

Análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos para aplicaciones en la minería y medicina

José Solís^{1,2} jsolis@ipen.gob.pe, Marco Munive¹ mmunive@ipen.gob.pe,
Oscar Baltuano¹ obaltuano@ipen.gob.pe, Walter Estrada^{1,2}

¹ Dirección General de Promoción y Desarrollo Tecnológico, Instituto Peruano de Energía Nuclear, Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú

² Facultad de Ciencias, Universidad Nacional de Ingeniería, Av. Tupac Amaru 210, Lima, Perú

Resumen

El análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos (PGNAA), es una técnica que se puede aplicar al análisis en línea en aplicaciones médicas e industriales, este sistema se vuelve más viable si la fuente de neutrones es portátil. Se ha adquirido un sistema PGNAA basado en una fuente de Cf 252 para aplicaciones en la fase de exploración minera. Además se está implementado un sistema PGNAA usando una fuente de Am-Be (5 Ci) para la detección de nitrógeno, la cual tendría aplicaciones médicas como medida de proteínas corporal, en el ámbito industrial en la detección de explosivos y de drogas. En el presente trabajo se detalla ambos sistemas y los resultados preliminares obtenidos.

Abstract

The prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA), it is a technique that you can apply to the on-line analysis in medical and industrial applications, this system becomes more viable if the source of neutrons is portable. A system PGNAA has been acquired based on a source of Cf 252 for applications in the phase of mining exploration and other system PGNAA is implemented using source of Am-Be (5 Ci) for the nitrogen detection, which would have applications in medicine, as corporal measure of proteins and in the industrial environment in the detection of explosive and drugs. Presently work is detailed both system and the obtained preliminary results.

1. Introducción

El análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos (Prompt Gamma Neutron Analysis Activation, PGNAA), es conocida desde hace muchos años como método de análisis elemental y complementaria al análisis por activación neutrónica (AAN). Cuando un material es bombardeado con neutrones, las interacciones con el núcleo resultan en la emisión de rayos gamma de alta energía de una variedad de niveles de energía [1]. Las reacciones nucleares producen rayos gamma de energías específicas al núcleo y el tipo de reacción nuclear. Si la intensidad y energía se mide con un detector espectrométrico, entonces se puede determinar el tipo y la cantidad de un elemento presente en la muestra.

Los rayos Gamma emitidos pueden ser clasificados como inmediatos, o retardados provenientes del decaimiento de la radioactividad inducida. Para PGNAA se detecta los fotones gamma inmediatos producidos por la reacción nuclear de captura

neutrónica (ver Fig. 1). La reacción nuclear de captura neutrónica es:

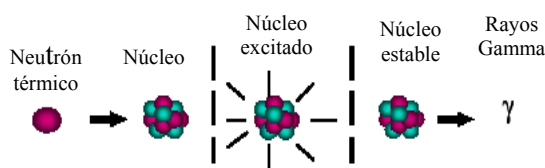
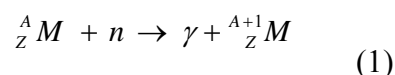


Figura 1. Esquema de la reacción nuclear de captura neutrónica.

Su principal ventaja se encuentra en que tiene una amplia aplicación en la identificación simultánea de varios elementos presentes en una muestra. Es un método no-destructivo de análisis que presenta una baja actividad residual y es flexible a los requerimientos de las muestras; es decir, la forma química y la

geometría de la muestra son relativamente irrelevantes. Es una técnica de rápida respuesta ya que los núcleos en estado de excitación presentan una vida media muy corta: 10^{-13} s. El rango de energías de la radiación gamma de captura neutrónica va desde 50 keV hasta 11 MeV.

La técnica de PGNAA ha encontrado aplicaciones en sistemas de medida en línea y en el campo, por ejemplo para la exploración en la industria minera, para determinar la calidad de la mezcla en la industria cementera, también existen aplicaciones médicas, etc.

