	1,13781273	-13,8
8	14763623,57	16649786,4	1,12775745	-12,8
9(bottom)	15010826,94	16635278,8	1,10821868	-10,8

Nota: ^a AspB=Actividad específica con cubierta de boro; ^b Aspd=Actividad específica sin cubierta de boro(desnudo); ^c Ratio= Razón de actividades específicas; ^d %= Error porcentual de las actividades específicas.

4.1.2. Determinación del flujo neutrónico en el punto de irradiación

El método de determinación de flujo de neutrones para aplicar la estandarización Ksubcero(K₀), obedece en primer lugar a una adecuada selección de monitores, y valores de coincidencias (COI) proporcionales a la unidad. Una siguiente etapa implica la evaluación de los datos nucleares y las constantes empleadas en el cálculo de los parámetros característicos del flujo neutrónico según la metodología implementada. En la tabla (4.2), se presentan los parámetros de los principales monitores de flujo empleados.

Tabla 4. 2. Constantes, datos nucleares para el cálculo de los parámetros característicos de flujo neutrónico tomado de (De Corte et al.,2002)

Monitor	Producto	E _γ (keV)	I _γ (%)	σ ₀ (b)	I ₀ (b)
¹⁹⁷ Au	¹⁹⁸ Au	411,8	0,95560	98,7±0,1	1550±28
¹⁷⁶ Lu	¹⁷⁷ Lu	208,4	0,10380	2100±50	3507
⁵⁹ Co	⁶⁰ Co	1173,2	0,99850	37,1±0,1	73,9±2,2
		1332,5	0,99983		
⁹⁸ Mo	⁹⁹ Mo	739,5	0,24130	0,131±0,003	6,96±0,47
⁶³ Cu	⁶⁴ Cu	511,0	0,3504	4,69±0,11	5,35
⁹⁴ Zr	⁹⁵ Zr	724,2	0,4417	0,051±0,001	0,271±0,011
⁹⁴ Zr	⁹⁵ Zr	756,7	0,5446	0,051±0,001	0,271±0,011
⁹⁶ Zr	⁹⁷ Zr	743,4	0,9795	0,0197±0,0003	4,96±0,09

En las tablas (4.3) y (4.4) se presentan las actividades medidas en desnudo como con filtro de boro, respectivamente.

Tabla 4.3. Valores determinados de actividades de monitores en desnudo

Fecha irradiación: 18/10/2019		Hora salida: 12:15:50		T-Irradiación:300 s		Posición: B-1		Potencia:6 MW		Configuración:8				
SIN FILTRO DE NITRURO DE BORO				Detector: Canberra										
Elemento	Radioisótopo	Masa alícuota (µg)	Fracción de masa	Masa neta (µg)	Fech-Med	Geo-medición	COI	Hora de medición	T_Vivo (s)	T_Real (s)	T_decai (s)	Energía (keV)	Eficiencia (ε _p)	Área (dps ⁻¹)
Au	Au-198	9740	0,0155	150,97	23/10/2019	CANBERRA_185	1,000	8:17:00	1945,9	2140	417670	411,8	0,00467357	106929
Lu	Lu-177	700	0,027	18,90	22/10/2019	CANBERRA_185	1,000	16:05:00	1753,6	1760	359350	208,36	0,00605346	23602
Co	Co-60	21920	0,001	21,92	23/10/2019	CANBERRA_50	0,961	14:32:00	7523,9	7550	440170	1173,2	0,02353143	24683
Co	Co-60	21920	0,001	21,92	23/10/2019	CANBERRA_50	0,956	14:32:00	7523,9	7550	440170	1332,5	0,02142511	22991
Mo	Mo-99	5070	0,995	5044,65	23/10/2019	CANBERRA_50	0,912	8:55:00	12867,0	13150	419950	739,5	0,03173815	266155
Cu	Cu-64	9740	0,9845	9589,03	23/10/2019	CANBERRA_185	1,000	8:17:00	1945,9	2140	417670	511	0,00423859	106929
Zr	Zr-95	423310	1	423310	23/10/2019	CANBERRA_185	1,000	12:35:24	6182,9	6260,3	433174	724	0,00363171	168096
Zr	Zr-97	423310	1	423310	23/10/2019	CANBERRA_185	1,000	12:35:24	6182,9	6260,3	433174	743	0,00359093	59658
Zr	Zr-95	423310	1	423310	23/10/2019	CANBERRA_185	1,000	12:35:24	6182,9	6260,3	433174	756	0,00356391	203215

Tabla 4.4. Valores determinados de actividades de monitores cubiertos con filtro de boro

Fecha de irradiación:18/10/2019					Hora salida: 12:22:51			T-Irradiación: 300 s			Posición B-1		Potencia: 6 MW	
CON FILTRO DE NITRURO DE BORO					Detector: Canberra			Configuiración:8						
Elemento	Radioisótopo	Masa alícuota (µg)	Fracción de masa	Masa neta (µg)	Fecha-Med	Geo-medición	COI	Hora de medición	T-Vivo (s)	T- Real (s)	T- decai (s)	Energía (keV)	Eficiencia (ε _p)	Área (dps ⁻¹)
Au	Au-198	7860	0,0155	121,8	22/10/2019	CANBERRA-185	1,000	12:29:03	3685,2	3800	345972	411,8	0,00467357	1146581
Lu	Lu-177	700	0,027	18,90	22/10/2019	CANBERRA-185	1,000	13:33:45	5565,3	5580	349854	208,36	0,00605346	18888
Co	Co-60	21220	0,001	21,22	22/10/2019	CANBERRA-50	0,961	16:36:00	49375,0	50000	360789	1173,2	0,02353143	27980
Co	Co-60	21220	0,001	21,22	22/10/2019	CANBERRA-50	0,956	16:36:00	49375,0	50000	360789	1332,5	0,02142511	26224
Mo	Mo-99	5430	0,995	5402,9	22/10/2019	CANBERRA-50	0,912	15:08:10	3178,4	3226	355519	739,5	0,03173815	42034
Cu	Cu-64	7860	0,9845	7738,2	22/10/2019	CANBERRA-185	1,000	12:29:03	3685,2	3800	345972	511	0,00423859	83561
Zr	Zr-95	347340	1,00	347340	22/10/2019	CANBERRA-185	1,000	10:45:53	6026	6080,1	339782	724	0,00363171	28937
Zr	Zr-97	347340	1,00	347340	22/10/2019	CANBERRA_185	1,000	10:45:53	6026	6080,1	339782	743	0,00359093	109974
Zr	Zr-95	347340	1,00	347340	22/10/2019	CANBERRA_185	1,000	10:45:53	6026	6080,1	339782	756	0,00356391	351150

En la figura (4.5), se presenta el resultado del método de iteración para la determinación de los parámetros del flujo neutrónico (f y α), la temperatura neutrónica determinados por el software Microsoft Excel-flujo_b1_181019-6mw.xls y en la tabla (4.5) se resumen los valores de los parámetros f y α y los flujos de neutrones hallados.

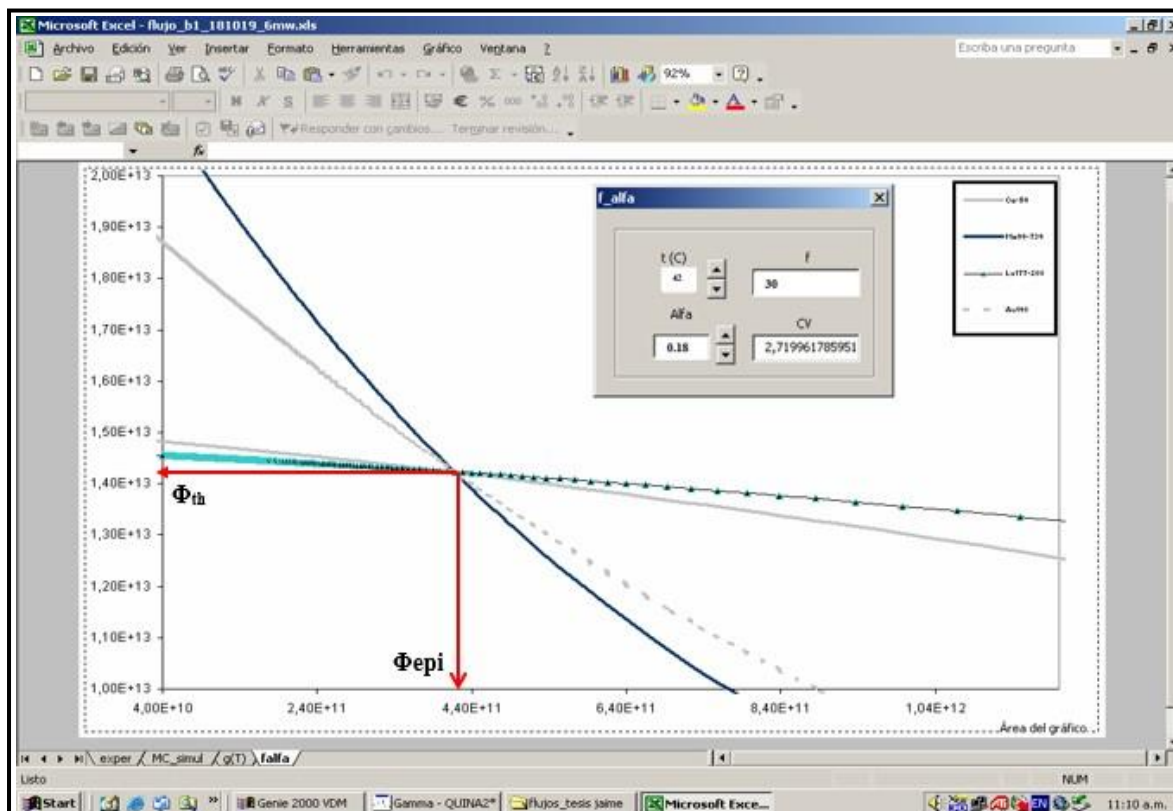


Figura 4.5. Curva de iteración (α , $f(\alpha)$)
[Fuente: TEAN]

Tabla 4.5. Parámetros característicos del flujo y espectro neutrónico según grupos de monitores elegidos

Monitores	deflujo	$f=$ $\frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}}$	$\alpha=$	CV (%)	Φ_{th}	Φ_{epi}	T_n (°C)
Au/Cu, Lu, Co, Mo, Zr		30 ± 3	$0,18 \pm 0,02$	2,7199	$(1,36 \pm 0,2) 10^{13} \text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$	$(4,54 \pm 0,2) 10^{11} \text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$	42

4.1.3. Preparación de comparador de oro

Se seleccionó el oro como comparador, cuya sección eficaz para reacción de captura radiactiva es $98,65 \pm 0,09$ barns, su período de semi desintegración de $T_{1/2} = 2,695$ d, con pico de energía plena o fotónico $E_{\gamma} = 411,8$ keV; y una abundancia isotópica θ de 100 %, con valor de $Q_0 = 15,7$; $I_0 = 1550$ barns y energía de resonancia de $\overline{E_r} = 5,65 \pm 7,1$ Kev, datos tomados de (Molnar, 2000). El comparador de oro se preparó, a partir de un estándar de Oro para ICP marca Merk de 10000 $\mu\text{g/g}$, con densidad de 1,03 g/ml. Se tomó una alícuota de 200 μL pesada en balanza de 0,001 mg de precisión de marca TOLEDO METTLER, para luego verter en una vasija pírex; conteniendo 10,011 g de óxido de silicio (SiO_2) finamente molido.

