

Elementos detectables en un patrón de partículas de materia urbana suspendida, analizados por activación neutrónica

Herrera L*, Beltrán C*, Alemón E*, Ortiz M.E.**

*Laboratorio de Espectrometría, Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares

**Estudios Ambientales, Instituto Mexicano del Petróleo.



MX0200070

Resumen

Se reporta la composición multielemental de un patrón Standard Reference Material 1648 usado para el análisis de muestras de aerosol suspendido en aire de localidades urbanas del valle de México, el cual se irradió en la misma geometría de la muestra. Se analiza el fondo del laboratorio donde se hizo la espectrometría gamma y se compara la razón de conteo de fotopicos del fondo con fotopicos del patrón en regiones de interés cercanas. Se identificaron los emisores gamma naturales del fondo y los del patrón activado en el reactor nuclear TRIGA MARK III.

Antecedentes

En principio, el análisis por espectrometría gamma de muestras irradiadas con neutrones debería permitir la determinación de gran cantidad de elementos⁽¹⁾, ya que cada radioisótopo formado al capturar neutrones térmicos o rápidos debería permitir su detección y cuantificar con precisión la actividad nuclear de cada radioisótopo. Sin embargo, existen limitaciones prácticas considerables, por ejemplo la formación de especies isotópicas de origen inespecífico, que dificultan la determinación del núcleo progenitor. Esto sucede cuando se irradia bajo un campo de neutrones tanto rápidos como térmicos, que podrían formar un mismo radioisótopo, a partir de diferentes blancos. Otra limitación es el desempeño real del espectrómetro en cuanto a eficiencia, estabilidad, resolución, intervalo útil del espectro de energía, el fondo de radiación del espectrómetro y las relacionadas con la cantidad de muestra presente, que determina el nivel de detección, el tiempo muerto, además de la vida media muy corta o una sección eficaz de captura pequeña en extremo y las interferencias entre diversos fotopicos con energías de emisión muy semejantes.

Metodología

En el Laboratorio de Espectrometría (LES) del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ), donde se

tienen equipos de espectrometría gamma de alta resolución con detectores a base de germanio hiperpuro, se llevó a cabo el análisis multielemental de un patrón certificado de NIST: Standard Reference Material 1648, en colaboración con investigadores del IMP⁽²⁾. Así mismo, se analizaron muestras de aerosol suspendido en aire de las localidades urbanas de Sn. Pedro Xalostoc y Tlalne-pantla. Las muestras y el patrón certificado se irradiaron en el reactor TRIGA MARK III en la misma posición por un total de 7 horas en diferentes intervalos de tiempo. Aquí se reportan los radioisótopos identificados en el patrón y se confrontan con las especificaciones del certificado correspondiente. Bajo estas condiciones de irradiación, se obtienen núclidos con vidas medias de horas a días. Para determinar el mayor número posible de elementos presentes en la muestra, se analizó el patrón y se determinó cuales isótopos de éste pueden realmente identificarse en el LES.

Este estudio permitió determinar, en las condiciones del Laboratorio de Espectrometría del ININ (LES), los isótopos realmente detectables del patrón bajo las condiciones que se indican en la tabla I.

Método experimental

Las diferencias de masas de las muestras colectadas sobre filtros de teflón fueron determinadas por los procedimientos estándar^(3,4). Las muestras, encapsuladas en

polietileno y aluminio, se irradiaron durante 7 horas acumuladas en 3 intervalos de tiempo con decaimiento consecutivo bajo los flujos neutrónicos indicados.⁽⁵⁾ Cada una de las muestras incluyó al patrón certificado Standard Reference Material 1648 en cada cápsula. El fondo del LES fue registrado independientemente y dio conocimiento de la importancia de las interferencias de los fotopicos del fondo con los más importantes del patrón. Los conteos del fondo se efectuaron durante 100 000 segundos, determinándose la variación estadística de parámetros tales como deriva de centroides, FWHM, NMD y conteo total por regiones de interés (ver tabla II.).