Este sistema se está usando en la industria minera desde 1994, inicialmente se usó para minas de carbón para estimar la calidad de carbón de la mina, donde ha tenido gran éxito reduciendo los costos de la exploración [2]. Esta técnica se está convirtiendo en una técnica estándar en minas de carbón de tajo abierto. Últimamente se está usando para minas de cobre, de hierro y zinc con excelentes resultados. Este método debido a que muestrea un gran volumen y provee un análisis en tiempo real es particularmente útil para el monitoreo geofísico en la producción de perforaciones de exploración. El sistema de PGNAA puede dar resultados de campo para medir la concentración de determinados elementos de interés. Es importante medir la concentración de azufre y hierro en muestras de carbón mineral que serán usados en la industria siderúrgica, y la medida en línea de la concentración de insumos (SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , CaO , MgO) para la industria cementera reduciría costos de producción y mejoraría la calidad del cemento.

La cuantificación de fotones gammas inmediatos producto de la captura de neutrones en seres vivos es una de las posibilidades de medición no invasiva de determinados elementos componentes de la estructura humana conocida como análisis por activación neutrónica en seres vivos (IVNAA) [3], por ejemplo nitrógeno, cloro, calcio, fósforo, cadmio, etc. Siendo una técnica de diagnóstico y hasta de terapia para aplicaciones médicas, entre las aplicaciones donde se puede usar son: Osteoporosis o medida de calcio a cuerpo completo, medida de cadmio y mercurio, medida de nitrógeno a cuerpo completo para el estudio del estado proteico, etc.

En nuestro país, los trabajos de PGNAA se iniciaron por el año 1991, bajo un proyecto OIEA PER2/012: “Métodos de análisis por activación neutrónica”. Con este proyecto se implementó una facilidad de análisis por activación neutrónica por gammas inmediatos, la cual se debió de instalar en uno de los conductos de irradiación del Reactor Nuclear RP-10, ubicado en el Centro Nuclear Oscar de la Guerra. RACSO. El detector del sistema se

malogró y el sistema nunca funcionó. Conociendo las bondades de la técnica PGNAA, sobre todo su posibilidad de aplicación en línea o de campo y como en nuestro país la industria minera es la que mayor divisas genera, se presentó un proyecto al Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) para introducir esta técnica a la industria minera nacional.

El proyecto OIEA PER/1/014: “Prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) method and instrumentation for coal/iron/copper grade estimation in large diameter blast holes at open-cut Small Peruvian Mines”. (Método e instrumentación del análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos para la estimación del grado de cobre/carbón/hierro en la exploración en pequeñas minas peruanas de tajo abierto) aprobado es de USD 127255 y tiene una duración de 2 años a partir del 2005. El proyecto incluye la adquisición de un sistema PGNAA de análisis de minerales en minas de tajo abierto, así como el entrenamiento del personal de IPEN en el uso y mantenimiento del sistema.

2. Experimental

Para la etapa de exploración tradicional minera se obtiene muestras del subsuelo a profundidades variables. La perforación puede ser perforación diamantina con toma de núcleos y perforación mediante circulación inversa, en programas de superficie ó subterráneo. Su principal problema deriva de su representatividad, pues no hay que olvidar que estas muestras constituyen, en el mejor de los casos (sondeos con recuperación de testigo continuo) un cilindro de roca de algunos centímetros de diámetro, que puede no haberse recuperado completamente (ha podido haber pérdidas durante la perforación o la extracción), y que puede haber cortado la mineralización en un punto excepcionalmente pobre o excepcionalmente rico. Esta roca es posteriormente enviada al laboratorio para hacer los análisis respectivos. Esto conlleva en un tiempo para obtener los resultados y el error que representa la manipulación de la muestra. Con el sistema PGNAA de análisis de minerales en minas se puede determinar en toda la perforación el grado de cobre/carbon/hierro del mismo en tiempo real.