A la vasija se agrega agua ultra pura hasta alcanzar la misma altura del polvo; y finalmente se coloca dentro de un desecador por 12 días para la evaporación del contenido; posteriormente luego el contenido se seca por lámpara de luz infrarroja por media hora, como se muestra en la figura (4.6).

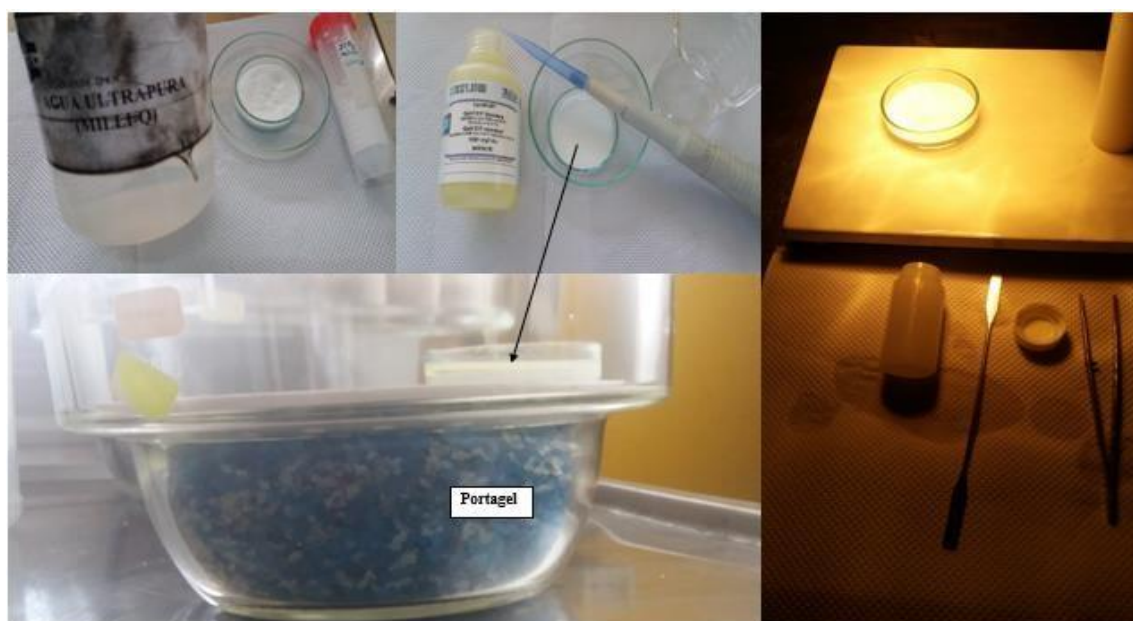


Figura 4.6. Materiales usados en la preparación del estándar de Au
[Fuente: propia]

Para luego homogenizar por una hora, el procedimiento se puede observar en la figura (4.7).

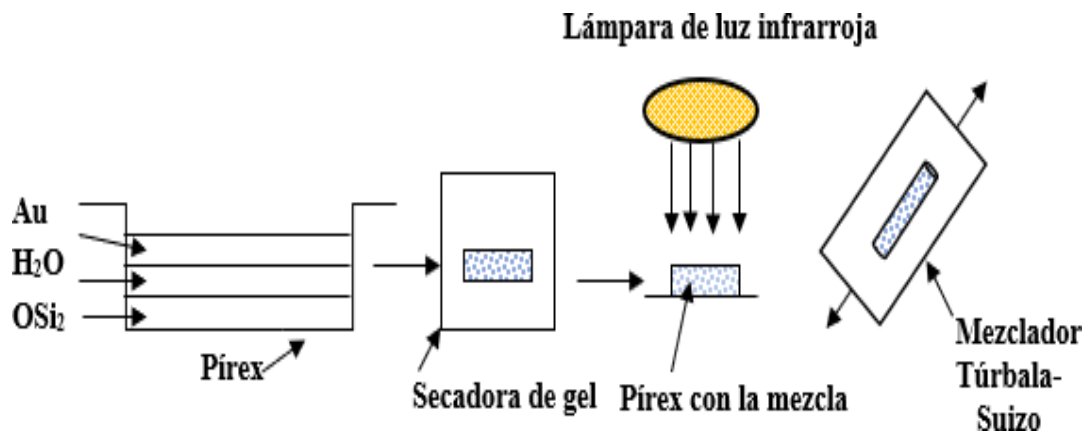


Figura 4.7. Proceso de preparación del comparador de oro
[Fuente: propia]

El factor de concentración del comparador de oro se muestra en la tabla (4.6).

Tabla 4.6. Masa del comparador de oro en (μg)

Código estándar	Masa estándar de Au \pm $\Delta m=0,0001$	Factor de concentración	Masa de Au (μg)
		Masa Au/ (masa OSi_2) = (1924,49 $\mu\text{g}/10,011\text{g}$) = 192,238($\mu\text{g}/\text{g}$)	$m^*192,238$
	0,0001	0,003	$m(\mu\text{g}) \pm \Delta m$
Au-01	0,7233	192,238	139,0534 \pm 0,0214
Au-02	0,7242	192,238	139,2264 \pm 0,0214
Au-03	0,7442	192,238	143,0635 \pm 0,0215
Au-04	0,7359	192,238	141,4718 \pm 0,0214
Au-05	0,7014	192,238	134,8434 \pm 0,0213
Au-06	0,6773	192,238	130,2028 \pm 0,0213
Au-07	0,7064	192,238	135,7969 \pm 0,0213
Au-08	0,7363	192,238	141,5448 \pm 0,0214
Au-09	0,5728	192,238	110,1139 \pm 0,0209
Au-10	0,5324	192,238	102,3475 \pm 0,0208
Au-11	0,5794	192,238	111,3827 \pm 0,0210
Au-12	0,5899	192,238	113,4012 \pm 0,0210
Au-13	0,5461	192,238	104,9812 \pm 0,0209
Au-14	0,6154	192,238	118,3033 \pm 0,0211
Au-15	0,4369	192,238	83,9888 \pm 0,0205

La preparación de muestras y su acondicionamiento tuvo un cuidado especial a fin de evitar la contaminación cruzada, los contenedores usados son pequeños cilindros de

material polietileno- HDPE; de $\phi = 9,35 \pm 0,01$ mm y altura $h = 12,35 \pm 0,01$ mm, con una masa de $0,26361 \pm 0,00001$ g, debidamente lavadas y esterilizadas de fabricación EEUU. Ver figura (4.8).



Figura 4.8. Contenedores HDPE, usados para las muestras y estándar [Fuente: Tomado de TEAN]

4.1.4. Preparación y acondicionamiento de muestras de referencia certificadas

En la siguiente etapa se seleccionó como material de estudio la muestra de referencia certificada, “*Standard Reference Material[®] 2711a-1633c-Trace Elements in Coal Fly Ash*” certificado por -National Institute of Standards & Technology-Gaithersburg, MD 20899-23 June 2011, ver figura (4.9).



Figura 4.9. Material de referencia SRM-1633c (Coal Fly Ash) [Fuente: Tomado de TEAN]

El material de referencia SRM-1633c (Coal Fly Ash), es una ceniza de carbón bituminosa que se tamizó a través de una abertura de tamiz nominal de 74 μm (malla 200) y luego se mezcló para asegurar la homogeneidad. Los valores certificados para 20 constituyentes se consignan en la tabla (4.7) como fracciones de masa sobre una base de masa seca; el valor certificado por el NIST (*National Institute of Standards & Technology*), determinas por INNA; se muestran en el [Anexo 4].

Tabla 4.7. Valores certificados del material de referencia *SRM-1633c*

Valores de fracción de masa certificados (certificada) -INDE-R72				Valores de fracción de masa de referencia-(no certificada) /INDE-R72			
Constituyente	Fracción de masa (%)	Constituyente	Fracción de masa (mg/Kg)	Constituyente	Fracción de masa (%)	Constituyente	Fracción de masa(mg/Kg)
Al	13,28 \pm 0,61	As	186,2 \pm 3,0	S	0,110 \pm 0,019	Cr	258,0 \pm 6,0
Ba	0,1126 \pm 0,0033	Cd	0,758 \pm 0,005	Si	21,30 \pm 0,010	Cs	9,39 \pm 0,22
Ca	1,365 \pm 0,040	Co	42,9 \pm 3,5	P	0,192 \pm 0,010	Dy	18,70 \pm 0,30
Fe	10,49 \pm 0,39	Cu	173,7 \pm 6,4			Eu	4,67 \pm 0,07
K	1,773 \pm 0,066	Hg	1,005 \pm 0,022			La	87,0 \pm 0,30
Mg	0,498 \pm 0,052	Mn	240,2 \pm 3,4			Lu	1,32 \pm 0,03
Na	0,1707 \pm 0,0059	Ni	132,0 \pm 10,0			Sc	37,6 \pm 0,6
Ti	0,724 \pm 0,030	Pb	95,2 \pm 2,5			Se	13,9 \pm 0,5
		Rb	117,42 \pm 0,53			Ta	1,58 \pm 0,03
		Sb	8,56 \pm 0,29			Tb	3,12 \pm 0,06
		Sr	901 \pm 56			Th	23,0 \pm 0,4
		V	286,2 \pm 7,9			U	9,25 \pm 0,45
		Sm	19			Zn	235 \pm 14
		Yb	7,7				

Las incertidumbres expandidas asociadas con los valores de referencia son intervalos de dos lados con factor de covariancia de 2 (aproximadamente 95 % de confianza), calculadas a partir de la incertidumbre combinada expresada al nivel de una desviación estándar según la nota Técnica 1297(6) del NIST. Las muestras de referencia se acondicionaron en envases de polietileno de alta densidad (HDP), con alta resistencia a la radiación, con bajo contenido de impurezas químicas y absorbedores de neutrones, de dimensiones, $\phi = 9,35 \pm 0,01$ mm de diámetro; altura igual a $12,35 \pm 0,01$ mm, permiten una capacidad máxima de 0,85 g (densidad igual a la unidad). En la figura (4.10) se muestra el acondicionamiento realizado en el contenedor borado con filtro de boro; el comparador de oro va en la parte inferior a continuación la muestra y luego el can de boro, luego se enrosca con teflón y se asegura con cinta adhesiva la tapa según normas de seguridad radiológica,

para evitar cualquier escape de muestras o estándar por accidentes o rotura del contenedor, durante el envío en el tubo neumático-SNIM.

