

Ingeniería Nuclear con Orientación en Aplicaciones

Proyecto Final Integrador

**Desarrollo de un monitor de haces de
neutrones basado en centelladores y
fotomultiplicadores de silicio**

Alumno: Arévalo, Emanuel

Tutor: Izraelevitch, Federico

A ella...

*A quien todos los días
me abraza el cuerpo y el alma.*

Agradecimientos

*Si tu presencia no ha de ir conmigo,
no nos saques de aquí.
Moisés, Éxodo 33:15*

Personales

No puedo comenzar esta sección sin mencionar a quien me acompaña desde pequeño, a quien le debo en primer lugar haber podido llegar hasta el final de esta etapa. Escribo estas palabras y no puedo evitar recordar ese día cuando estaba yendo a la Universidad Nacional de La Matanza a inscribirme para empezar la Ingeniería. Muchos miedos e incertidumbres pasaron por mi cabeza en ese momento, pero aquí estoy. Hoy puedo decir que ha sido fiel conmigo, siendo mi sostén todo este tiempo, cada vez que sentía que no podía. Gracias en especial a Dios, mi Padre.

Gracias a quien me ha soportado en esta última etapa de mi carrera, a quien me ha visto atravesar momentos de miedo y frustración y se ha sentado a mi lado a escucharme. Gracias no solo por compartir los lindos momentos, sino porque quisiste quedarte en todos, sin importar como fueran. Gracias por empujarme a ser mejor, por confiar en mi y darme esa confianza que necesité en este tiempo. Gracias por ser mi amiga y compañera. Gracias Jorge.

Gracias a vos, mamá. Gracias por confiar en mi, gracias por tu apoyo incondicional. Gracias porque desde pequeño creíste que lo lograría, y acá estoy, a pesar de todo lo que vivimos.

Gracias Fede por la comprensión, por el apoyo, por el ánimo y la calidez. Gracias por abrirme puertas y por permitirme ser parte de este proyecto. Gracias por haberme guiado en esta etapa.

Gracias Vero por los mates compartidos, por las charlas, por la amistad que me brindaste. Gracias por hacerme un lugarcito en la oficina y hacerme sentir cómodo. Gracias por las risas y los lindos momentos. De verdad gracias.

Gracias a la Universidad Pública Gratuita y de Calidad, gracias a la UNSAM. Gracias a los docentes y no docentes del IDB. Gracias en especial a Nati, Vale, Javi y Javi, Adriel y Leti por el apoyo en este tiempo. Gracias a todos mis docentes. Gracias Mariana, Diego, Lucila, Nico, Andrea, Pablo B., Adrián, Lucas, Juan, Lucio, Ricky y Emi por la vocación que mostraron para marcarme el camino.

Gracias al hermoso grupo de Somos UNSAM por hacerme parte y permitirme ampliar mi visión del mundo académico, más allá de mi propia disciplina. Gracias por la militancia y el empuje que me dieron siempre a pesar del poco tiempo que tuve para aportar estos últimos meses.

Gracias a todos y a cada uno de los que no nombré más arriba pero que me acompañaron en toda esta etapa, a quienes tengo presente en mi corazón, a los cuales considero mis amigos y mi familia.

Institucionales

A todo el grupo de LINT por el apoyo profesional que me brindaron para avanzar en este proyecto. Al Dr. Horacio Corti, al Mg. Juan Valledor y a la Téc. Paula Curotto por preparar los centelladores que utilicé en este Trabajo.

Al grupo de Instrumentación y Control del CAE por brindarme las fuentes y el espacio para realizar los experimentos. Al Ing. Juan Alarcón, por la colaboración en el desarrollo del circuito amplificador que utilicé en este Trabajo. A la Mg. Silvia Thorp por la colaboración en los experimentos que hicimos con las fuentes gamma y de neutrones.

Al grupo de Dosimetría de Radiaciones Ionizantes por su apoyo en los experimentos con fuentes gamma. A la Dra. Celina Horak y a la Lic. Amalia Stefanic por la disposición, y al Téc. Gustavo Montaño y al Téc. Fabián Bedoya por su colaboración en los experimentos.

A la Lic. Lucila Rogulich y al Sr. Juan Riela por la colaboración en las mediciones realizadas en el edificio del RA-3. A Lucila especialmente por invertir su tiempo en mostrarme con dedicación la instalación del haz Prompt Gamma para la futura implementación de nuestro detector.

Al todo el grupo de técnicos, físicos, ingenieros y científicos del Lab-A en SiDet, Fermilab. En especial al Dr. Juan Estrada por recibirme y guiarne en mi estadía de investigación en Chicago y a la Dra. Carla Bonifazi por el apoyo y el entrenamiento en la técnica de PSD.

Al Instituto Dan Beninson que me brindó los instrumentos y el espacio necesario para realizar este Trabajo.

Resumen

Los neutrones han sido parte de la ciencia aplicada desde los primeros años de su descubrimiento. Esto a permitido el avance en el desarrollo de detectores cada vez más eficientes. Además, cambios políticos a raíz de los acontecimientos del 11 de septiembre de 2001 potenciaron la búsqueda de nuevas alternativas para la detección de neutrones.

El presente escrito se enmarca en el Proyecto Final Integrador de la Ingeniería Nuclear con Orientación en Aplicaciones. El Trabajo realizado durante el último año de esta carrera permitió avanzar en el desarrollo de un detector prototípico cuyo diseño se adapta a los requerimientos de un monitor de flujo neutrónico para el haz Prompt Gamma del RA-3

El Trabajo consistió en el ensayo de distintos compuestos centelladores con el objetivo de determinar los mejores candidatos para conformar el detector de neutrones. De los compuestos seleccionados se estudiaron las características de los pulsos generados en el fotodetector. Estos estudios incluyeron la discriminación por altura y por forma de pulsos, la determinación del rechazo a fotones gamma y el cálculo de la sensibilidad a neutrones.