El equipo puede ser usado en minas de carbón, cobre, hierro, fosfatos, etc. Una vez que el sistema se calibra, los resultados

se pueden obtener justo después de la toma de datos en una perforación. Dentro del proyecto se ha adquirido el sistema SIROLOG de CSIRO Exploration and mining, Australia. Actualmente el sistema está en nuestro laboratorio y se ha comenzado a realizar las primeras pruebas.

2.1 Sistema SIROLOG

La Figura 2 muestra el esquema del sistema SIROLOG. El equipo consta básicamente de una sonda de medida, un cable de acero inoxidable que conecta a una interface y esta a una computadora portátil donde se procesan los datos. El radio de acción de los neutrones térmicos es 0.3 a 0.4 m. Por ende se obtiene información detallada de los estratos como el espesor y profundidad de la mena, esta información no se obtiene del análisis convencional de las perforaciones.

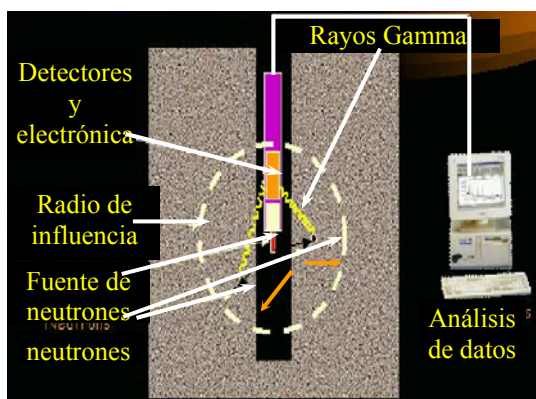


Figura 2. Esquema del sistema de análisis por activación neutrónica de gammas inmediatos SIROLOG.

La sonda consta de una fuente de neutrones de Cf^{252} de 100-140 MBq, un cristal $Bi_4Ge_3O_{12}$ (BGO) como detector de gamma junto a un fotomultiplicador, y el blindaje (ver Fig. 3). La electrónica necesaria está contenida junto al detector en un tubo de 1.5 m. El Sistema está conectado con un cable de acero inoxidable de 450 m, el cual mediante un motor y sistemas de poleas puede introducir el sistema dentro de la perforación y retirarlo. La señal llega a una interface que está conectada a una computadora portátil. Todo el sistema se puede transportar usando una camioneta y monitorear las perforaciones en el campo ya que el sistema opera con una batería (Figura 4).



Figura 3. Esquema de la sonda del sistema SIROLOG.



Figura 4. Todas las componentes del sistema SIROLOG.

Para la introducción del sistema a la industria minera se tiene dos estrategias, analizar muestras de la mina en el Centro Nuclear, haciéndolo de forma estática o escoger una o varias minas piloto donde se puede realizar el monitoreo de una perforación de exploración. A diferencia de los métodos tradicionales de exploración donde se tiene una medida del grado del mineral por perforación, con la técnica de PGNAA se puede tener el perfil de la perforación, es decir la concentración del metal cada 20 cm. Esta información puede llevar a reducir el número de perforaciones y tener la información en menor tiempo. Esta etapa se trabajará con gente de empresas mineras encargadas de la exploración.

2.2 Sistema PGNAA desarrollado

Se ha implementado parcialmente un nuevo sistema de PGNAA a inicios del año 2005, como una actividad del proyecto OIEA PER /1/014. Esta facilidad de PGNAA se ha instalado en el centro

nuclear para que de este modo se tenga un respaldo de análisis a la activación neutrónica (AAN). Se ha implementado la facilidad de PGNAA en el conducto de irradiación No 05 del reactor nuclear RP-10, tal implementación se encuentra en la fase inicial, la cual consiste en las pruebas de blindaje del sistema, y sensibilidad de detección según posición y colección de espectros de gammas inmediatos, para muestras típicas [4]. Como detector se está usando el de centelleo de NaI (Tl) de 3"x3",

según los datos obtenidos aún no presenta una buena eficiencia de detección para fotones gammas de alta energía, se está trabajando en la corrección de dicho inconveniente. La facilidad para análisis por activación neutrónica por gammas inmediatos consta de tres partes básicas, la colimación, el porta muestra y el sistema de detección gamma, los cuales se aprecian en la Figura 5, detallaremos cada uno de ellos.