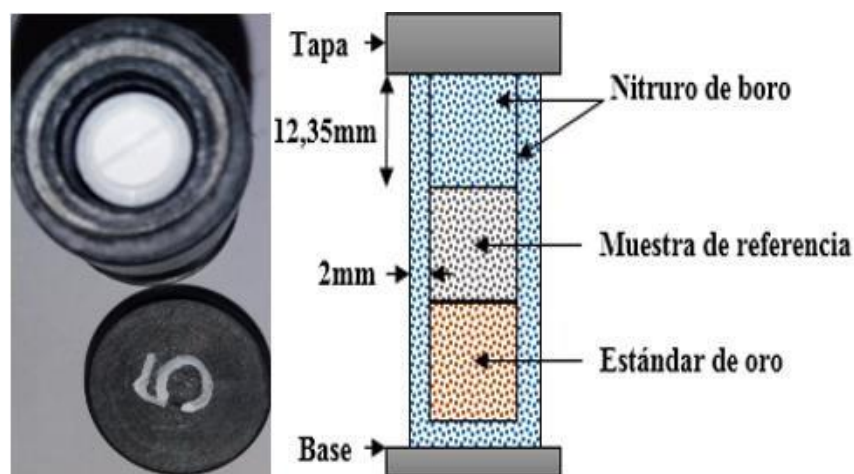


Figura 4.10. Contenedor acondicionado con comparador de Au, muestra y filtro de BN
[Fuente: propia]

En la figura (4.11), se muestra el acondicionamiento del estándar de oro y la muestra de referencia, en el contenedor convencional usados en las irradiaciones; ubicados en el eje de simetría del cilindro uno sobre otro asegurado con poliuretano en los extremos como en la parte superior, presionando afín de que tanto el estándar como la muestra no se desalineen durante el desplazamiento hacia el punto de irradiación en el núcleo del reactor, luego se aseguran el enroscado de la tapa don teflón y una cinta adhesiva, con el propósito de evitar escape de los materiales encapsulados.

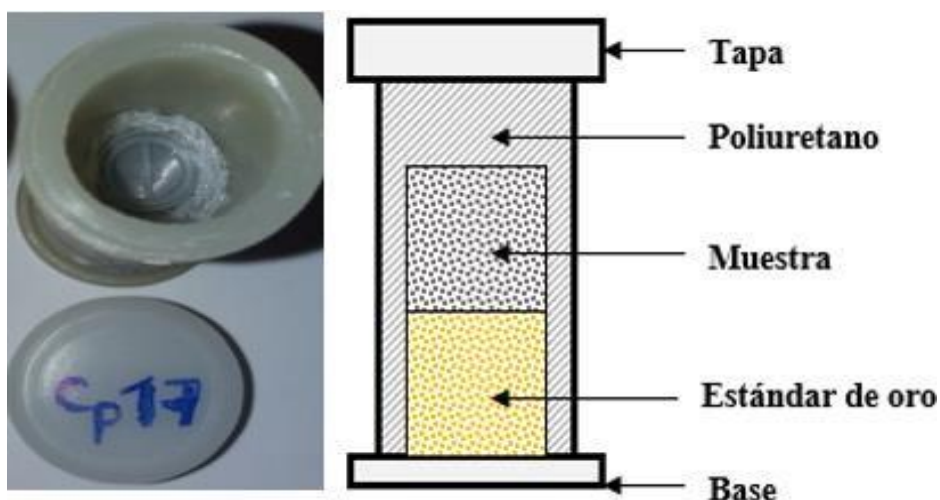


Figura 4. 11. Contenedor acondicionado con comparador de Au y muestra sin filtro
[Fuente: propia]

La geometría en el acondicionamiento del estándar, de la muestra y el filtro de nitruro de boro en el contenedor es importante, previamente a la irradiación, para tomar en cuenta el factor de corrección del gradiente de flujo de neutrones térmicos como epitérmicos que reciben tanto el estándar como la muestra en la irradiación, este paso es previo a la irradiación, además del acondicionamiento de muestras y estándar de oro, se pesan las muestras, estándar y se organiza codificando tanto el contenedor, el estándar, así como la muestra, estos datos se resumen en la tabla (4.8).

Tabla 4.8. Codificación de muestras de referencia certificados *SRM-1633c*

Código envase	Código estándar	Código muestra	Código Filtro (BN)	Masa estándar (μg/g)	Masa muestra(g)	Masa filtro (BN)(g) ^a
PB3	Au08	Cfa2	BN4	141,5448±0,0214	0,5991±0,0023	0,1662±0,0084
Cp13	Au10	Cfa6	Sin filtro	102,3475±0,0208	0,5805±0,0024	Sin filtro
PB4	Au09	Cfa3	BN6	110,1139±0,0209	0,5920±0,0023	0,1801±0,0077
Cp14	Au11	Cfa7	Sin filtro	111,3827±0,0210	0,5965±0,0023	Sin filtro
Cp16	Au12	Cfa8	Sin filtro	113,4012±0,0210	0,5342±0,0026	Sin filtro
PB5	Au02	Cfa4	BN7	139,2264±0,0214	0,5958±0,0023	0,1676±0,0083
PB6	Au04	Cfa5-1	BN8	141,4718±0,0214	0,5834±0,0024	0,1624±0,0085
Cp17	Au13	Cfa9-1	Sin filtro	104,9812±0,0209	0,5747±0,0024	Sin filtro

Nota: ^a Masa del filtro de nitruro de boro en el contenedor HDP

4.1.5. Irradiación

En la etapa de irradiación y medición de muestras, se cumplieron protocolos establecidos, desde la autorización, la supervisión del especialista en seguridad, quien verifica el proceso de envío de muestras y la medición de actividad en las muestras al retorno de la irradiación, observando que no sea superior a la dosis recomendada para la seguridad del analista antes de llevar al laboratorio de espectrometría gamma.

Se irradiaron muestras de referencia *SRM-16633c (Coal Fly Ash)*, el 06 de febrero de 2020; codificados como Cfa2, Cfa6, Cfa3, Cfa7, Cfa8, Cfa4, tanto en contenedores con filtro de nitruro de boro; así como en contenedores convencionales sin filtro, con una configuración del núcleo (N°08), potencia de 0,200 MW modo 4, en el sistema neumático, hora de inicio de operación 08:35:00 a.m., hora llegada de potencia 09:15:00 a.m., hora bajada de potencia 11:06:00 a.m. y hora final de operación 16:10:00 p.m.; con secuencia de barras BC1=30, BC2=42,2 y BCF=100, durante (1800 ± 1) s), y las muestras *SRM-1633c*, Cfa5-1, Cfa9-1; se irradiaron el 13 de febrero de 2020, con la configuración del núcleo (N°08), potencia de 0,200 MW modo 4, en el sistema neumático, hora de inicio de operación 12:48:00 p.m., hora llegada de potencia 13:26:00 p.m., hora baja de potencia 15:26:00 p.m. hora final de operación 16:10:00 p.m, durante (1800 ± 1) s).

En la tabla (4.9) se consignan las condiciones de irradiación, de las muestras de referencia *NIST-SRM-1633c* y el comparador de oro usados en la investigación.

Tabla 4.9. Condiciones de irradiación de las muestras estándar *SMR-1633c*

Configuración del núcleo :N°08/SNIM		BC1=30		BC2=42,2		BCF=100		Potencia: 0,2 MW	
Código muestra	Muestra/comparador de oro	Fecha inicio y fin irradiación	Hora inicio irradiación	Hora fin irradiación	Tiempo de irradiación(s)	Masa muestra (g)	Notas	Número de muestras	Tasa de dosis (mR/h)
PB3	Au08/Cfa2/BN4	6/02/2020	12:13:41	12:43:41	1800	0,5991±0,0023	con filtro	1	<300
Cp13	Au10/Cfa6	6/02/2020	11:42:13	12:12:13	1800	0,5805±0,0024	sin filtro	1	“
PB4	Au09/Cfa3/BN6	6/02/2020	13:19:18	13:49:18	1800	0,5920±0,0023	con filtro	1	“
Cp14	Au11/Cfa7	6/02/2020	12:45:00	13:15:00	1800	0,5965±0,0023	sin filtro	1	“
Cp16	Au12/Cfa8	6/02/2020	13:51:39	14:21:39	1800	0,5342±0,0026	sin filtro	1	“
PB5	Au02/Cfa4/BN7	6/02/2020	14:22:49	14:52:49	1800	0,5958±0,0023	con filtro	1	“
PB6	Au04/Cfa5/BN8	13/02/2020	14:26:16	14:56:16	1800	0,5834±0,0024	con filtro	1	“
Cp17	Au13/Cfa9	13/02/2020	14:55:31	15:27:31	1800	0,5747±0,0024	Sin filtro	1	“

4.1.6 Tratamiento espectral

El tratamiento espectral se desarrolló en el laboratorio de espectrometría gamma con el detector semiconductor (HPGe)-Marca CANBERRA, modelo GC15020.

Antes de irradiar, se sincronizaron los tiempos para el control de tiempo de envío y retorno de las muestras, con el sistema de medición del software usado en el laboratorio de espectrometría; con el propósito de precisar la hora de conteo. Luego de un periodo de 1800 ± 1 s de irradiación, el comparador de oro (^{198}Au); se retira del contenedor a un blindaje de plomo hasta un lapso de decaimiento apropiado; por recomendación de seguridad del analista. En cambio, las muestras de referencia se retiraron inmediatamente y se colocaron en un blindaje de plomo, para su traslado al laboratorio de espectrometría para su medición, según el esquema de trabajo establecido; en base al periodo de semidesintegración.

Para el tratamiento espectral de las muestras Cfa2, Cfa6, Cfa3, Cfa7, Cfa4 la diferencia de tiempo fue de (1':00''), y de las muestras Cfa5-1, Cfa9-1 fue de (1':34''); la geometría de conteo para la medición de actividades, tanto de las muestras como del estándar de oro fue de 50 ± 1 mm.

Los tiempos de decaimiento se ajustaron a un tiempo muerto ($T_m < 10\%$); de tal manera que se tenga una buena estadística de conteo para el pico de energía plena del radioisótopo analizado, al finalizar la medición se guarda el espectro en una carpeta en el disco C; asignándoles un código de identificación para su posterior tratamiento.

El espectro se analiza identificando los picos de interés; a través del programa "*Genie2k Basic Spectroscopy Software*" versión 2.1 y se registra en una base de datos en Excel, para luego ingresar a la Macro; todos los parámetros y/o variables a ser utilizados en la determinación de las concentraciones del analito investigado; tales datos ingresados al sistema se tomaron de la tabla (4.10).

Tabla 4.10. Datos de las muestras de referencia *SRM-1633c* y comparador de Au

Código muestra	Masa muestra (g)	Código comparador de oro	Masa comparador (µg)	Fecha inicio irradiación	Hora inicio irradiación	Fecha fin irradiación	Hora fin irradiación	GEOM (QUINA58 / GAMMA1 25)	LIBR (CORTO / INTER / LARGO)	Notas	Comparador	E γ (keV)
cfa2	0,5991	au8140220	141,5445	6/02/2020	12:13:41	6/02/2020	12:43:41	DET50_e	inter	con filtro	AU-198	411,8
cfa6	0,5805	au10140220	102,3473	6/02/2020	11:42:13	6/02/2020	12:12:13	DET50_e	inter	sin filtro	AU-198	411,8
cfa3	0,5920	au9140220	110,1137	6/02/2020	13:19:18	6/02/2020	13:49:18	DET50_e	inter	con filtro	AU-198	411,8
cfa7	0,5965	au11140220	111,3824	6/02/2020	12:45:00	6/02/2020	13:15:00	DET50_e	inter	sin filtro	AU-198	411,8
cfa8	0,5342	au12140220	113,4092	6/02/2020	13:51:39	6/02/2020	14:21:39	DET50_e	inter	sin filtro	AU-198	411,8
cfa4	0,5958	au2140220	139,2261	6/02/2020	14:22:49	6/02/2020	14:52:49	DET50_e	inter	con filtro	AU-198	411,8
cfa5-1	0,5834	au04200220	141,4715	13/02/2020	14:26:16	13/02/2020	14:56:16	DET50_e	inter	con filtro	AU-198	411,8
cfa9-1	0,5747	au13200220	104,9809	13/02/2020	14:57:31	13/02/2020	15:27:31	DET50_e	inter	sin filtro	AU-198	411,8

Como muestra de resultados de espectrometría analizado con el programa “*Genie2k Basic Spectroscopy Software*” versión 2.1, se aprecian los espectros de Sm-153 obtenido sin filtro de boro, en la figura (4.12) y en la figura (4.13) con filtro de boro (BN); observándose la fuerte depreciación de actividades para este radioisótopo; alcanzadas con el filtro boro en relación al desnudo.