Índice general

1. Introducción	1
1.1. Antecedentes	2
1.2. Motivación	3
1.3. Objetivos	4
1.4. Organización del Trabajo	4
2. Marco Teórico	5
2.1. Interacción de la Radiación con la Materia	5
2.1.1. Radiación gamma	5
2.1.2. Radiación de neutrones	7
2.1.2.1. Clasificación de los neutrones	8
2.1.2.2. Sección eficaz	8
2.2. Detección de neutrones térmicos	8
2.3. Detectores centelladores	10
2.3.1. Centelladores Inorgánicos	11
2.3.2. Centelladores Orgánicos	11
2.4. Fotomultiplicadores de silicio	12
2.5. Fuentes de neutrones	13
2.6. Discriminación por forma de pulso (PSD)	14

ÍNDICE GENERAL	VI
3. Diseño y optimización del detector de neutrones	15
3.1. Conjunto centellador-SiPM	15
3.2. Caracterización de los diferentes compuestos centelladores	17
3.2.1. Respuesta cualitativa a neutrones y gamma	18
3.2.2. Intercomparación cualitativa de los distintos compuestos centelladores	21
4. Caracterización de la respuesta a campos neutrónicos y gamma	25
4.1. Sistema de adquisición de datos	25
4.2. Análisis de los datos adquiridos	27
4.3. Estudio de la discriminación por forma y altura de pulso	28
4.4. Determinación del rechazo absoluto a fotones gamma	34
4.5. Medición de la sensibilidad a neutrones térmicos	39
5. Conclusiones	41
Referencias	44

Capítulo 1

Introducción

Desde que Sir James Chadwick anunciara el descubrimiento del neutrón en 1932, esta partícula ha tenido un rol importante en la ciencia aplicada. Basta decir que solo dos años luego de su descubrimiento, Enrico Fermi había dado evidencia de la fisión del uranio al bombardearlo con neutrones y diez años después el primer reactor nuclear veía la luz en Chicago. Desde entonces, los neutrones han sido objeto de múltiples aplicaciones tecnológicas en las más variadas disciplinas, con técnicas como la activación neutrónica para cuantificar muestras, técnicas de exploración de pozos petroleros, pasando por la técnica de dopaje de silicio para componentes electrónicos hasta las aplicaciones médicas como la técnica de BNCT (por sus siglas en inglés, Boron Neutron Capture Therapy).

El éxito de todas estas técnicas descansa en parte en el avance de los detectores, de los cuales se requieren cada vez mayores prestaciones. En este sentido, el ^3He ha tenido un papel preferencial en la detección de neutrones, debido a sus características nucleares, las cuales se desarrollarán más adelante. Lamentablemente, desde el 11 de septiembre de 2001, se incrementó la demanda de este isótopo para detectores con fines de seguridad superando altamente la producción, por lo que su utilización para usos científicos se vio comprometida [1]. A pesar de esto, como sucede muchas veces en el ámbito científico, el problema ha permitido avanzar en el desarrollo de nuevas alternativas para la detección de neutrones.

Además del ^3He , los isótopos más utilizados para la detección de neutrones son el ^{10}B , el ^6Li , ^{157}Gd y el ^{235}U , también debido a sus características nucleares. En general, las propiedades de estos isótopos están bien estudiadas en el ámbito nuclear, por

lo que sus aplicaciones son diversas, además del uso en detectores. Particularmente el ${}^6\text{Li}$ se emplea actualmente en la fabricación de placas centilladoras para neutrografía, técnica utilizada en Argentina en las instalaciones del RA-6 en el Centro Atómico Bariloche (CAB), de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA).

1.1. Antecedentes

En el año 2018 el Mg. Juan María Valledor Duco presentó su trabajo de Tesis "Desarrollo de centilladores basados en ${}^6\text{Li}$ para detección de neutrones" para obtener su título de Magíster en Ciencia y Tecnología de Materiales del Instituto Sabato, en el Centro Atómico Constituyentes (CAC). Este trabajo estaba inscrito dentro del proyecto marco "Desarrollo y Caracterización de Materiales de Litio para la Producción de Energía" (Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica PICT 2013-1818), tendiente a potenciar el valor de las reservas de litio existentes en Argentina a través del estudio de materiales basados en este elemento y de tecnologías para su producción y aplicación a la generación de energía. El trabajo estuvo dirigido por el Dr. Horacio Corti (CAC, CNEA), quien en los últimos años estuvo dedicado a la búsqueda de alternativas que pueden llevar a una explotación más racional del litio, motivado por el crecimiento exponencial en la demanda de litio en el mundo y sobre todo en Argentina, quien posee gran parte de este recurso con capacidad de ser explotado [2].

Parte del trabajo de Tesis del Mg. Juan Valledor consistió en la preparación de centilladores y el análisis de su viabilidad para el reemplazo de las placas comerciales utilizadas en el CAB, estudiando las características químicas y físicas de varios compuestos postulados. En esta etapa, el grupo de BNCT del Centro Atómico Ezeiza (CAE) contribuyó cediendo carbonato de litio, enriquecido en ${}^6\text{Li}$. De este proyecto se desprendió una nueva alternativa con atractivo potencial para el uso racional del litio, el desarrollo de detectores. De esta nueva aplicación de los centilladores que estaba desarrollando el grupo del Dr. Corti nació la colaboración con el Dr. Federico Izraelevitch, quien sumó su experiencia y trayectoria en la investigación y desarrollo de detectores, y en especial mediante el uso de fotodetectores de estado sólido.