El patrón P1_7h fue contado durante 10 800 segundos a una distancia fuente-detector de 27.9 cm lo que puede considerarse como una geometría puntual, cuyo espectro aparece en la figura 2. Con datos del patrón certificado se elaboró una relación de radioisótopos con semiperíodo de decaimiento medio o largo y la biblioteca correspondiente, encontrándose consistencia con los datos del certificado. (Ver tabla III), lo cual da indicación de la sensibilidad del método aplicado en las condiciones del LES. Los datos que permitieron estimar la actividad de cada radioisótopo como secciones eficaces térmicas de estados base y metaestables, la abundancia isotópica del blanco, sus progenitores y descendencia, la vida media y energía de emisión gamma correspondiente a cada uno, se obtuvieron de los programas Nuclide Navigator (6) y Raddecay (7), la emulación de los datos se hizo usando Gamma Visión (8). La detección se realizó usando un espectrómetro gamma con detector coaxial Pop-Top, acoplado a una unidad de amplificación, fuente alto voltaje Spectrum Master de ORTEC acoplada a una PC.

Resultados y discusión

Por activación neutrónica se determinaron 19 elementos en el patrón p1_7h que se agrupan en 2 constituyentes mayores certificados, de 2 constituyentes menores certificados, de 4 elementos traza certificados. Del resto no certificado, se encontró 11 constituyentes traza. El certificado de este patrón, hace referencia a 30 elementos determinables por activación neutrónica.

La sensibilidad del sistema puede mejorarse para detectar elementos como el Cl, el Ba, Cs, In y Rb disminuyendo la contribución al conteo por los fotopicos del fondo y disminuyendo el nivel mínimo de detección mediante un mejor blindaje incluyendo el uso de supresor Compton. La interferencia de los fotopicos del fondo con los del patrón no fue apreciable para la identificación isotópica. La utilización de las versiones recientes de los programas^(6,7,8), permitió ahorros considerables de tiempo en la construcción de las bibliotecas y en la identificación de fotopicos. Se hizo, también, irradiación del mismo patrón por tiempo corto previo a la irradiación de 7 horas, lo que permitió determinar más isótopos de vida media corta,

Los resultados correspondientes se reportarán posteriormente en otro documento.

Conclusiones

1.- La metodología desarrollada usando los nuevos programas permite con mayor rapidez y eficiencia la determinación de la mayoría de los elementos del patrón.

2.- La interferencia de los fotopicos del fondo sobre los del patrón no es relevante y su contribución al continuo es pequeña permitiendo la detección de isótopos poco activos.

3.- Es posible mejorar la sensibilidad de detección del espectrómetro, y parece posible identificar isótopos adicionales a los aquí encontrados, aunque la interferencia del fondo sería más importante. También pueden considerarse los isótopos activados por neutrones rápidos y mejorar la determinación.

4.- La irradiación en el reactor por tiempos cortos y tiempos de decaimiento del orden de minutos proporciona también información de más elementos en el patrón.

5.- El peso del patrón resultó adecuado.

Bibliografía

- 1.- Landsberger, S., Creachman, Editors, *Elemental Analysis of Airborne Particles*, Gordon and Breach Publishers, Oak Ridge, Tennessee, USA, 1999.
- 2.- E. Ortiz, E. Alemón, D. Romero, J.L. Ariaga, P Olaya, F. Guzmán, C. Ríos, *Personal Exposure to Benzene, Toluene and Xilenes in different microenvironments at the Mexico City Metropolitan Zone, The Science of the Total Environment*, accepted for publication July 2001, STOTEN 2002.
- 3.- E. Vega, E. Reyes, G. Sanchez, E. Ortiz, M. Ruiz, J. Chow, J. Watson, S. Edgerton, *Basic statistics of PM and PM in the atmosphere of Mexico City 12, The Science of the Total Environment*, accepted for publication July 2001, STOTEN 2002
- 4.- E. Ortiz, E. Alemón, J.L. Galván, F. Guzmán *Personal exposure to particulate material and volatile organic compound in microbuses at Mexico City. Urban Transport V. Urban Transport and the environment for the 21st Century*, Ed. by L.J. Sucharov WIT Press, Pag 105-114, Great Britain (1999).
- 5.- Delfín A., *Mapeo de flujos de haces (2nda. Etapa), Informe Técnico, Gerencia del Reactor, Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, 1992.*
- 6.- *Nuclide Navigator, version 1.01 March 4 1995. Developed for E&G Ortec by Batelle Memorial Institute.*
- 7.- Charles Hacker, *Engineering and Applied Science. Griffith U, University, Australia.*

8.- Gamma Vision, Model A66-BI, version 2.30 Copyright 1995.