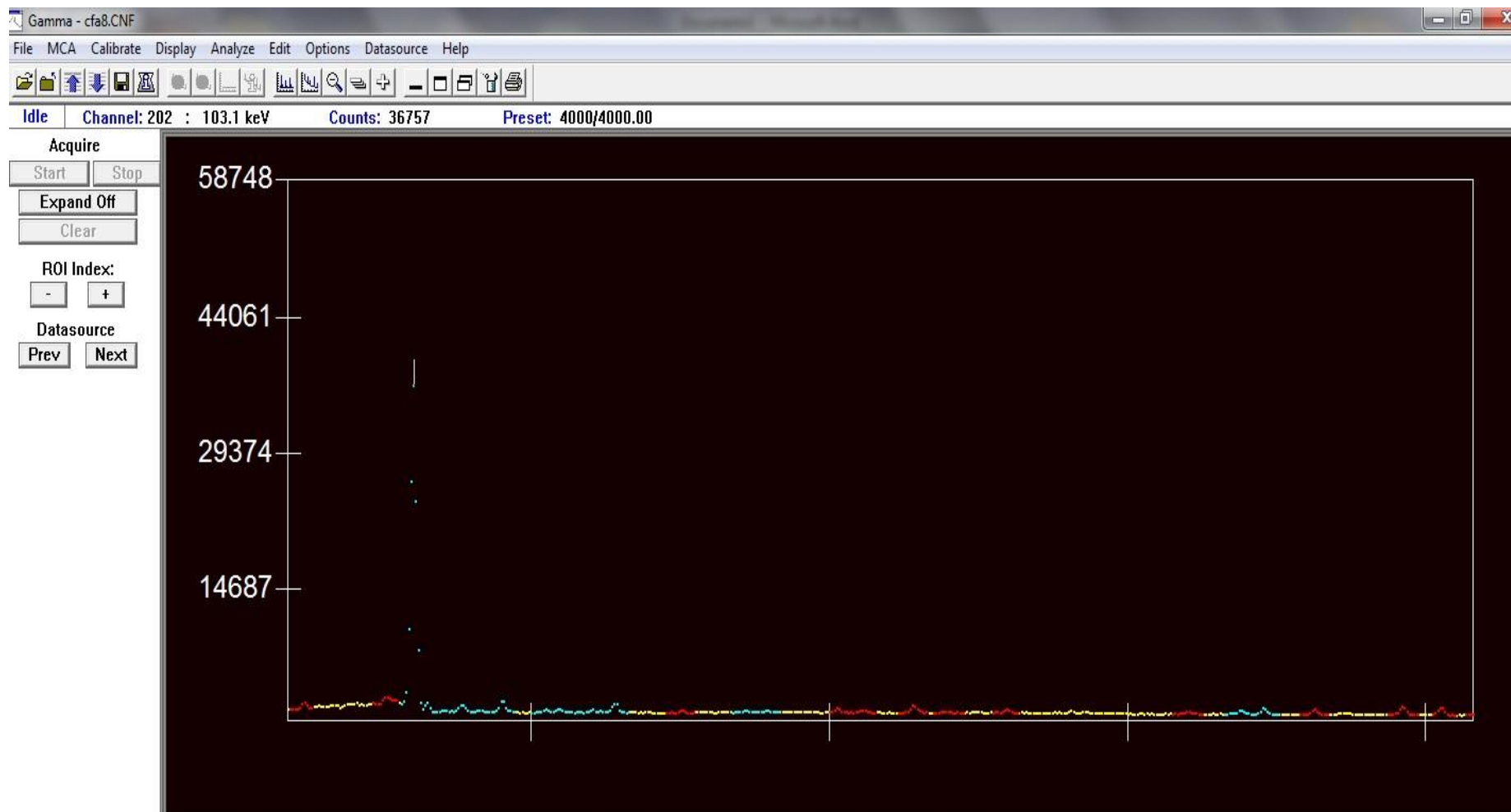


Figura 4.12. Espectro del Sm-153 sin filtro de boro
[Fuente: Tomado de TEAN]

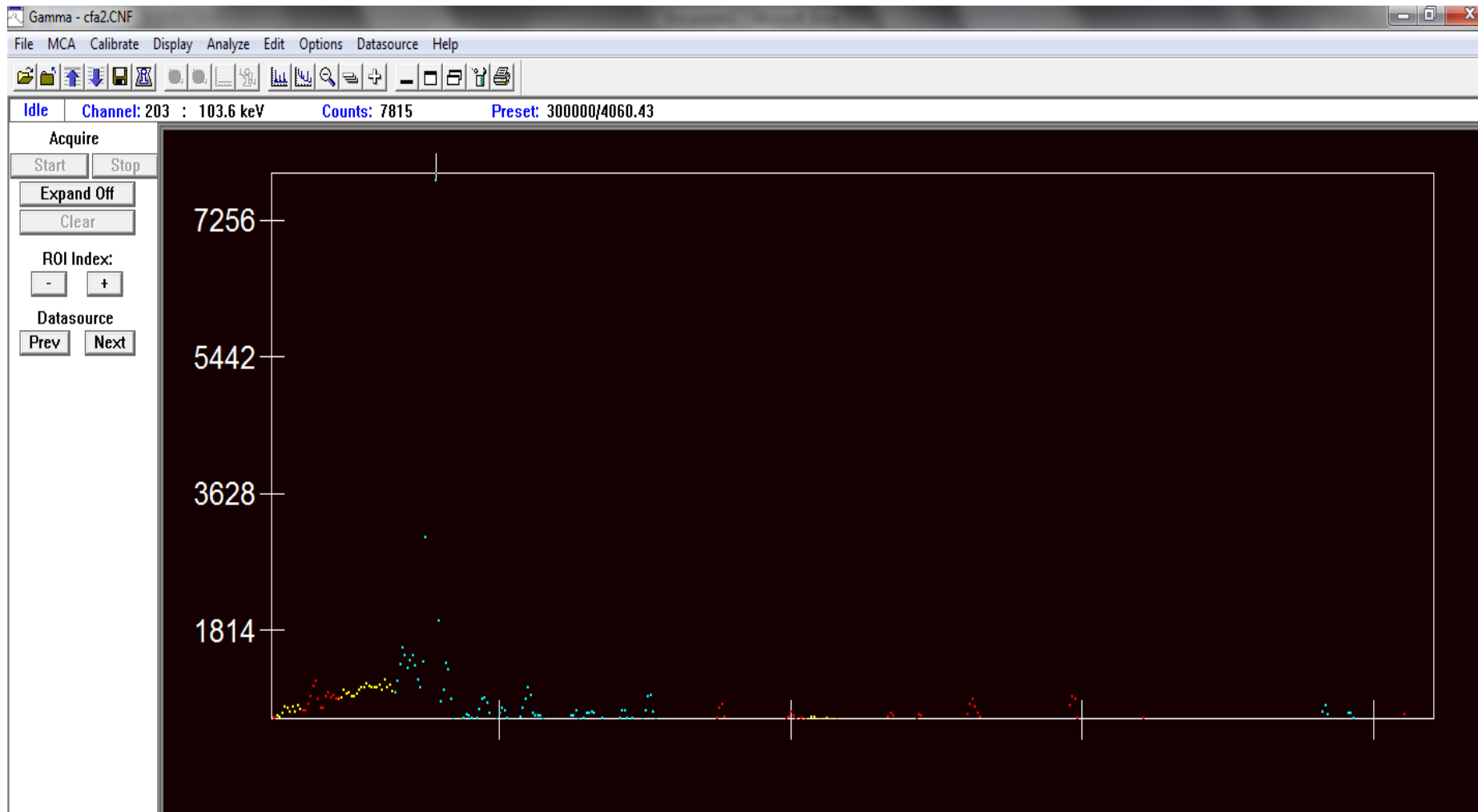


Figura 4.13. Espectro del Sm-153 con filtro de boro
[Fuente: Tomado de TEAN]

4.2. Análisis cuantitativo por método de estandarización K_0

Para la cuantificación de las concentraciones de los analitos; se evaluaron cada uno de los espectros obtenidos mediante el programa Genie2k (versión 2.1)

Las áreas obtenidas de los fotopicos de interés de cada espectro fueron analizadas en formato de archivo *CAMFILES* “*CNF*” y exportadas en formato de archivo *REPFILS* “*RPT*” para ser interpretados por el programa “*CNF-TO-KOS.BAT*”, y convertir en archivo *CNFKOS* (*TxT*). Los archivos *RPT* contienen tanto la identificación de los picos evaluados, así como la intensidad de la señal que se traduce en área de fotopico e incertidumbre correspondiente. Luego, se suministró al programa los datos necesarios (tiempos de irradiación, decaimiento y medición, masa, posiciones de medición, tiempo vivo y tiempo real, etc.) tal como se muestra en tabla (4.10).

Los fotopicos con energías menor a 100 keV no se tomaron en cuenta, debido a que mayormente se trata de rayos X y picos gamma de alta interferencia Compton.

En la tabla (4.11), se muestra los valores del límite de detección calculado para el análisis con filtro de boro como desnudo, en ambos casos los valores son muy congruentes, estos indicadores nos permiten definir el grado de sensibilidad del método de análisis aplicado.

El programa tiene la capacidad de realizar correcciones por fotopicos interferidos espectralmente en forma automática, una vez corroborado los datos de la eficiencia de las geometrías usadas en la detección de los radioisótopos analizados, la razón de flujos “*f*” y del factor de comportamiento no ideal de la componente epitérmica “ α ” y de los factores de corrección por efecto de coincidencia COI (insertos en Macro), se calculan las concentraciones de los elementos presentes tanto a nivel macro como trazas en las muestras, y en la tabla (4.12), se muestra el factor de boro, como factor de corrección para precisar los valores de las concentraciones de los radioisótopos investigados.

Las concentraciones obtenidas de los radioisótopos analizados se resumen en las tablas, (4.12) y (4.13); con desviación estándar bajo una sigma y su coeficiente de variación (CV), definidos en la sección (2.3.6), y en la tabla (4.14), se muestran los datos nucleares de los elementos en estudio.