1.2. Motivación

El reactor de investigación RA-3, emplazado en el CAE se ha caracterizado por la producción y abastecimiento de ^{99}Mo para la región. Además, en sus más de 50 años de operación, en este reactor se realizaron calificación de combustibles, estudio de materiales, irradiación de muestras para análisis y ensayos de la técnica BNCT, entre otros. También en los últimos años se estuvo desarrollando una instalación para el uso de la técnica de Análisis de Gammas Instantáneos por Activación Neutrónica (PGNAA por sus siglas en inglés). Esta técnica no destructiva se basa en la activación de los núcleos de una muestra mediante la irradiación con neutrones y su emisión instantánea de radiación gamma característica de cada nucleido. Como se trata de una técnica analítica cuantitativa es necesario conocer con la menor incertezas alcanzables el flujo neutrónico y así calificar y cuantificar la muestra, conociendo la sección eficaz de las reacciones involucradas [3]

Actualmente, el haz es monitoreado utilizando un método indirecto el cual consiste en irradiar hojuelas de distintos materiales, de los cuales se conoce su composición con baja incertezas. De esta manera, midiendo la emisión gamma retardada de los nucleidos generados por activación se puede cuantificar el flujo. Si bien este método permite obtener valores de flujo con muy baja incertezas, la información no se obtiene en tiempo real sino un tiempo antes de colocar la muestra para analizar. Como es probable que hayan variaciones de potencia en operación normal del reactor, esta metodología para determinar el flujo aumenta considerablemente las incertezas de la medición.

El desarrollo de un detector de neutrones de pequeñas dimensiones, que pueda utilizarse como monitor de haz en esta instalación, es un candidato viable para mejorar la cuantificación de las muestras. Esto traería un beneficio a los usuarios de esta técnica en particular y a la comunidad científica argentina en general, dado su potencial como instrumento de medición para futuros proyectos como los haces de neutrones del RA-10 o el acelerador para generar neutrones por espalación para BNCT, entre otros.

1.3. Objetivos

El objetivo general de este Proyecto es desarrollar un detector prototipo que pueda utilizarse como monitor de haces de neutrones para su posterior instalación en el haz Prompt Gamma del RA-3. Para cumplir este objetivo se delinearon objetivos específicos los cuales son:

- Evaluar la respuesta a neutrones térmicos de distintos compuestos centelladores y seleccionar los mejores candidatos.
- Estudiar la sensibilidad a neutrones térmicos de los detectores.
- Estudiar el rechazo a fotones gamma de los detectores.
- Estudiar la capacidad de los detectores de discriminar neutrones de fotones gamma.

1.4. Organización del Trabajo

Este trabajo se organiza de la siguiente manera. En el Capítulo 2 se expondrán los conceptos fundamentales que permiten contextualizar el trabajo experimental realizado: detección de neutrones térmicos, materiales centelladores y fotomultiplicadores de silicio, entre otros. Luego, en el Capítulo 3 se describirá el diseño de los detectores de neutrones desarrollados, y una caracterización comparativa de distintos compuestos centelladores. En el Capítulo 4 se presentará un estudio de la discriminación por altura y forma de pulso de dos de los compuestos centelladores, la determinación del rechazo absoluto a fotones gamma y la sensibilidad a neutrones de uno de ellos. Finalmente, en Conclusiones, se hará una síntesis del trabajo realizado y se realizarán propuestas para el futuro.

Capítulo 2

Marco Teórico

2.1. Interacción de la Radiación con la Materia

La radiactividad es un fenómeno natural por el que un núcleo atómico inestable emite radiación de manera espontánea, transmutándose o desexcitándose a un estado de menor energía. Los fenómenos relacionados con la radiactividad han tenido una historia enriquecedora y han influido directamente en el progreso del conocimiento de los átomos, núcleos y partículas. También han servido para desarrollar una metodología de la experimentación, sentando las bases de los modernos detectores.

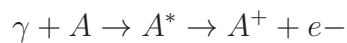
La radiación puede ser categorizada en dos grandes grupos, dependiendo si intervienen partículas cargadas o sin carga. Dentro de la segunda categoría encontramos a los neutrones y a la radiación electromagnética, que incluye a los rayos-X emitidos en el reordenamiento de los electrones atómicos, y a los rayos γ (gamma) que se originan a partir de transiciones dentro del mismo núcleo, en los dos últimos casos la partícula que interviene es el fotón. La detección de estas partículas neutras se realiza indirectamente gracias a que sufren otros tipos de interacción que dan lugar en el estado final a la aparición de partículas cargadas que luego pueden ser detectadas [4].

2.1.1. Radiación gamma

De las múltiples formas de interacción de los fotones con la materia, las tres más relevantes a fines de su detección son: efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y

creación de pares. Todos estos mecanismos provocan la transferencia de la energía desde el fotón a los electrones del medio material. La probabilidad de que ocurra alguno de estos mecanismos está dado por la energía del fotón incidente y por el Z del material que interactúa. La Figura 2.1 muestra qué mecanismo predomina de acuerdo a la energía del fotón incidente y del numero atómico del material interactuante. Entonces, dadas los múltiples mecanismos de interacción, el recorrido del fotón sufre cambios abruptos y repentinos de dirección, variando su energía y por lo tanto cambiando su probabilidad de interactuar bajo otra modalidad.

En el efecto fotoeléctrico, la energía del fotón es absorbida totalmente por el átomo, que al desexcitarse emite un electrón de una de sus capas con una energía igual a la proveniente del fotón menos la energía de ligadura del electrón atómico. Este mecanismo se puede resumir con la expresión



En la dispersión Compton, el fotón no pierde toda su energía al interactuar con el átomo, en cambio es dispersado, reduciendo su energía y provocando la ionización. La energía inicial del fotón E se reparte entre el fotón dispersado E' y el electrón eyectado del átomo. La energía del fotón dispersado un ángulo θ vale

$$E' = \frac{E}{1 + \frac{E}{m_0 c^2} (1 - \cos(\theta))}$$

donde m_0 es la masa en reposo del electrón ($511 \text{ keV}/c^2$). Se observa entonces que la energía cinética del electrón puede tomar un valor entre 0 (cuando θ es igual a cero grados, dispersión rasante) y un máximo cuando la energía del fotón dispersado es mínima (cuando θ vale 180 grados, retrodispersión).