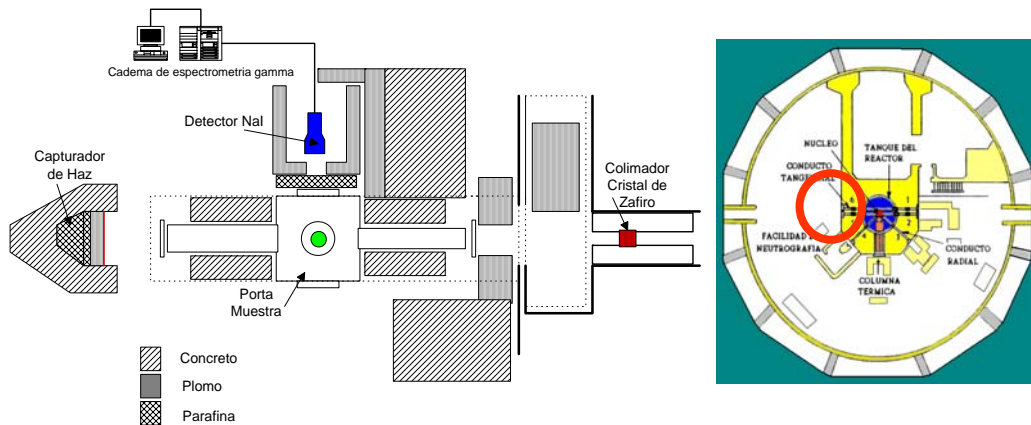


Figura 5. Esquema de la instalación de la técnica PGNAA en el conducto de irradiación No 05 del reactor nuclear RP-10.

Para la colimación de neutrones se ha colocado en el conducto de irradiación No 05 un colimador de acero inoxidable de forma cilíndrica que contiene agua. El colimador de 98 cm de longitud está formado de dos tubos de acero inoxidable concéntricos con diámetros de 20 y 5 cm, respectivamente, y tapas de acero inoxidable. Como medio atenuador de neutrones y fotones gamma en el colimador se colocó un cristal de zafiro de forma cilíndrico, de 7 cm de diámetro y 10 cm de longitud.

El porta muestra es de aluminio y consta de un cubo de 50 cm de arista con dos tubos salientes en caras opuestas. El final de cada tubo está sellado con láminas de aluminio. Las otras caras del cubo tienen accesos, dos de ellos opuestos que tienen la función de soportar el contenedor de la muestra y en los otros dos accesos uno tiene una tapa de 5 cm de aluminio puro en dirección del sistema de detección gamma y el opuesto a este es un acceso para mantenimiento del porta muestra. Todas las paredes internas del cubo de aluminio están revestidas de fluoruro de litio (LiF), el cual es un atenuador de neutrones. El sistema está herméticamente sellado para poder hacer vacío en ella. Se usa aluminio porque para neutrones este material presenta una sección eficaz de interacción muy baja, es decir es casi imperceptible a neutrones.

El sistema de detección gamma consta de una cadena de medición, el cual consta de un detector de NaI(Tl), de 3"x3" de dimensión y un tubo fotomultiplicador de marca Canberra y la electrónica asociada. Los espectros son colectados mediante el software S100. Una parte fundamental de la instalación es el blindaje para lo cual usamos materiales densos (concreto, plomo) para blindar de los rayos gamma y materiales livianos para blindar neutrones (parafina, LiF, Polietileno). Lo más importante en el diseño del blindaje es la protección del detector de NaI (Tl), tanto para disminuir los fotones gamma que no provienen de la muestra como de los neutrones dispersados por la misma muestra.