Tabla 4.11. Comparación de límites de detección de AAN y ENAA

LD para el material de referencia certificada SRM-1633c según condiciones de irradiación y medición establecidas

	UNIDAD	CON BORO(ENAA)	SIN BORO(AAN)
As	mg/kg	4,8	3,4
Co	mg/kg	16	8
Fe	%	1,0	0,6
Ga	mg/kg	9	7
K	%	0,15	0,10
La	mg/kg	2,0	1,5
Lu	mg/kg	0,4	0,3
Na	%	0,004	0,003
Sb	mg/kg	0,6	0,5
Sc	mg/kg	1,5	0,9
Sm	mg/kg	0,4	0,3
Th	mg/kg	8	5
U	mg/kg	2,0	2,8
Yb	mg/kg	2,5	1,3

No se aprecia mayor diferencia en los valores de límite de detección obtenidos en la muestra de referencia con y sin cobertura de boro.

Tabla 4.12. Resultado de concentraciones de elementos analizados con filtro de boro, usando método de estandarización K₀

Elemento	Unidad	Código muestra			Promedio sin corregir	Factor Boro	Promedio corregido	Desviación estándar	CV%
		Cfa2	Cfa3	Cfa4					
Sm	mg/kg	23,26	24,04	23,9	23,73	0,779	18,49	0,32	1,8
Lu	mg/kg	1,72	1,6	1,71	1,68	0,757	1,27	0,05	4,0
U	mg/kg	15,62	17,43	14,965	16,53	0,381	6,30	0,49	7,7
Yb	mg/kg	8,82	8,845	7,79	8,31	1,132	9,41	0,82	8,8
La	mg/kg	75,7	84,26	71,83	77,26	0,828	63,97	5,27	8,2
As	mg/kg	248,43	258,8	242,93	250,05	0,781	195,28	6,29	3,2
Sb	mg/kg	11,55	11,94	11,78	11,76	0,595	6,99	0,12	1,7
Sc	mg/kg	32,82	37,97	31,67	34,15	0,996	34,01	3,34	9,8
Na	%	0,160	0,170	0,150	0,16	1,029	0,165	0,01	6,2
K	%	1,64	1,87	1,6	1,70				
Ga	mg/kg	69,52	73,84	77,72	73,69	0,828	61,02	3,40	5,6
Th	mg/kg	31,29	27,64	27,69	28,87	0,889	25,66	1,86	7,3
Fe	%	10,00	11,39	9,31	10,23	1,037	10,61	1,10	10,4
Co	mg/kg	40,31	38,14	41,51	39,99	1,081	43,22	1,85	4,3

Tabla 4.13 Resultados de concentraciones analizadas sin filtro de boro, usando método de estandarización K₀

Elemento	Unidad	Código muestras				Promedio	Desviación estándar	CV%
		Cfa8	Cfa6	Cfa7	Cfa9-1			
Sm	mg/kg	17,80	17,87	17,68	17,40	17,69	0,21	1,2
Lu	mg/kg	1,47	1,27	1,32	1,37	1,36	0,09	6,3
U	mg/kg	7,89	7,34	8,06	8,58	7,97	0,51	6,4
Yb	mg/kg	9,90	9,92	9,78	9,85	9,86	0,06	0,6
La	mg/kg	78,3	80,2	79,5	79,6	79,38	0,80	1,0
As	mg/kg	195,2	196,0	193,0	192,5	194,2	1,7	0,9
Sb	mg/kg	7,54	7,16	7,35	7,18	7,31	0,18	2,5
Sc	mg/kg	35,76	36,05	35,42	35,70	35,73	0,26	0,7
Na	%	0,1612	0,1641	0,161	0,1621	0,162	0,001	0,9
K	%	1,75	1,82	1,71	1,81	1,77	0,05	3,0
Ga	mg/kg	60,6	55,8	56,1	57,2	57,4	2,2	3,8
Th	mg/kg	22,76	24,04	21,52	22,61	22,73	1,03	4,5
Fe	%	10,76	10,74	10,50	10,55	10,64	0,13	1,2
Co	mg/kg	39,1	42,3	39,0	38,6	39,7	1,7	4,3

Tabla 4.14. Datos nucleares de las reacciones (n, γ) de interés

Elemento	Reacción nuclear	Energía(keV)	Periodo(s)	Lambda(λ)	$\bar{h\nu}$	$Q_0 = I_0/\sigma_0$	I_0 (barn)	σ_0 (barn)	k_0	θ , %
Sc	$^{45}\text{Sc} (n, \gamma)^{46}\text{Sc}$	889	7242912	9,57E-08	5,13E+03	0,43	11,3	26,3	1,22	100
Yb	$^{174}\text{Yb} (n, \gamma)^{175}\text{Yb}$	396,3	361584	1,92E-06	6,02E+02	0,46	29,2	63,4	0,0312	31,83
Na	$^{23}\text{Na} (n, \gamma)^{24}\text{Na}$	1368,6	53856	1,29E-05	3,38E+03	0,59	0,302	0,512	0,0468	100
K	$^{41}\text{K} (n, \gamma)^{42}\text{K}$	1524,7	44496	1,56E-05	2,96E+03	0,97	1,34	1,39	0,000946	6,73
Fe	$^{58}\text{Fe} (n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	1291,6	3844800	1,80E-07	6,37E+02	0,975	1,25	1,28	5,93E-05	0,28
La	$^{139}\text{La} (n, \gamma)^{140}\text{La}$	1595,2	144979.2	4,78E-06	7,60E+01	1,24	11,6	9,39	0,134	99,91
Lu	$^{176}\text{Lu} (n, \gamma)^{177}\text{Lu}$	208,4	581472	1,19E-06	1,61E+01	1,67	3507	2100	0,0714	2,59
Co	$^{59}\text{Co} (n, \gamma)^{60}\text{Co}$	1332,5	166226256	4,17E-06	1,36E+02	1,99	73,9	37,1	1,32	100
Ga	$^{71}\text{Ga} (n, \gamma)^{72}\text{Ga}$	834	50760	1,37E-05	1,54E+02	6,69	31,1	4,65	0,0149	39,9
Th	$^{232}\text{Th} (n, \gamma)^{233}\text{Pa}$	311,9	2330208	2,98E-07	5,44E+01	11,5	84,4	7,34	0,0252	100
As	$^{75}\text{As} (n, \gamma)^{76}\text{As}$	559	95040	7,29E-06	1,06E+02	13,6	52,4	3,85	0,0483	100
Sm	$^{152}\text{Sm} (n, \gamma)^{153}\text{Sm}$	103,2	167400	4,14E-06	8,53E+00	14,4	2909	202	0,231	26,6
Sb	$^{123}\text{Sb} (n, \gamma)^{122}\text{Sb}$	564	235353,6	2,94E-06	1,31E+01	33	208	6,31	0,0438	57,3
U	$^{238}\text{U} (n, \gamma)^{239}\text{Np}$	277	203644,8	3,40E-06	1,69E+01	103,4	277	2,68	0,00652	99,275

Tabla 4.15. Resultados de análisis, muestras *SRM-1633c* por método de estandarización K_0 con y sin filtro térmico de boro, incertidumbre expandida (cobertura al 95%, $k=2$)

Elemento	$Q_0 = I_0/\sigma_0$	Valores certificados (mg/kg)	Valores con BN (mg/kg)	Rendimiento ^a	Valores sin BN (mg/kg)	Rendimiento ^b
Sc	0,43	37,6(0,6)	34,01(2,11)	0,905	35,73(2,19)	0,950
Na	0,59	*0,1707(0,59)	*0,165(0,01)	0,967	*0,16(0,01)	0,949
K	0,97	*1,773(0,06)	*1,7(0,11)	0,959	*1,76(0,11)	0,998
Fe	0,975	*10,49(0,39)	*10,61(0,66)	1,010	*10,64(0,66)	1,014
Lu	1,67	1,32(0,03)	1,27(0,13)	0,962	1,36(0,10)	1,030
Co	1,99	42,9(3,5)	43,22(3,28)	1,007	39,74(2,74)	0,925
Ga	6,69	55	61,02(4,94)	1,109	57,88(3,68)	1,044
Th	11,5	23,0(0,4)	25,66(2,26)	1,116	22,73(1,58)	0,988
As	13,6	186,2(3,0)	195,28(3,07)	1,049	194,19(2,38)	1,043
Sm	14,4	19	18,49(1,45)	0,973	17,69(1,08)	0,931
Sb	33	8,56(0,29)	6,99(0,74)	0,817	7,29(0,45)	0,854
U	103,4	9,25(0,45)	6,3(1,32)	0,681	7,97(0,67)	0,862

Nota: *Se expresa en fracción de masa (%)

^aValor con BN/Valor certificado

^bValor sin BN/Valor certificado

CAPÍTULO V

DISCUSIÓN DE RESULTADOS

La facilidad epitérmica móvil diseñada permite minimizar la contribución térmica, sin embargo, el factor de ganancia obtenido es menor al mencionado por (Radulovic et al., 2016), debido en gran parte al espesor de nitruro de boro empleado de 2 mm en el presente trabajo a 4 mm según la referencia. Ello obedece a las dimensiones físicas establecidas para el sistema neumático de irradiación de muestra (SNIM) impidiendo un mayor espesor de la pared de nitruro de boro. Tal situación se mejoraría de emplear en lugar del SNIM una facilidad de irradiación denominada “tubo seco” que presenta un mayor diámetro interno.

El flujo neutrónico distribuido a lo largo de la facilidad epitérmica móvil tiene un comportamiento similar en los extremos con una variación relativa máxima del 20% en la parte central, ver figura (4.3), indicando en términos generales una absorción neutrónica uniforme a diferencia de lo mostrado en la figura (4.4), donde la variación en la cápsula de polietileno convencional llega a un 70% desde el centro al extremo superior. Lo descrito evidencia que el dispositivo fabricado cumple con el objetivo principal planteado en la presente investigación, cuya mejora queda a criterio del usuario.

El factor de ganancia entendido como la razón de actividad normalizada del radioisótopo X sin boro entre la actividad normalizada del mismo radioisótopo X con boro, sugiere una fuerte dependencia de los valores de Q_0 como se observa en la figura (3.19). obteniéndose un bajo factor de ganancia para el ^{198}Au , ^{99}Mo y el ^{97}Zr , con valores $15,7 < Q_0 < 251,6$; en tanto para los nucleidos con valores de I_0/σ_0 entre 1,4 y 5,05 se incrementan considerablemente los factores de ganancia. Lo mencionado nos permite disminuir la interferencia espectral del ^{24}Na según el factor de ganancia, pero sin poder asegurar si fuese lo suficiente para una óptima medición de los radioisótopos de interés.

Según los valores de tasa de dosis de las cápsulas de PE borado no se observa mayor activación, pero su degradación física aumenta conforme se incrementa la fluencia neutrónica tal como se observa en figura (3.13), tal situación causada por la reacción nuclear del $^{10}\text{B} (n, \alpha)^7\text{Li} + 2,31 \text{ MeV}$; que genera una partícula alfa de 2,31 MeV de energía cinética cuyo efecto directo es la degradación física del BN. Tal situación limita el uso de la facilidad móvil epitérmica a una fluencia neutrónica equivalente a una potencia de 0,2 MW.

En la tabla (4.15) se muestra los resultados de la validación metodológica del trabajo de investigación empleando la muestra de referencia certificada *NIST-SRM-1633 "Coal Fly Ash"*. El factor de concordancia mayor a 0,9 para los elementos evaluados, exceptuando para Sb (antimonio) y U (Uranio), indica una adecuada correlación a los valores de referencia de la muestra certificada.