El último efecto relevante es la creación de pares, que ocurre con fotones de energía mayor que la energía en reposo de dos electrones (1022 keV). En este mecanismo, el fotón da lugar a la creación del par electrón-positrón, donde ambas partículas se reparten el excedente de energía cinética. Cuando el positrón haya depositado toda su energía en el medio se aniquilará con un electrón, emitiendo dos fotones de 511 keV en direcciones opuestas [4]

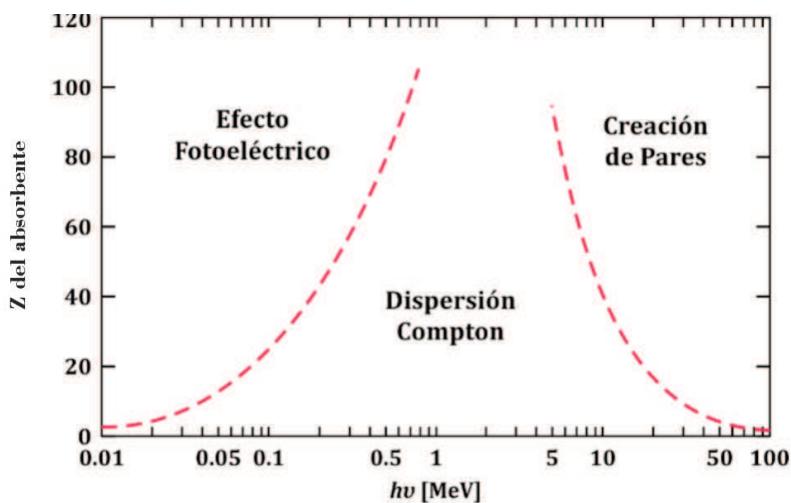


Figura 2.1: Mecanismos de interacción más probables en función de la energía del fotón y el Z del material absorbente.

2.1.2. Radiación de neutrones

Al igual que pasa con los fotones, los neutrones no poseen carga, pero a diferencia de ellos, los neutrones no interactúan a nivel electromagnético con la materia. Es por esta razón que los neutrones pueden atravesar varios centímetros de materia sin interactuar con ella. Basta con evaluar el tamaño de los núcleos atómicos, con los que el neutrón puede interactuar mediante la fuerza nuclear fuerte (fuerza de corto alcance y responsable de mantener unidos a los nucleones: protones y neutrones), en comparación con el tamaño total del átomo (10^4 veces mayor).

Como sucede con la radiación gamma, los neutrones también poseen varios mecanismos de interacción con los núcleos atómicos. Estos mecanismos pueden resumirse como procesos de dispersión o absorción. El primero puede entenderse como una colisión de dos esferas sólidas, donde parte de la energía es transferida desde el neutrón al núcleo sin pérdida de energía cinética (dispersión elástica) o con pérdida de la misma, excitando al núcleo (dispersión inelástica). En el segundo, el neutrón puede inducir una reacción nuclear que de origen a la formación de un núcleo compuesto o a la fisión del mismo. Si ocurre la primera, dependiendo de la estabilidad del nuevo núcleo, la absorción del neutrón puede dar lugar a la emisión de un nucleón o de partículas pesadas (varios nucleones).

2.1.2.1. Clasificación de los neutrones

Dado que la probabilidad de interacción de los neutrones con la materia depende de la energía con la que inciden, se los clasifican en neutrones térmicos, epitérmicos y rápidos. Las energías características de cada grupo varían entre autores, pero en general en el ámbito de BNCT se acepta a 0.025 eV (energía en equilibrio con la agitación térmica, a 20 °C) como energía promedio de los neutrones térmicos, alcanzando energías de hasta 0.5 eV. Los neutrones epitérmicos en general van desde 0.5 eV hasta 0.01 MeV, y los neutrones rápidos desde 0.01 MeV en adelante.

2.1.2.2. Sección eficaz

Para cada mecanismo de interacción, existe una probabilidad de ocurrencia que está ligada a la energía del neutrón, y además dependerá del núcleo en particular con el que se da esa interacción. Esta probabilidad se cuantifica mediante una magnitud conocida como sección eficaz y se puede entender como el área efectiva que posee un núcleo particular para interactuar con un neutrón que posee una dada energía. Esta magnitud se mide generalmente en barn (b), siendo esta unidad $b = 10^{-24} \text{ cm}^2$ y las distribuciones de probabilidad en función de las energías de los neutrones pueden ser obtenidas en múltiples librerías de datos nucleares, como la NRDC (por sus siglas en inglés, Network of Nuclear Reaction Data Centres) bajo el auspicio del OIEA (Organismo Internacional de Energía Atómica) [5].

2.2. Detección de neutrones térmicos

Como se mencionó anteriormente, la captura de neutrones puede dar lugar a reacciones nucleares con emisión de partículas cargadas. Este es el caso de mayor interés en la detección de neutrones térmicos, siendo las más deseadas las del tipo (n,α) , (n,p) y $(n,\text{fisión})$. Que pueda darse cada una de estas reacciones dependerá del núcleo sobre el que inciden los neutrones, y por lo tanto también de la sección eficaz del nucleido blanco. Esta es una de las características más relevantes al momento de elegir un material para diseñar el detector. En segundo lugar, se debe considerar la energía de la reacción debido a que maximizará la eficiencia de detección y la discriminación de fotones gamma si los mecanismos de interacción compiten depositando

energía en el material detector. En tercer lugar, es necesario que el nucleido en particular tenga una relación isotópica alta o debe ser tecnológicamente y económicamente posible enriquecer el material si fuese necesario.