En el centro nuclear también se está instalando una facilidad de IVNAA, sobre todo para poder medir concentración de nitrógeno en muestra biológicas, para esta facilidad se usa una fuente de neutrones de $^{241}\text{Am-Be}$ (5 Ci) y el detector de NaI(Tl) [5]. Esta implementación conllevará a tener un dispositivo para aplicaciones médicas, donde se pueden realizar estudios de diagnóstico y terapia, o podría también derivar en un sistema de análisis en línea para otra aplicación en la industria, por ejemplo cementeras, siderúrgicas, detección de explosivos y drogas, etc.

Al usar una fuente de neutrones se debe de tener en cuenta qué materiales se usaran en el

blindaje biológico, deben de contener materiales hidrogenados y combinarse con materiales densos ya que la fuente que se usará es emisora de neutrones y fotones gamma. Para lograr una mejor eficacia en el diseño del blindaje se uso código de simulación (MCNP 4b), con el cual se determinó la mejor distribución de los materiales de blindaje y lograr que la tasa de exposición o de dosis para ambos campos (neutrones, fotones gamma) sean las más bajas posibles, de modo que no sobrepase los límites anuales permisibles (40 $\mu\text{Sv/h}$) [6].

En la Figura 6 se tienen el diagrama de la facilidad instalada. La ubicación de la fuente de neutrones $^{241}\text{Am-Be}$ es dentro de un contenedor cilíndrico de acero de 10 cm de largo por 3.9 cm de diámetro, la cual se coloca dentro de un recipiente de polietileno borado, y este a la vez dentro de un cilindro de parafina. La pared de este cilindro de parafina es de 10 cm, y una altura de 55 cm, este cilindro se encuentra rodeado por parafina adicional de 5cm de espesor, seguido de una pared de concreto de 50 cm de espesor, en la parte superior del cilindro se coloca una plancha de aluminio de 1 cm de espesor y según sea la necesidad se coloca un medio moderador (parafina, polietileno). En la parte superior se coloca el porta muestra el cual es una caja de acrílico, dependiendo de lo requerido este porta muestra se llenará de agua y con las concentraciones del material que se quiera determinar.

La muestra de prueba usada es urea diluida en agua. A los lados laterales del porta muestra se ha colocado castillos de plomo y concreto, el cual hará de blindaje al detector de centelleo. El diseño contempla dos castillos ya que se ha proyectado el uso de hasta dos detectores, estos detectores se encargan de registrar los fotones gamma inmediatos producidos de la interacción de los neutrones con el medio o muestra, el detector usado es de NaI (Tl) de 3"x3", el cual esta conectado a una cadena de medición gamma. El castillo o blindaje posee una pared de LiF frente al porta muestra que se encargará de eliminar o atenuar los neutrones.

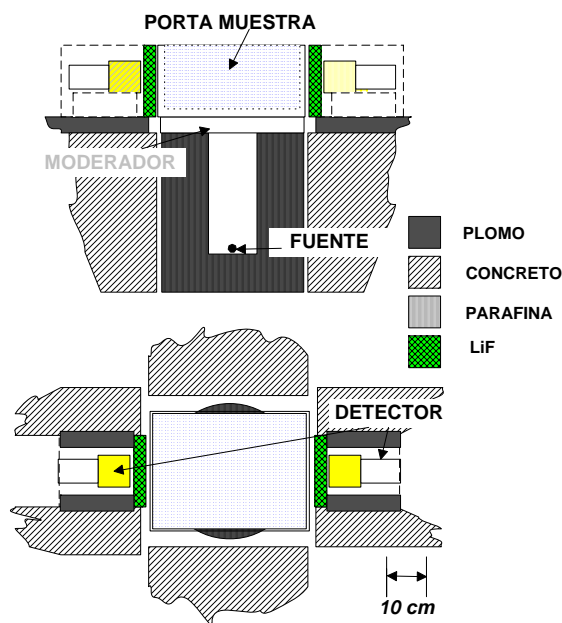


Figura 6. Esquema de la instalación de la técnica PGNAA con una fuente de neutrones $^{241}\text{Am-Be}$.