Considerando la posición de irradiación del sistema SNIM, el flujo de neutrones térmicos es la componente dominante en el reactor en una relación 30 veces respecto a la componente epitérmica siendo mayor su contribución en la tasa de reacción, de ahí la importancia de una facilidad epitérmica móvil con boro como filtro de neutrones térmicos.

Para el ^{239}Np , producto del decaimiento beta negativo del ^{239}U a ^{239}Np con $T_{1/2} = 2,357$ d (reacción de activación $^{238}\text{U} (n, \gamma)^{239}\text{Np}$), se observa en tabla (4.15) que los resultados tanto con o sin cubierta de BN muestran una concordancia menor a 0,9; lo que se puede atribuir a un valor alfa no del todo correcto, dado que el alto valor de Q_0 del ^{238}U , hace que su dependencia con respecto al parámetro alfa (α) sea importante.

Cuando se emplea la facilidad móvil de nitruro de boro, según tabla (4.12) en la columna de promedio sin corregir, se observa una diferencia relativa $> 25\%$ para la mayoría de los elementos evaluados respecto a los valores certificados del material de referencia. La aplicación del factor de boro de un modo similar a lo propuesto por (Radulovic et al.,2016), nos permite cuantificar los elementos de interés en la muestra con un sesgo menor al 10% respecto a los valores certificados. Sin embargo, el uso de filtros térmicos disminuye la tasa de reacción de los radionúclidos aun así los favorecidos por su aplicación traduciéndose en una menor intensidad de la señal, es decir, una menor estadística de conteo para los picos de 277,6 KeV y 564,0 keV del ^{239}Np y ^{122}Sb respectivamente que a su vez son afectados por la radiación continua del Compton del pico de 1368,6 keV del ^{24}Na minimizado por el filtro térmico de BN, pero con una intensidad de señal aún importante. Se observa para el Sc, Yb, Na, K, y Fe con ($0,43 \leq Q_0 \leq 0,975$), cuya integral de resonancia es mucho menor, la tasa estadística de conteo disminuye en un $\approx 35\%$ empleando la cobertura de BN.

Exceptuando U y Sb, los resultados de los valores de concentración calculados con filtro de boro son similares a los obtenidos en forma convencional.

No obstante, para mantener un valor constante del factor de Boro, la cubierta de nitruro de boro en la facilidad móvil debe ser estructuralmente sólida que garantice mantener un mismo espesor de la cubierta durante la etapa de irradiación.

CAPITULO VI

CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES

La presente tesis está enfocada en el diseño, construcción y operación de una facilidad móvil recubierta con nitruro de boro como filtro térmico para minimizar la interferencia espectral en muestras silíceas generada por radionúclidos interferentes de bajo valor de Q_0 y alta tasa de activación tales como ^{24}Na .

Su implementación en el área de técnicas analíticas (TEAN) del centro nuclear RACSO implicó el uso de material de referencia y la aplicación del método estandarizado de K_0 logrando la reproducibilidad de los resultados analíticos. Se logró una concordancia mayor o igual que $\pm 10\%$, entre los resultados promedio obtenidos en esta investigación y los valores certificados o referenciales del material analizado.

Los casos del Sb y U necesitan un mayor estudio, pero en línea general los elementos analizados tuvieron coeficientes de variación menores o iguales a 10% , considerándose un nivel de precisión y exactitud adecuado para la determinación de elementos mayores y traza.

El presente estudio evidencia que el dispositivo fabricado cumple con el objetivo principal planteado en la presente investigación; no obstante aumentar el espesor de la pared de nitruro de boro, sería posible de emplear facilidades de irradiación como la denominada “tubo seco” de mayor diámetro interno, que permitiría diseñar envases con mayor espesor de boro, a fin de mejorar la técnica propuesta.

GLOSARIO

INDE	Dirección de investigación y desarrollo
IPEN	Instituto Peruano de Energía Nuclear
SNIM	Sistema neumático de envío de muestras al reactor nuclear(rabitt)
AAN	Análisis por activación neutrónica
ENAA	Análisis por activación con neutrones epitérmicos
BN	Nitruro de boro
μN	Magnetón nuclear ($5,051 \times 10^{-27} \text{J} \cdot \text{T}^{-1}$)
K	$8,52 \cdot 10^{-5} \text{ eV/K}$ Constante de Boltzmann
M(E)	Función de distribución, normalizado a 1
Φ_{th}	Flujo de neutrones térmicos
n_0	Densidad neutrónica volumétrica
E	KT (Energía más probable, para la cual el espectro es máximo)
E_n	0,025 eV, Energía de neutrones térmicos a temperatura ambiente
Φ_{epi}	Flujo epitérmico definido a partir de la energía de empalme μkT
$\Delta(E)$	Función de empalme, entre la región térmica y epitérmica
$\phi_e(E, \alpha)$	Función de la componente epitérmica del flujo no ideal
$\chi(E)$	Función distribución de neutrones rápidos que está normalizada a uno
α	Parámetro que describe la desviación del flujo epitérmico de la ley 1/E
$f = \frac{\Phi_{\text{th}}}{\Phi_{\text{epi}}}$	La relación (ratio de flujo térmico a epitérmico)
T_n	La temperatura de neutrones en la posición de irradiación
(n, n)	Reacción de dispersión elástica neutrón núcleo
(n, n')	Reacción de dispersión inelástica neutrón núcleo
(n, γ)	Reacción de captura neutrónica con emisión de rayos gamma

(n, α)	Reacción de captura neutrónica con emisión de un núcleo de helio
(n, f)	Reacción nuclear primaria con fisión
σ_{γ}	Sección eficaz de captura
σ_{th}	Sección eficaz para neutrones térmicos
HPGe	Detector de germanio hiperpuro
MCA	Analizador de altura de pulso multicanal
A	Tasa de actividad de decaimiento [Bequerel; 1Bq=2,703x10 ⁻¹¹ Ci]
λ	Constante de desintegración radiactiva
HDPE	Polietileno de alta densidad
SRM	Muestras de referencia estándar certificadas
NIST	Instituto nacional de estándares y tecnología
CFA	Coal Fly Ash (cenizas volcánicas de carbón)
T _{1/2}	Periodo de semidesintegración
R=σ ₁ .φ	Tasa de reacción nuclear (n, γ)
$N_1 = \frac{6,02 \times 10^{23} w \theta}{M}$	Número de átomos del núcleo blanco (bombardeado)
w	Masa del analito en la muestra irradiada (g, mg o μg)
θ	Abundancia isotópica del isótopo que sufre la reacción nuclear
M	Masa atómico del elemento considerado
Φ	Flujo o fluencia de neutrones
σ ₁	Sección eficaz de activación para el isótopo considerado (barn)
N _A	Número de Avogadro (6,023x10 ²³ mol ⁻¹)
σ ₁	Sección eficaz de activación para el isótopo considerado (barn)
t _i	Tiempo de irradiación
A _{sat}	Actividad de saturación

$A(td)$	Actividad durante el decaimiento
$A(tc)$	Actividad durante el tiempo de conteo
I_γ	Probabilidad de emisión del fotón- γ por desintegración
Td	Tiempo de decaimiento
Tc	Tiempo de contaje
$\rho(a)$	Fracción del elemento(analito) en la muestra (matriz)
$A (ti)$	Actividad específica de la muestra al término de la irradiación
$I_0 (\alpha)$	Integral de resonancia corregida considerando la influencia de α
$k_{0,Au}(a)$	Factor k_0 de un isótopo respecto al comparador de oro
A_{sp}	Actividad específica normalizada
Np	Número de recuentos netos, área neta del pico de absorción total
t_m	Tiempo de medición (s)
t_i	Tiempo de irradiación (s)
S	Factor de saturación
D	Factor de decaimiento
T_d	Tiempo de decaimiento
C	Factor de conteo
ε_p	Eficiencia de detección de energía máxima E_γ
G_{th}	Factor de corrección de auto blindaje de neutrones térmicos (≤ 1)
G_e	Factor de corrección de auto blindaje de neutrones epitérmicos (≤ 1)
I_0	Integral de resonancia definida para la energía de corte de cadmio
σ_0	Sección eficaz para $v_0=2200m/s$
v_0	Velocidad del neutrón
$Q_0=I_0/\sigma_0$	Relación de integral de resonancia y la sección eficaz
$Q_0(\alpha)=I_0(\alpha)/\sigma_0$	Relación de integral de resonancia como función de α
t_v	Tiempo vivo de medición
t_r	Tiempo real de medición
$k_{0,Au}$	Constante definido según (De Corte et al.,1987)
$\varepsilon (p, A_u)$	Eficiencia absoluta para la energía de $E_\gamma= 4 11,8keV$ del ^{198}Au
$\varepsilon_p (a)$	Eficiencia absoluta del pico del radioisótopo analizado
R_{Cd}	La razón de cadmio, factor de transmisión epitérmica de cadmio
R_B	La razón de boro, factor de transmisión epitérmica de boro
A_0	Actividad inicial de la fuente desde su fabricación

BIBLIOGRAFÍA

- Adams, F. D. (1970). *Applied Gamma-Ray Spectrometry* (2a ed.). Oxford: Pergamon Press.
- Arboccó, F. (Mayo de 2007). Análisis por activación neutrónica. *Tesis de Grado*, 6-11. Sartenejas, Venezuela: Universidad Simon Bolivar.
- Beckurtz, K. &. (1964). *Neutron Physics*. Berlin: Springer Verlag.
- Bode, P. (10 de 12 de 1996). Instrumental and organizational aspects of a neutron activation analysis laboratory. *Tesis Doctoral*. Delf, The Netherlands.
- Breit, G. &. (1936). Capture of Slow Neutrons. *Physical Review Journals Archive*, 49-519.
- Brune, D. J. (1964). Optimización in Activation in Analysis by means of Epithermal Neutrons. Determination of Molybdenum in Steel. *Nukleonik*(6), 242.
- Cooper, J. (1970). Factors determining the Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers. *Nuclear Instrument Methods*(82), 273-277.
- Currie, L. (1968). Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination; Applications to Radiochemistry. *Analytical Chemistry*(40), 586-593.
- De Corte, A. &. (2002). Compilation of K_0 and Related Data for NAA. *Analytical Chemistry Division*, 1-500. Obtenido de <http://www.iupac.org>
- De Corte, F. H. (1981). "The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ ". *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 62(1-2), 209-255.
- De Corte, F. M. (1979). "Instantaneous α determination without Cd Cover in the $1/E^{1+\alpha}$ Epithermal Neutron Spectrum. *J. Radioanal. Nucl. Chem*, 52(2), 295-304.
- De Corte, F. N. (1994). The use of a modified Westcott-formalism in the K_0 -standardization of NNA. *Journal Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 179,93-103.
- De Corte, F. S. (1987). Accuracy and applicability of the k_0 -standardization method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 113, 145-161.