Al considerar estas características, resaltan tres nucleidos los cuales son ^{10}B , ^6Li y ^3He . La Ecuación 2.3, la Ecuación 2.2 y la Ecuación 2.1 muestran un esquema de las reacciones que tienen lugar con estos nucleidos y la Figura 2.2 muestra las secciones eficaces de cada reacción en función de la energía de los neutrones incidentes [4] [6].

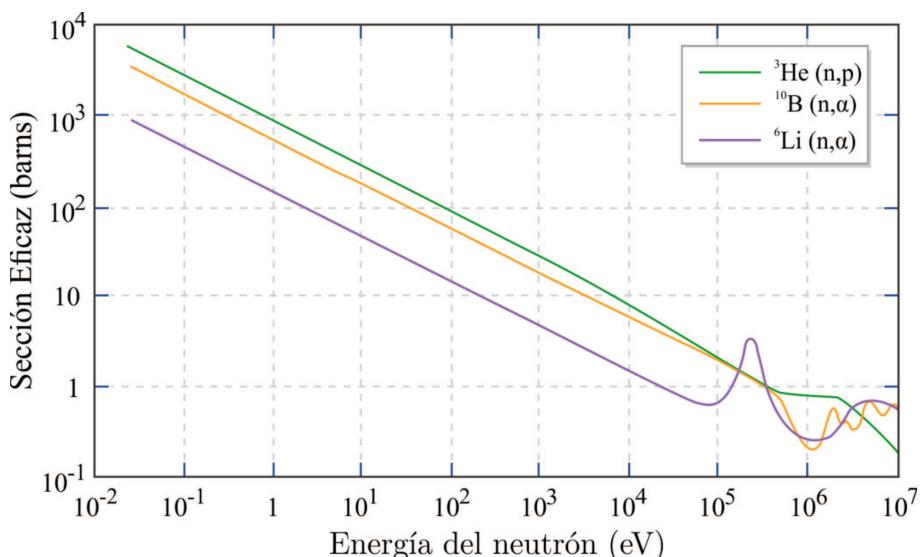
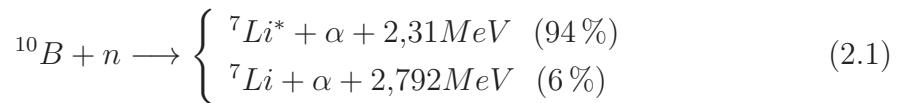


Figura 2.2: Sección Eficaz Total en función de la energía del neutrón incidente para los nucleidos más utilizados en detección de neutrones térmicos.

Estos tres nucleidos mencionados presentan características que los hacen buenos candidatos para la detección de neutrones. Como se mencionó al principio de este Trabajo, el ^3He tuvo un papel preferencial debido a tener la mayor sección eficaz

(5333 ± 7 para neutrones térmicos). Si bien su abundancia es baja respecto a los demás (0.000134 %), la producción artificial de este nucleido por medio de la desintegración del tritio proveniente del desarme nuclear permitía saltar este problema. En detectores, este isótopo se utiliza en forma gaseosa en contadores proporcionales, donde el protón y el tritio producidos en la reacción nuclear ionizan el gas, permitiendo la detección de los neutrones [7].

En el caso del ^{10}B , este puede encontrarse en compuestos gaseosos y sólidos. El compuesto más utilizado es el BF_3 gaseoso, también en contadores proporcionales. Su sección eficaz es apenas menor que el ^3He (3837 ± 9) y su abundancia isotópica es la mayor de los tres nucleidos considerados (19.9 %). Además, la energía de los productos para la reacción (n,α) lo convierte en un detector gaseoso eficiente.

El ^6Li tiene una sección eficaz (941 ± 3) un orden de magnitud menos y una abundancia isotópica media (7.59 %), respecto de los otros nucleidos considerados. Sin embargo, tiene la energía de reacción más alta de los tres nucleidos, casi el doble de la obtenida con el ^{10}B , característica que lo hace un buen candidato para discriminar fotones gamma provenientes del fondo. Además, el Li puede formar sales como el LiF o el LiI , con capacidades centelladoras. Esta última característica brinda mayor versatilidad al diseño de los detectores. Por otro lado, su alta disponibilidad en el mercado local lo colocan como solución viable para el problema de escasez del ^3He . [8].

2.3. Detectores centelladores

Algunos materiales tienen la propiedad de emitir luz cuando sobre ellos incide algún tipo de radiación. A este tipo de materiales se los conoce como centelladores. Este fenómeno radica en la ionización y excitación de los átomos y las moléculas que componen el material centellador, las cuales tienen la capacidad de emitir luz cuando estos vuelven a su estado fundamental.

Además, para que un material pueda ser considerado centellador, la eficiencia de esta conversión de radiación en luz de centelleo debe ser eficiente. Esto implica que la luz no sea reabsorbida en el mismo material y que el tiempo de desexcitación del material sea relativamente corto.

Existen muchas clasificaciones aceptadas en las que se dividen los materiales centelladores. A los fines de este Trabajo se consideran los centelladores sólidos y su clasificación en orgánicos e inorgánicos. Cada uno de estos presenta distintas características que dependerán de la respuesta al tipo de radiación incidente y a la física detrás de los mecanismos de centelleo.

2.3.1. Centelladores Inorgánicos

Los centelladores inorgánicos tienen mayor rendimiento luminoso y linealidad, pero con una menor velocidad de respuesta. En estos materiales, el mecanismo de centelleo depende de los estados energéticos de los átomos dispuestos en la red cristalina. Al interactuar el material con la radiación ionizante, los electrones de la red quedan en un estado excitado, y cuando estos regresan a su estado fundamental lo hacen emitiendo energía por medio de fotones. Para aumentar la probabilidad de que se emita un fotón visible en este proceso es necesario agregar pequeñas cantidades de impurezas denominadas activadores.