3. Resultados y Conclusiones

En la Figura 7 se muestra el espectro de diferentes muestras de mineral obtenido en rangos de baja (Fig. 7a) y alta energía (Fig. 7b). La estabilización se realiza usando el pico en 2.2 MeV del H, el cual se identifica al comenzar a tomar datos de esta forma se tiene en cuenta las variaciones de temperatura que afecta al BGO. Este pico de H proviene de la matriz del mineral en caso del carbón o del polietileno que se tiene en la sonda. Se detecta además el B, debido a que el cobertor de la sonda esta recubierta con 16 mg/cm^2 de B^{10} para absorber los neutrones térmicos provenientes de la fuente de neutrones. El espectro en la zona de baja energía son muy similares (Fig. 7a), mientras que en la zona de alta energía (Fig. 7b) si cada muestra presenta picos característicos con lo cual se puede identificar y cuantificar la concertación del elemento de interés en la muestra. El BGO no tiene una resolución como el Ge ultrapuro pero si se hace cocientes entre las diferentes zonas de interés se puede hacer una curva de calibración.

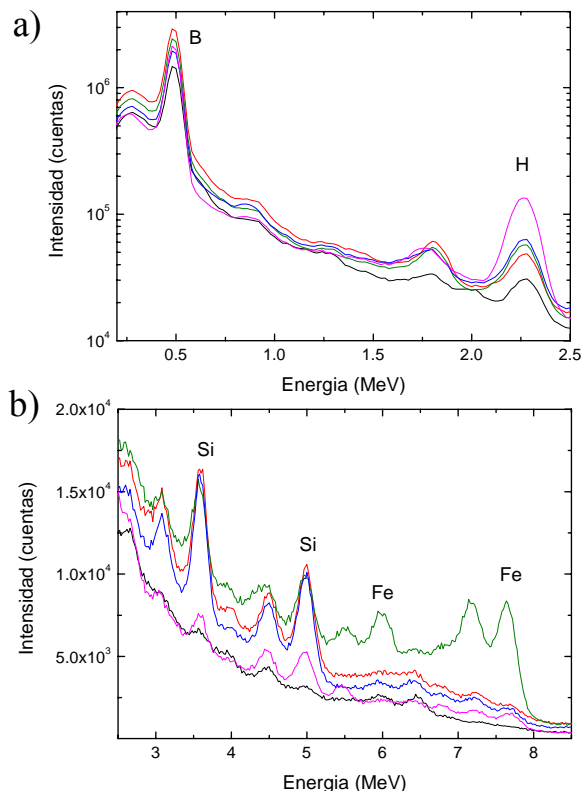


Figura 7. Espectro de diferentes muestras de mineral en la región de baja (a) y alta energía (b).

Estos espectros se pueden obtener cada 5, 10 o 20 cm en la perforación de exploración. Lo cual puede dar un perfil de la perforación de exploración. La Figura 8 muestra el perfil de una perforación en la mina Chuquicamata de tajo abierto de cobre, Chile, usando el sistema SIROLOG. Se puede apreciar que el sistema una vez calibrado nos da el perfil de la perforación en función de la profundidad, mientras que con el método tradicional tenemos un valor promedio representativo de la perforación.

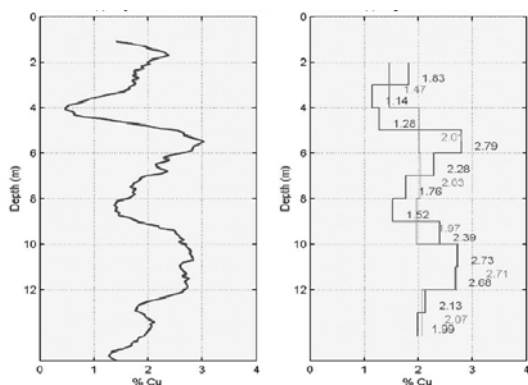


Figura 8. Ejemplo de la estimación de Cu en función de la profundidad de una perforación de exploración derivada usando el sistema SIROLOG de la mina Chuquicamata [7].