- Ehmann, W. M. (1980). Epithermal neutron activation analysis using a boron irradiation filter. *Journal of Radio analytical*, 491-502.
- El Nimr, T. (1981). Epithermal neutron activation analysis (ENAA) based on the K₀ comparator method.
- Girardi, F. P. (1965). Reactor Neutron Activation Analysis by the Single Comparator Method. *Analytical Chemistry*, PP.1085-1092.
- Hevesy, G. L. (1936). Action of Slow Neutrons on Rare Earth Elements. *Nature*, 137-185.
- Hogdahl, O. (19-23 de octubre de 1965). Neutron absorption in pile neutron activation analysis: determination of copper and gold in silver. *Radiochemical Methods of Analytical*, 23-40.
- IAEA-TECDOC-465. (1988). Isotropic Neutron Sources for Neutron Activation. A *Technical document*, 35-49.
- Jacimovic, R. R. (2016). Use of boron nitride for neutron spectrum characterization and cross-section validation in the epithermal range through integral activation measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 5-14.
- James, E. (2013). *Physics for Radiation Protection*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag & Co. KGaA.
- Jovanovic, S. (Mayo de 1984). Some elucidations to the concept of the effective resonance energy Er. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1, 379-383.
- Jovanović, S. C. (1985). The “Er-comparator” technique for the experimental determination of effective resonance energies-comparator” technique for the experimental determination of effective resonance energies. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 92, 99-406.
- Lamarsh, J. (1983). *Introducción a la teoría del reactor nuclear* (2 ed.). Addison-Wesley.
- Lamarsh, J. B. (2001). *Introduction to Nuclear Engineering*. New Jersey: Prentice Hall.

- Martin, J. E. (2013). *Physics for Radiation Protection* (third ed.). Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag & Co. KGaA.
- Mendoza, P. (2011). Influencia del comparador en las correcciones por comportamiento no ideal del flujo epitermico y su implicancia en los metodos parametricos de analisis por activacion neutronica. *Tesis de Maestria*. Buenos Aires.
- Miloslav, R. (1970). *Activation Analysis*. Cleveland: Iliffe Books.
- Moens, L. D. (1979). The effective resonance energy E_r as a parameter for the correction of resonance integrals in $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectra; tabulation of E_r values for 96 isotopes. *Journal of Radioanalytical Chemistry*, 379–387.
- Molnar, G. (2000). Nuclear data for activation analysis. *J. Radioanal. Nucl. Chem*, 244, 27-33.
- Montoya, E. (2010). The development of the k0 method in Peru: Past, present and future perspectives. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 381-384.
- Parry, S. (1984). Evaluation of boron for the epithermal neutron activation analysis of short-lived radionuclides in geological and biological matrices. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 143-151.
- Radulovic, V. D. (2016). Use of boron nitride neutron spectrum characterization and cross-section validation in the epithermal trough integral activation measurements. *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research A*(840), 5-14.
- Rosbach, M. B. (2007). The k0-IAEA program. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 274(3),657-662.
- Rositto, F. T. (1972). Choice of neutron filters in activation analysis. *Nuclear Instruments and Methods*, 103, 77-83.
- Ryves, T. (1969). A New Thermal Neutron Flux Convention. *Metrologia*, Volume 5, Number 4,, p.119.
- Ryves, T. (1969). A New Thermal Neutron Flux Convention,. *Metrologia*., 5-119.

- Simonits, A. C. (1975). "Single-comparator methods in reactor neutron activation analysis". *J. Radioanal. Nucl. Chem.*,(24), 31-46.
- Simonits, A. D. (1980). k₀-measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 461–516.
- Wescott, C. (1955). The specification of neutron flux and nuclear cross-sections in reactor calculations,. *Journal of Nuclear Energy*, 59-60.
- Xiaolin, H. K. (1996). Epithermal neutron activation analysis and its application in the Miniature Neutron Source Reactor. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry volume*, 137-148.
- Xilei, L. R. (1989). Correction for neutron induced reaction interferences in the NAA k₀-standardization method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*(133), 153-165.

ANEXOS

Anexo1. Certificado de fuentes puntuales de emisores gamma

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
 Division of Research and Laboratories
 Laboratory
 Electronics and Measurement Section

Vienna, 1981-05-18

SET OF 8 CALIBRATED GAMMA-EMITTING SOURCES
 (EMS-A1)

C E R T I F I C A T E

(A) Activities
 The 8 sources constituting the
 SET No.: .111....
 have the activities stated in the table below within the
 uncertainty limits there quoted.
 The reference time is
 1 January 1981, 00.00 Universal time

Nuclide	Activity kBq	Statistical error % +)	Systematic error %	Rounded overall uncertainty of the activity % ++)
^{241}Am302.8.....	± 0.3	± 1.00	± 1.5
^{57}Co1385.....	± 0.3	± 0.5	± 1.0
^{22}Na369.6.....	± 0.08	± 0.55	± 1.0
^{137}Cs452.1.....	± 0.07	± 0.5	± 1.0
^{54}Mn472.3.....	± 0.1	± 0.45	± 1.0
^{60}Co367.9.....	± 0.05	± 0.4	± 1.0
^{133}Ba346.3.....	± 0.06	± 1.1	± 1.5
^{152}Eu355.7.....	± 0.05	± 1.55	± 2.0

+) Confidence level: 99%

++) (Rounded) sum of statistical and systematic errors

Continúa...

RECOMMENDED NUCLEAR DATA

(IAEA-Vienna, Nuclear Data Section)

Radio-nuclide	Half-life [a]	Photon energy [keV]	Percentage per disintegration
^{241}Am	$(1.580 \pm 0.002) \cdot 10^5$ (2)	59.537 ± 0.001	36.0 ± 0.3 (1)
^{57}Co		122.063 ± 0.003	85.59 ± 0.19 (1)
		136.476 ± 0.003	10.58 ± 0.08 (1)
^{22}Na		511.006 ± 0.002	+)
		1274.540 ± 0.020	99.94 ± 0.02 (1)
^{137}Cs	11009 ± 11 (3)	661.645 ± 0.009	84.6 ± 0.5 (1)
^{54}Mn	312.5 ± 0.5 (1)	834.827 ± 0.021	99.9760 ± 0.0002 (1)
^{60}Co		1173.238 ± 0.004	99.87 ± 0.06 (4)
		1332.501 ± 0.005	99.980 ± 0.009 (4)
^{133}Ba	CHLACE	53.155 ± 0.016	2.20 ± 0.04 (1)
		79.621 ± 0.011	2.61 ± 0.07 (1)
		80.997 ± 0.005	34.0 ± 0.8 (1)
		276.397 ± 0.012	7.10 ± 0.10 (1)
		302.851 ± 0.015	18.33 ± 0.22 (1)
		356.005 ± 0.017	62.3 ± 0.7 (1)
		383.851 ± 0.015	8.92 ± 0.09 (1)
^{152}Eu		121.779 ± 0.003	28.37 ± 0.24 (1)
		244.693 ± 0.005	7.51 ± 0.06 (1)
		344.272 ± 0.007	26.58 ± 0.18 (1)
		411.111 ± 0.011	2.234 ± 0.013 (1)
		443.979 ± 0.010	3.121 ± 0.018 (1)
		778.890 ± 0.016	12.96 ± 0.07 (1)
		867.38 ± 0.03	4.16 ± 0.06 (4)
		964.05 ± 0.03	14.62 ± 0.06 (1)
		1085.83 ± 0.03	10.16 ± 0.05 (1)
		1112.08 ± 0.04	13.56 ± 0.06 (1)
	1408.03 ± 0.03	20.58 ± 0.09 (1)	

+) not recommended for calibration

References:

- (1) "Radioaktive Standardsubstanzen PTB" (Stand 1.3.1980 und 1.7.1980)
- (2) A. Lorenz, INDC (NDS)-108/N, "Proposed Recommended List of Transactinium Isotope Decay Data", Part I, Half-lives Sep. 1979.
- (3) H. Houtemans, "Half-lives of 35 Radionuclides", International Journal of Applied Radiation and Isotopes Vol 31, pp 153-154
- (4) M. Despres, J. Morel, G. Malet, "Etudes du spectre du Pu-239, mesure des énergies et des intensités absolues des raies gamma", Note technique IMRI 79/63 (Décembre 1980)

Anexo 2. Reporte de resultados análisis cualitativo del envase borado



Dirección de Investigación y Desarrollo
Sub-Dirección de Investigación Científica
Laboratorio de Espectroscopia de Rayos X
Teléfono : 4885050/4885090 Anexo 2237
Dirección : Av. José Saco Km 12,5 Carabaylo
e-mail : polivera@ipen.gob.pe o ccaceres@ipen.gob.pe

"Año de la lucha contra la corrupción e impunidad"
"Decenio de la Igualdad de oportunidades para mujeres y hombres"

Reporte de Análisis N° 003-2019-INDE/INCI/LERX

DATOS DE LAS MUESTRAS:

Tipo de muestras Recipiente de Polietileno
N° de Muestras 01 (uno)
Código de las muestras 2
Procedencia TEAN/INCI/INDE.
Solicitud por MSc. Pablo Mendoza
Referencia Solicitud Verbal
Fecha de ingreso 01/04/2019

OBJETIVOS DEL ANALISIS:

Análisis de fluorescencia de rayos X (FRX) para determinar contenido elemental en un recipiente de polietileno borado.

PREPARACIÓN DE LAS MUESTRAS:

La muestra fue limpiada con alcohol, secado al ambiente y colocada en la zona de irradiación para análisis por FRX.

CONDICIONES DE ANÁLISIS:

Técnicas Aplicadas Fluorescencia de Rayos X Dispersiva en Energía
Fuente de Excitación Cd-109 Y Am-241
Método de cálculo Ninguno
Fecha de emisión 12/04/2019
Analista Paula Olivera

ANÁLISIS CUALITATIVO!!

Elemento presentes en la muestra
Fe
Cu
Zn
Pb

OBSERVACIONES: Ninguna

ANALISIS COMPLEMENTARIOS:


Ninguno

Centro Nuclear, 12 de abril de 2019

Paula Olivera de Lescano
Resp. Laboratorio de Espectroscopia de Rayos X
Sub-Dirección de Investigación Científica
Dirección de Investigación y Desarrollo
INSTITUTO PERUANO DE ENERGÍA NUCLEAR

Página 1 de 1

Anexo 3. Certificado de análisis del reactivo nitruro de boro (BN)

	
<h2>Certificate of Analysis</h2>	
1.12073.0050 Batch	Boron nitride S6997173
Batch Values	
Identity	passes test
Date of examination (DD.MM.YYYY) 29.01.2015 Minimum shelf life (DD.MM.YYYY) 31.07.2020 Retested Date (DD.MM.YYYY) 05.07.2017	
<u>Dr. Jörg Bauer</u> Responsible laboratory manager quality control	
This document has been produced electronically and is valid without a signature.	
Merck KGaA, Frankfurter Straße 250, 64293 Darmstadt (Germany): +49 6151 72-0 EMD Millipore Corporation - a subsidiary of Merck KGaA, Darmstadt, Germany 290 Concord Road, Billerica, MA 01821, USA, Phone: (978) 715-4321 SAI SA Version 608563 /99000450412/ Date 05.07.2017	Page 1 of 1

Continúa...