2.3.2. Centelladores Orgánicos

En el caso de los centelladores orgánicos, el mecanismo de centelleo se da a nivel molecular, a través de transiciones electrónicas entre niveles energéticos dentro de una misma molécula. Esto implica que las propiedades de centelleo son independientes del estado físico del material, sin embargo, gran cantidad de la energía que se deposita en el material se pierde en forma de calor y sólo una pequeña fracción se transforma en luz de centelleo. Como ventaja, el tiempo de respuesta y decaimiento de la señal que produce el centelleo es mucho menor que en los inorgánicos, lo que permite diferenciar temporalmente dos eventos con gran precisión para altas tasas de conteo. Además, su bajo Z los hace poco sensibles a fotones gamma, permitiendo medir partículas cargadas sin interferencias. Otra ventaja importante está en la posibilidad de disolverlos en plásticos sólidos permitiendo que sean más sencillos de fabricar y mecanizar, disminuyendo su costo de fabricación.

2.4. Fotomultiplicadores de silicio

Acoplado al material centellador es necesario incorporar un fotodetector capaz de transformar la luz producida en una señal eléctrica. Para maximizar la eficiencia de este proceso es necesario que el fotodetector sea sensible a la energía de los fotones emitidos por el centellador. La función de este fotodetector no solo es colectar la señal provista del centellador, sino amplificarla, de manera de obtener una señal procesable a nivel electrónico. Los tubos fotomultiplicadores (PMT por sus siglas en inglés) fueron los más utilizados durante décadas. Sin embargo, con los avances tecnológicos de los últimos años, los semiconductores han ganado su lugar como alternativa a los photocátodos y el uso de tubos fotomultiplicadores. Esta tecnología permitió el desarrollo de nuevos sistemas de detección de fotones basados en fotodiodes de avalancha.

Particularmente, los fotomultiplicadores de silicio (SiPM por sus siglas en inglés) constan de una matriz de celdas independientes del orden de los micrones. Cada celda está formada por un diodo y una resistencia en serie. Cuando un fotón incide en el silicio, este puede ser absorbido y su energía transferida a un electrón. La energía acumulada por el electrón le permite pasar de la banda de valencia a la de conducción, generando un par electrón-hueco. Si se aplica una polarización inversa al diodo se genera un campo eléctrico a través de la zona depleta, causando que los portadores de carga sean acelerados hacia cátodo y ánodo. Si en su recorrido estas cargas ganan la suficiente energía cinética pueden generar pares de cargas secundarias. Así, un solo fotón absorbido puede disparar una cascada de ionizaciones autosostenida, generando un flujo de corriente medible. Este proceso es análogo a lo que ocurre en los tubos Geiger, por lo que se conoce con el mismo nombre. El aumento en la cantidad de portadores de carga es del orden de 10^6 , comparable con un PMT convencional. Para detener la cascada Geiger y poder detectar el siguiente fotón es necesario reducir drásticamente la tensión del diodo. Esto se logra adosando resistencias llamadas de quenching conectadas en serie a cada fotodiodo. De esta manera se detiene rápidamente la avalancha al conducir la carga por la resistencia. Como cada celda es un circuito independiente, cada una con su diodo y resistencia de quenching, la avalancha Geiger se limita a la celda en la que se inició y por lo tanto el resto de las celdas estará lista para detectar nuevos fotones. La suma de las corrientes fotoeléctricas de cada una de las celdas que detectó el evento se combina para formar una salida proporcional al flujo de fotones incidente.

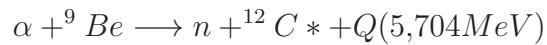
Por sus características los SiPM ofrecen un funcionamiento con bajos voltajes de polarización, del orden de las decenas de voltios, a diferencia de los tubos PMT que requieren ser polarizados por encima de los de kilovoltios. También poseen una alta PDE (Photon Detection Efficiency), hasta el 50 % para longitudes de onda de 420 nm. Además son superiores a los PMT por su insensibilidad a los campos magnéticos y se destacan por una excelente uniformidad de respuesta gracias al uso de microceldas independientes. Todo esto sumado a sus dimensiones compactas y su robustez mecánica propios de los dispositivos de estado sólido [9].

2.5. Fuentes de neutrones

En general, para producir neutrones a partir de nucleidos se utilizan dos métodos, la fisión espontánea de los núcleos o reacciones inducidas por partículas alpha.

La fuente de fisión espontánea más común es el ^{252}Cf . Este nucleido decae mediante emisión alfa con un 97 % de probabilidad mientras que solo en un 3 % de los casos lo hace mediante fisión espontánea, dando lugar a neutrones en el rango rápido sumado a los productos de fisión y emisión gamma.

Por otro lado, en el caso de las fuentes de neutrones inducidas por partículas, el blanco con el mayor rendimiento de neutrones por cada partícula alpha emitida es el berilio. Así, los neutrones son generados mediante la siguiente reacción nuclear:



Del núcleo excitado del ${}^{12}\text{C}^*$, son emitidos 4.44 MeV de fotones gamma simultáneamente. Además, dependiendo del nucleido emisor de la partícula alpha, esta emisión puede estar acompañada por fotones gamma. Por ejemplo, en el caso de una fuente de AmBe se emitirá radiación por el decaimiento del ${}^{241}\text{Am}$, teniendo en este caso la ventaja de que son emisiones de energías bajas (59.5409 keV con 35.9 % de probabilidad).