Tabla 1

Flujo neutrones rápidos n cm ⁻² s ⁻¹	Flujo neutrones térmicos n cm ⁻² s ⁻¹	Segundos acumulados de irradiación	Peso neto de patrón (g)	Intervalo de vidas medias de productos 244d -24 h
4.28E+12	1.30E+13	25215	0.0494	

Tabla II

Fluctuación de parámetros del espectro del fondo por regiones de interés por núcleo

Centroide. máx/mín	FWHM (máx)/mín	Cuentas totales	Cuentas (NMD)	NUCLIDO	ENERGIA (keV)
185.86/185.49	1.68/0.32	829 ± 0.51	134	U-235 + Ra-226	185.50
238.68/238.06	1.37/0.09	2946 ± 0.54	253	Pb-212	237.86
295.38/294.73	1.5/ 0.19	1750 ± 0.54	195	Pb-214	295.25
337.79/327.2	1.4/ 0.43	893 ± 0.35	139	Ac-228	337.55
352.26/351.53	1/ 0.14	3702 ± .34	284	Pb-214	351.64
462.99/462.32	1.97/ 1.16	485 ± .31	103	Ac-228	462.41
583.22/582.68	1.76/ 0.35	2569 0.53	236	Tl-208	583.24
609.31/608.75	1.87/ 0.02	5266 ± 0.68	338	Bi-214	608.41
727.27/726.52	1.93/ 0.75	655 ± 0.44	119	Bi-212	726.23
768.31/767.68	1.62/ 0.99	322 ± 0.27	84	Bi-214	767.51
795.28/794.21	1.93/ 0.99	483 ± 0.44	102	Ac-228	794.70
860.67/859.89	1.57/ 0.95	466 ± 0.23	101	Tl-208	860.15
911.24/910.56	2.06/ 1.71	2528 ± 0.11	234	Ac-228	910.50
934.1/933.52	2.54/ 1.08	343 ± 0.58	86	Bi-214	933.66
1120.43/1119.71	2.2/ 0.19	1798 ± 0.78	198	Bi-214	1119.94
1173.13/1172.58	2.8/ 1.27	436 ± 0.57	97	Co-60	1172.30
1238.15/1237.53	2.51/ 1.17	876 ± 0.46	138	Bi-214	1237.76
1332.44/1331.78	2.6/ 2.09	338 ± 0.18	86	Co-60	1332.41
1377.99/1377.04	2.65/ 1.46	656 ± 0.43	119	Bi-214	1376.71
1408.13/1406.98	2.56/ 1.21	448 ± 0.47	99	Bi-214	1406.92
1460.79/1460.08	2.6/ 2.39	29009 ± 0.08	794	K-40	1460.29
1509/1508.3	2.98/ 1.75	208 ± 0.45	67	Bi-214	1508.62
1591.7/1591.7	1.92/ 1.29	82 ± 0.29	42	Bi-208 + Tl-208 ESCAPE	1592.20
1620.82/1619.78	2.64/ 1.19	258 ± 0.65	75	Bi-212	1620.40
1661.4/1660.45	3.26/ 2.11	186 ± 0.50	64	Bi-214	1659.67
1729.58/1728.79	2.75/ 1.66	473 ± 0.39	101	Bi-214	1729.15
1764.56/1763.74	2.91/ 2.5	2086 ± 0.15	213	Bi-214	1763.38
1847.59/1846.71	3.3/ 2.4	327 ± 0.32	84	Bi-214	1846.96
2118.68/2117.66	3.32/ 2.05	181 ± 0.54	63	Bi-214	2117.83
2203.99/2203.3	3.2/ 2.28	671 ± 0.32	121	Bi-214	2203.42
2223.16/2222.39	3.34/ 2.97	2028 ± 0.14	210	CÓSMICOS	2222.55
2448.07/2446.61	3.88/ 1.25	229 ± 0.87	71	Bi-214	2447.10
2614.4/2613.49	3.81/ 3.34	3881 ± 0.20	290	Bi-208 + Tl-208	2613.24

Tabla III
Relación de isótopos del patrón certificados comparados vs los identificados.