La Figura 9 muestra el espectro de ácido bórico tomadas en el sistema montado (ver Fig. 5), se puede apreciar claramente el pico del Boro y el Hidrógeno.

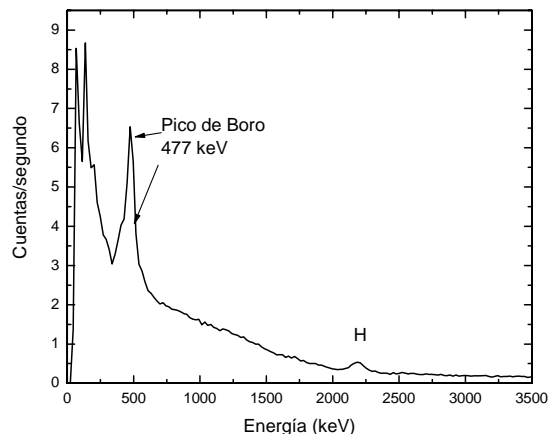


Figura 9. Espectro de una muestra de ácido bórico.

La Figura 10 muestra el espectro del fondo y de urea diluida en agua, se puede apreciar en la región de altas energías el pico correspondiente al Nitrógeno. Debido que el pico es pequeño se esta procediendo a colocar otro detector para poder hacer una curva de calibración de nitrógeno.

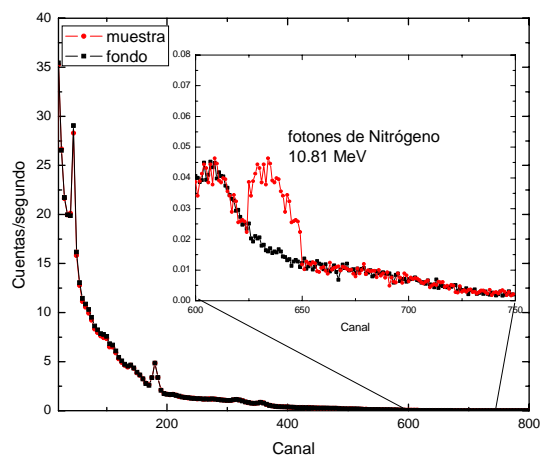


Figura 10. Espectro del fondo y de una muestra de urea diluida en agua (400g/lit), colectada en la posición de mejor detección del sistema implementado para PGNA.

4. Conclusiones

Como una conclusión preliminar del proyecto, se evalúa que la técnica de PGNAA tiene una potencialidad para su uso en campo, empleando fuente de neutrones. Permite determinar varios elementos como: hidrógeno, nitrógeno, cobre, hierro, zinc, mercurio, etc. El proceso de cuantificación se puede realizar teniendo patrones o medidas por otras técnicas que nos sirven para hacer la calibración.

5. Agradecimientos

Se agradece al Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) por la financiación del proyecto PER/1/014.

6. Bibliografía

[1] Paul R.L., Lindstrom R.M. Prompt gamma ray activation analysis: Fundamentals and applications. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2000; 243(1):181-189.

[2] Borsaru M., Ceravolo C. A low activity spectrometric gamma-gamma borehole logging tool for the coal industry. *Nucl. Geophys.*1994; 8:343-350.

[3] Wang H., Waana Ch. M. IVNAA Investigation of Factors affecting The Background in the Measurement of Nitrogeno, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 1991; 151(2):293-299.

[4] Knoll G.F. *Radiation Detection and Measurement*. 2nd, John Wiley & Sons, 1979.

[5] Mendez R., Iñiguez M.P. Response Components of LiF: MgLi around a Moderated Am-Be Neutron Source. *Radiation Protection Dosimetry*. 2002; 98(2): 173-178.

[6] ICRU, Quantities and Units in Radiation Protection Dosimetry, *ICRU Report 51*, International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, Maryland, 1993.

[7] Charbucinski J., Malos J., Rojc A., Smith C. Prompt gamma neutron activation analysis method and instrumentation for copper grade estimation in large diameter blast holes. *Applied Radiation and Isotopes*. 2003; 59: 197-203.