2.6. Discriminación por forma de pulso (PSD)

La emisión de fotones de centelleo en algunos compuestos centelladores comprende componentes rápidas y lentas. En general, para la mayoría de las aplicaciones, la componente rápida es la más útil. Sin embargo, la emisión retardada puede relacionarse directamente con el tipo de radiación incidente, y por lo tanto se puede utilizar esta característica para discriminarlas. La técnica de Discriminación por Forma de Pulso (PSD por sus siglas en inglés) es ampliamente utilizada para discriminar neutrones rápidos o partículas alpha de fotones gamma cuando se utilizan centelladores orgánicos líquidos. La Figura 2.3 muestra esta diferencia en los pulsos. Por esta razón es común encontrar sistemas electrónicos dedicados que permiten separar los dos tipos de radiación sin que la imposición de un umbral en la altura de los pulsos penalice perdiendo eventos provenientes de neutrones. Debido a que las técnicas de preparación de los compuestos centelladores puede influir en los tiempos de decaimiento de la luz de centelleo, la disponibilidad de esta técnica para otros tipos de centelladores debe estudiarse individualmente para cada compuesto [4].

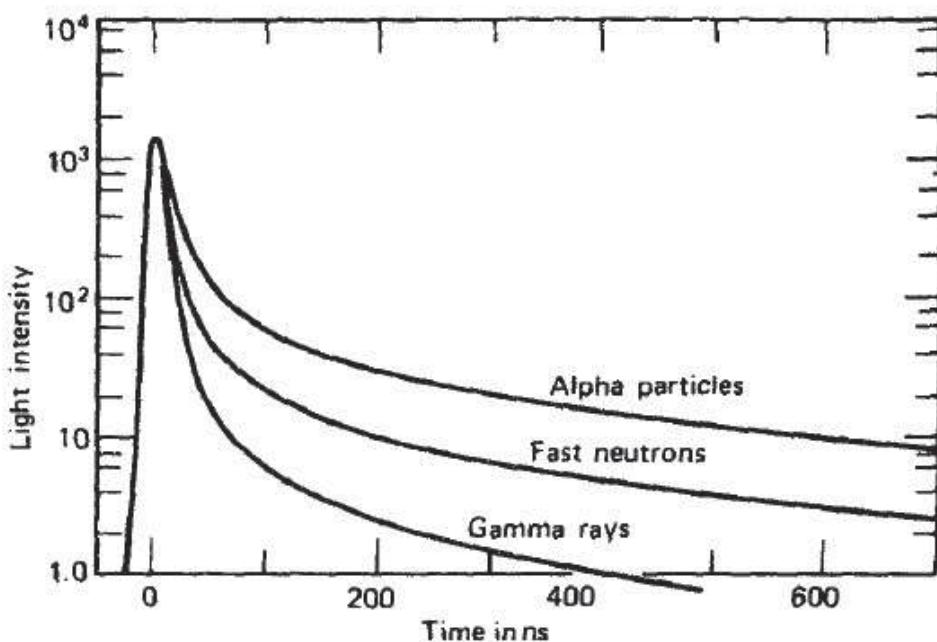


Figura 2.3: Dependencia del tiempo de decaimiento del pulso con la partícula incidente para un centellador orgánico.

Capítulo 3

Diseño y optimización del detector de neutrones

Los detectores desarrollados consistieron en centelladores de película acoplados a fotodetectores. Los centelladores fueron fabricados en colaboración con el grupo del Dr. Horacio Corti. El Mg. Juan Valledor, con la colaboración de Téc. Paula Curotto (CAE, CNEA), fue quien preparó y estudió a nivel fisicoquímico los compuestos centelladores, en el marco de su Tesis de Maestría [2]. Luego, en el marco de este Proyecto Final Integrador, se realizó el acople mecánico y óptico de los centelladores con los fotodetectores, para obtener un detector de neutrones. Los detectores fueron irradiados con neutrones, lo cual permitió comprobar que efectivamente poseían una respuesta a estas partículas. Asimismo, se realizó una intercomparación cualitativa de los distintos compuestos centelladores fabricados, para determinar las formulaciones que optimicen el uso de ${}^6\text{Li}$ y los métodos de preparación. En esta sección se presenta el diseño de los detectores de neutrones y la caracterización comparativa de los detectores de neutrones fabricados.

3.1. Conjunto centellador-SiPM

Los centelladores de película fueron depositados sobre una placa de aluminio de 1.5 mm de espesor, y de una área de $10 \times 10 \text{ mm}^2$. Los compuestos centelladores consistieron en una mezcla de LiF (con ${}^6\text{Li}$ como compuesto convertidor) y un material centellador. Los materiales centelladores se pueden dividir en dos grupos: orgánicos

e inorgánicos.

Dentro del primer grupo se ensayaron dos preparaciones que utilizaron el material EJ-200 (Eljen Technology, EE.UU.). Éste es un polímero intrínsecamente centellador que se basa en una matriz de PVT (poliviniltolueno) en la que se agregan otros compuestos fluorescentes. El plástico utilizado presenta gran transparencia y por lo tanto una mayor longitud de atenuación de los fotones de centelleo (hasta 380 cm), sumado a un tiempo de respuesta rápido (2.5 ns promedio de ancho de pulso a mitad de altura, FWHM) y un espectro de emisión con un máximo en 425 nm [10].

El segundo grupo consistió en tres preparaciones de sulfuro de zinc (ZnS), uno de los centelladores inorgánicos más antiguos que se utiliza. Este centellador es un polvo fluorescente con una eficiencia de centelleo extremadamente alta cuando se activa con plata, comparable con un ioduro de sodio dopado con talio (NaI(Tl)). Históricamente, el ZnS se utiliza para la detección de partículas alpha y otros iones pesados y se caracteriza por tener una sensibilidad muy baja para partículas beta y fotones gamma. En general el polvo se prepara en capas delgadas en espesores no mayores de 25 mg/cm², ya que por encima de este valor comienza a volverse opaco a su propia luminiscencia. Posee tiempos de decaimientos promedio que van desde el orden de los 100 ns hasta los 10 μ s. El compuesto sin dopar presenta una emisión por centelleo en el azul (a 450 nm aproximadamente), el cual se intensifica al agregar plata como activador. En cambio, si se dopa el ZnS con manganeso, el material exhibe una emisión en el rango del naranja (por encima de los 580 nm), dependiendo del porcentaje de activador agregado [4] [11].