Isótopos blanco certificados.	Identificados.	Observaciones.	Peso en el patrón (g)
Constituyentes mayores certificados			0.0494 (total)
Al	N/A	Vida media corta	0.00169
Fe	Fe		0.00193
K	K		0.00052
Constituyentes menores certificados			
Pb	N/A	No activable con neutrones térmicos.	0.00032
Na	Na		2.1×10^{-5}
Zn	Zn		0.00024
Constituyentes Traza certificados			
As	As		5.68×10^{-6}
Cd	?		3.70×10^{-6}
Cr	Cr		2.0×10^{-5}
Cu	-	Interferencia en 511 keV	3.0×10^{-5}
Ni	-	Vida media corta	4.0×10^{-6}
Se	Se		1.33×10^{-6}
U	U		2.72×10^{-7}
V	-	No activable con neutrones térmicos.	6.92×10^{-6}
Elementos no certificados			
Constituyentes mayores			
S	-	No activable con neutrones térmicos	0.00247
Mg	-	Vida media corta	0.00040
Constituyentes menores			
Cl	-	No detectable en esa concentración	0.00022
Ti	-	Vida media corta	0.00020
Constituyente traza			
Sb	Sb		2.22×10^{-6}
Ba	-	No detectable en esa concentración	3.64×10^{-5}
Br	Br		2.47×10^{-5}
Ce	Ce		2.71×10^{-6}
Cs	-	No detectable en esa concentración	1.48×10^{-7}
Co	Co		8.90×10^{-7}
Eu	Eu		3.95×10^{-8}
Hf	?		2.17×10^{-7}
In	-	No detectable en esa concentración	4.94×10^{-8}
I	-	Vida media corta	9.88×10^{-8}
La	La		1.98×10^{-7}
Rb	-	No detectable en esa concentración	2.47×10^{-7}
Mn	-	Vida media corta	3.95×10^{-7}
Sm	Sm		2.17×10^{-7}
Sc	Sc		3.46×10^{-7}
Ag	Ag		2.96×10^{-7}
Th	Th		3.46×10^{-7}
W	W		1.98×10^{-7}

F210601
 CONTEO FONDO Tc:100000 SEG 3.5% JUNIO 20, 2001 C

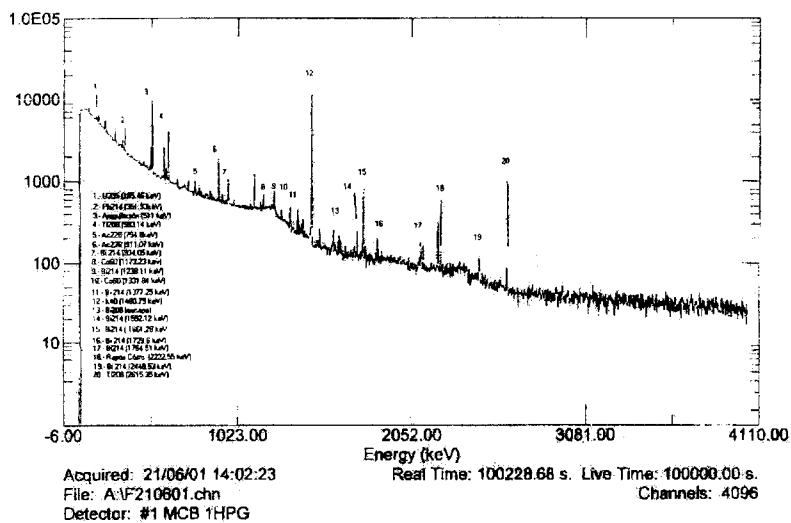


Figura 1. Espectro típico de fondo, se aprecian fotopicos de cadenas del decaimiento del U y Th.

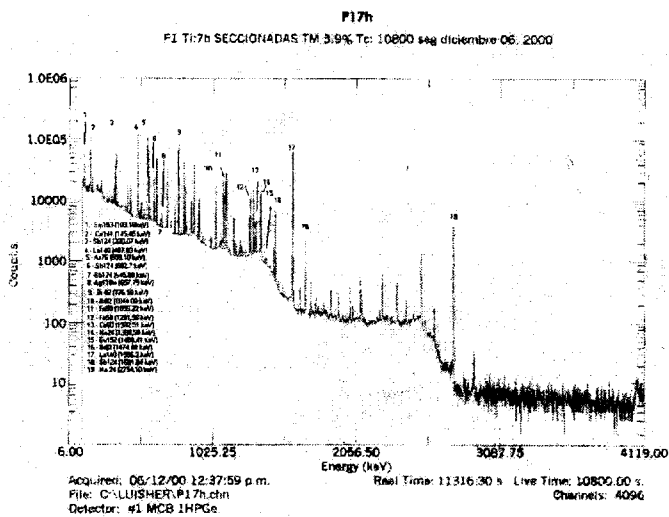


Figura 2. Espectro del patrón Standard Reference Material 1648, se aprecian fotopicos de radioisótopos del patrón.