...Continuación Anexo 3


FICHA DE DATOS DE SEGURIDAD de acuerdo el Reglamento (CE) No. 1907/2006	
Artículo número	112073
Denominación	Boro nitruro
<p>Los guantes de protección indicados deben cumplir con las especificaciones de la Directiva 89/686/EEC y con su norma resultante EN374, por ejemplo KCL 741 Dermatril® L (Sumerción), KCL 741 Dermatril® L (Salpicaduras).</p> <p>Los tiempos de ruptura mencionados anteriormente han sido determinados con muestras de material de los tipos de guantes recomendados en mediciones de laboratorio de KCL según EN374.</p> <p>Esta recomendación solo es válida para el producto mencionado en la ficha de datos de seguridad, suministrado por nosotros y para el fin indicado. Al disolver o mezclar en otras sustancias y cuando las condiciones difieran de las indicadas en EN374, debe dirigirse al suministrador de guantes con distintivo CE (por ejem. KCL GmbH, D-36124 Eichenzell, Internet: www.kcl.de)</p> <p><i>Protección respiratoria</i> necesaria en presencia de polvo. Tipo de Filtro recomendado: Filtro P 1 El empresario debe garantizar que el mantenimiento, la limpieza y la prueba técnica de los protectores respiratorios se hagan según las instrucciones del productor de las mismas. Estas medidas deben ser documentadas debidamente.</p>	
SECCIÓN 9. Propiedades físicas y químicas	
9.1 Información sobre propiedades físicas y químicas básicas	
Forma	polvo
Color	blanco
Olor	inodoro
Umbral olfativo	no aplicable
pH	5 - 8 a 100 g/l aprox. 20 °C (pasta húmeda)
Punto de fusión	2.700 - 3.000 °C
Punto de ebullición	No hay información disponible.
Punto de inflamación	no aplicable
Tasa de evaporación	No hay información disponible.
Inflamabilidad (sólido, gas)	El producto no es inflamable.
Límite de explosión, inferior	No hay información disponible.
Límite de explosión, superior	No hay información disponible.

Continúa...

...Continuación Anexo 3

FICHA DE DATOS DE SEGURIDAD de acuerdo el Reglamento (CE) No. 1907/2006	
Artículo número	112073
Denominación	Boro nitruro
Densidad	2,34 g/cm ³ a 20 °C
Densidad relativa	No hay información disponible.
Solubilidad en agua	a 20 °C difícilmente soluble
	a 95 °C soluble
Coefficiente de reparto n-octanol/agua	No hay información disponible.
Temperatura de auto-inflamación	No hay información disponible.
Temperatura de descomposición	No hay información disponible.
Viscosidad, dinámica	No hay información disponible.
Propiedades explosivas	No clasificado/a como explosivo/a.
Propiedades comburentes	ningún
9.2 Otros datos	
Densidad aparente	aprox. 120 kg/m ³
Tamaño de partícula	Dimensión de las partículas: 6 - 30 µm
SECCIÓN 10. Estabilidad y reactividad	
10.1 Reactividad	
Véase sección 10.3	
10.2 Estabilidad química	
El producto es químicamente estable bajo condiciones normales (a temperatura ambiental).	
10.3 Posibilidad de reacciones peligrosas	
Reacción exotérmica con:	
Flúor, peróxidos, en presencia de:	
Calor.	
10.4 Condiciones que deben evitarse	
información no disponible	

Anexo 4. Certificado de material de referencia estándar *SRM-1633c*

	<p>National Institute of Standards & Technology</p> <p>Certificate of Analysis</p> <p>Standard Reference Material[®] 1633c</p> <p>Trace Elements in Coal Fly Ash</p> <p>This Standard Reference Material (SRM) is intended for use in the evaluation of analytical methods for the determination of constituent elements in coal fly ash or materials of a similar matrix. SRM 1633c is a bituminous coal fly ash that was sieved through a nominal sieve opening of 74 µm (200 mesh) and then blended to assure homogeneity. A unit of SRM 1633c consists of 75 g of powdered material.</p> <p>Certified Mass Fraction Values: Certified values for 20 constituents of SRM 1633c are reported in Table 1 as mass fractions on a dry-mass basis [1]. A NIST certified value is a value for which NIST has the highest confidence in its accuracy, in that all known or suspected sources of bias have been investigated or taken into account [2]. A certified value is the present best estimate of the true value based on the results of analyses performed at NIST and collaborating laboratories using instrumental and classical test methods.</p> <p>Reference Mass Fraction Values: Reference values for 16 constituents are reported in Table 2 as mass fractions on a dry-mass basis. Reference values are non-certified values that are the present best estimates of the true values. However, the values do not meet the NIST criteria for certification and are provided with associated uncertainties that may not include all sources of uncertainty [2].</p> <p>Information Values: Eight information values are reported in Table 3 as mass fractions on a dry-mass basis. An information value is considered to be a value that may be of interest to the SRM user, but insufficient information is available to assess the uncertainty associated with the value.</p> <p>Expiration of Certification: The certification of SRM 1633c is valid, within the uncertainty specified, until 01 March 2021, provided the SRM is handled and stored in accordance with the instructions given in this certificate (see "Instructions for Use"). The certification is nullified if the SRM is damaged, contaminated, or otherwise modified.</p> <p>Maintenance of SRM Certification: NIST will monitor this SRM over the period of its certification. If substantive changes occur that affect the certification before the expiration of this certificate, NIST will notify the purchaser. Return of the attached registration card will facilitate notification.</p> <p>The coordination of technical measurements for certification was performed by E.A. Mackey and J.L. Molloy of the NIST Analytical Chemistry Division.</p> <p>Analyses leading to the certification of this SRM were performed by R.G. Brennan, S.E. Long, E.A. Mackey, A.F. Marlow, K.E. Murphy, R.L. Paul, S.A. Rabb, J.R. Sieber, R.O. Spatz, B.E. Tomlin, and L.L. Yu of the NIST Analytical Chemistry Division. Analytical results were also provided by Quality Associates International, Ltd., (Sechelt, BC Canada) administering the Coal and Ash Sample Proficiency Exchange (CANSPEX) proficiency testing program.</p> <p>Statistical consultation for this SRM was provided by S.D. Leigh and A.L. Pintar of the NIST Statistical Engineering Division.</p> <p>Support aspects involved in the issuance of this SRM were coordinated through the NIST Measurement Services Division.</p> <p style="text-align: right;">Stephen A. Wise, Chief Analytical Chemistry Division</p> <p style="text-align: right;">Robert. L. Watters, Jr., Chief Measurement Services Division</p> <p>Gaithersburg, MD 20899 Certificate Issue Date: 23 June 2011</p> <p>SRM 1633c</p> <p style="text-align: right;">Page 1 of 8</p>
---	---

Continúa...

...Continuación Anexo 4

Table 1. Certified Mass Fraction Values (Dry-Mass Basis) for SRM 1633c

Constituent	Mass Fraction (%)			Constituent	Mass Fraction (mg/kg)		
Al	13.28	±	0.61	As	186.2	±	3.0
Ba	0.1126	±	0.0033	Cd	0.758	±	0.005
Ca	1.365	±	0.040	Co	42.9	±	3.5
Fe	10.49	±	0.39	Cu	173.7	±	6.4
K	1.773	±	0.066	Hg	1.005	±	0.022
Mg	0.498	±	0.052	Mn	240.2	±	3.4
Na	0.1707	±	0.0059	Ni	132	±	10
Ti	0.724	±	0.030	Pb	95.2	±	2.5
				Rb	117.42	±	0.53
				Sb	8.56	±	0.29
				Sr	901	±	56
				V	286.2	±	7.9

Reference Mass Fraction Values: The reference values for Cr, Cs, Dy, Eu, La, Lu, Sc, Se, Si, Ta, Tb, Th, and U are the mean of results obtained using one analytical technique performed at NIST. The expanded uncertainties associated with these reference values are two-sided intervals with coverage factor 2 (approximately 95 % confidence) calculated from the combined uncertainty expressed at the level of one standard deviation following NIST Technical Note 1297 [6]. The Zn and P reference values are weighted means of the results from two or more methods. The S value and uncertainty were calculated from a round robin exercise involving multiple labs with the weighted means from each lab combined. The uncertainty listed for each P, S, and Zn value is an expanded uncertainty about the mean with coverage factor 2 (approximately 95 % confidence) calculated by combining a between-method variance incorporating inter-method bias with a pooled, within-method variance following the ISO Guide [3-6].

Table 2. Reference Mass Fraction Values (Dry-Mass Basis) for SRM 1633c

Constituent	Mass Fraction (%)			Constituent	Mass Fraction (mg/kg)		
S	0.110	±	0.019	Cr	258	±	6
Si	21.30	±	0.57	Cs	9.39	±	0.22
P	0.192	±	0.010	Dy	18.70	±	0.30
				Eu	4.67	±	0.07
				La	87.0	±	2.6
				Lu	1.32	±	0.03
				Sc	37.6	±	0.6
				Se	13.9	±	0.5
				Ta	1.58	±	0.03
				Tb	3.12	±	0.06
				Th	23.0	±	0.4
				U	9.25	±	0.45
				Zn	235	±	14

Table 3. Information Mass Fraction Values (Dry-Mass Basis) for SRM 1633c

Constituent	Mass Fraction (mg/kg)
Be	16
Ce	180
Ga	55
Hf	6.0
In	0.14
Nd	87
Sm	19
Yb	7.7

Table 4. Analytical Methods Used For Value Assignment

Element	Methods	Element	Methods
Al	WDXRF, INAA, CANSPEX	Mn	WDXRF, INAA, CANSPEX
As	WDXRF, INAA, CANSPEX	Na	WDXRF, INAA, CANSPEX
Ba	WDXRF, INAA, CANSPEX	Nd	INAA
Be	CANSPEX	Ni	ICP-OES, ICP-MS, CANSPEX
Ca	WDXRF, INAA, CANSPEX	P	ICP-OES, WDXRF, CANSPEX
Cd	ID-ICP-MS	Pb	ID-ICP-MS
Ce	INAA	Rb	WDXRF, INAA
Co	INAA, CANSPEX	S	CANSPEX
Cr	WDXRF	Sb	INAA, CANSPEX
Cs	INAA	Sc	INAA
Cu	ICP-OES, ICP-MS, CANSPEX	Sr	INAA
Dy	INAA	Si	WDXRF
Eu	INAA	Sm	INAA
Fe	WDXRF, INAA	Sr	WDXRF, INAA, CANSPEX
Ga	INAA	Ta	INAA
Hf	INAA	Tb	INAA
Hg	ID-CV-ICP-MS	Ti	INAA
In	INAA	Ti	WDXRF, INAA, CANSPEX
K	WDXRF, INAA, CANSPEX	U	INAA
La	INAA	V	ICP-OES, WDXRF, INAA, CANSPEX
Lu	INAA	Yb	INAA
Mg	WDXRF, INAA, CANSPEX	Zn	INAA, CANSPEX

Key to Methods:

WDXRF	Wavelength dispersive X-ray fluorescence spectrometry after borate fusion at NIST
ICP-OES	Inductively coupled plasma optical emission spectrometry at NIST
ICP-MS	Inductively coupled plasma mass spectrometry at NIST
ID-ICP-MS	Isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry at NIST
ID-CV-ICP-MS	Isotope dilution cold vapor inductively coupled plasma mass spectrometry at NIST
INAA	Instrumental neutron activation analysis at NIST
CANSPEX	Coal and Ash Sample Proficiency Exchange program combining data from at least 17 labs using a variety of methods.

SUPPLEMENTAL INFORMATION

Summary statistics reported by Quality Assurance International, Ltd. for the CANSPEX 2008-4 Round Robin using SRM 1633c as an unknown fly ash sample are provided in the Appendix to this certificate to demonstrate user experience with this material using conventional methods and to better characterize the matrix. The CANSPEX Round Robin results should NOT be used as substitutes for NIST values.