En la Tabla 3.1 se muestran las características de cada compuesto ensayado.

Centellador	Enriquecimiento ^{6}Li	Material Centellador		Carga ^{6}LiF [mg]
		Compuesto	Carga [mg]	
#09	90 %	ZnS:Ag (inorgánico)	2.63	1.03
#25	90 %	EJ-200 (orgánico)	12.64	1.61
#26	7.6 % (natural)	EJ-200 (orgánico)	12.64	0.79
#27	90 %	ZnS:Ag (inorgánico)	18.58	1.61
#28	90 %	ZnS:Mn (inorgánico)	18.58	1.61

Tabla 3.1: Composición de los centelladores utilizados en este Trabajo.

El fotodetector utilizado fue un fotomultiplicador de silicio, específicamente un SiPM de marca SensL y modelo MicroFC-60035-SMT, el cual tiene su pico de sensi-

bilidad en el azul. El fotodetector tiene un área activa de $6 \times 6 \text{ mm}^2$ [12]. Dado que los centelladores preparados tienen $10 \times 10 \text{ mm}^2$, a los efectos prácticos, sólo se aprovecha la fracción de este área correspondiente al área activa del SiPM. En los futuros desarrollos, se optimizará la preparación de los centelladores sin sobredimensionar su área. En la Figura 3.1 se muestra un esquema del ensamble fotodetector-centellador. El acople óptico entre el centellador y el SiPM fue realizado interponiendo una cinta transparente. El conjunto fue envuelto en cinta eléctrica negra para mantener la estanqueidad a la luz externa.

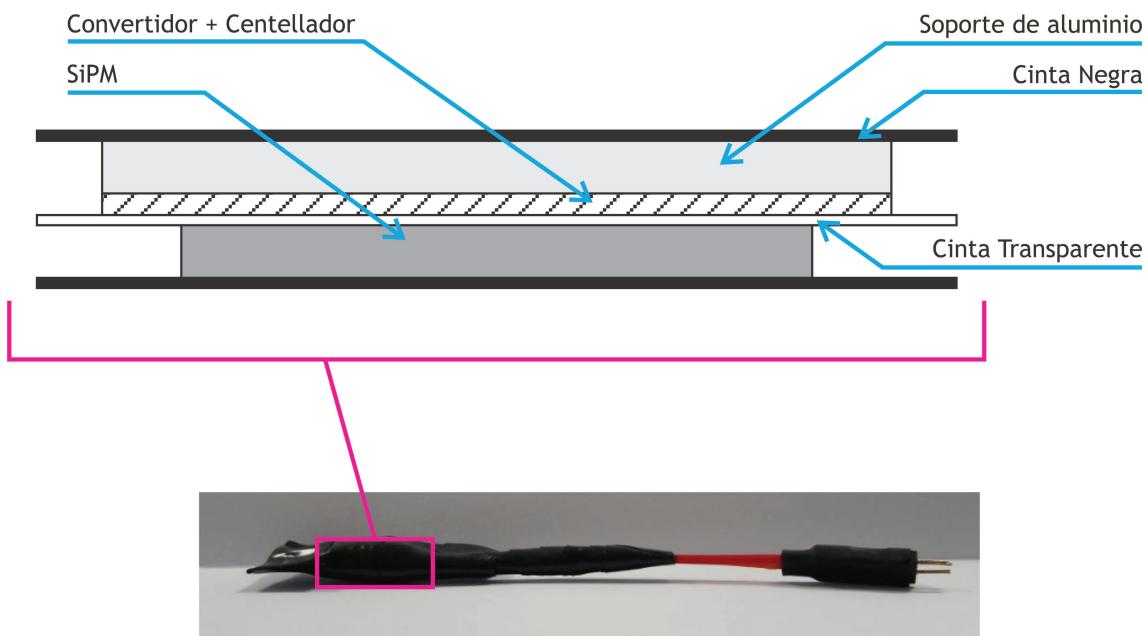


Figura 3.1: Esquema del ensamble fotodetector-centellador.

3.2. Caracterización de los diferentes compuestos centelladores

En esta serie de experimentos, se verificó la respuesta de cada centellador al ser irradiados con neutrones para evaluar su capacidad como detector. Para esto se realizaron ensayos de todos los compuestos centelladores listados en la Tabla 3.1. Las irradiaciones se realizaron en colaboración con la Mg. Silvia Thorp (División de Detectores y Dosimetría del Departamento de Instrumentación y Control, CAE, CNEA).

La adquisición de datos de estos ensayos se realizó utilizando la configuración

que se muestra en la Figura 3.2. Esta consta de una tarjeta QuarkNet DAQ de 4 canales, cada uno con un amplificador y un discriminador con umbral ajustable por software. Esta tarjeta, además, posee un contador con un visor digital que se incrementa cada vez que un pulso proveniente del fotodetector supera el umbral. Para la polarización del SiPM, se utilizó una tarjeta Bias-T de 4 canales. Esta toma 5 V de la tarjeta QuarkNet y genera hasta 36 V, que pueden ser ajustados mediante un potenciómetro, en un rango de 26-30 V. Los SiPMs fueron polarizados con una tensión de 30 V.

Además se utilizó un osciloscopio marca Siglent y modelo SDS 2104X para la captura de formas de onda provenientes del SiPM.

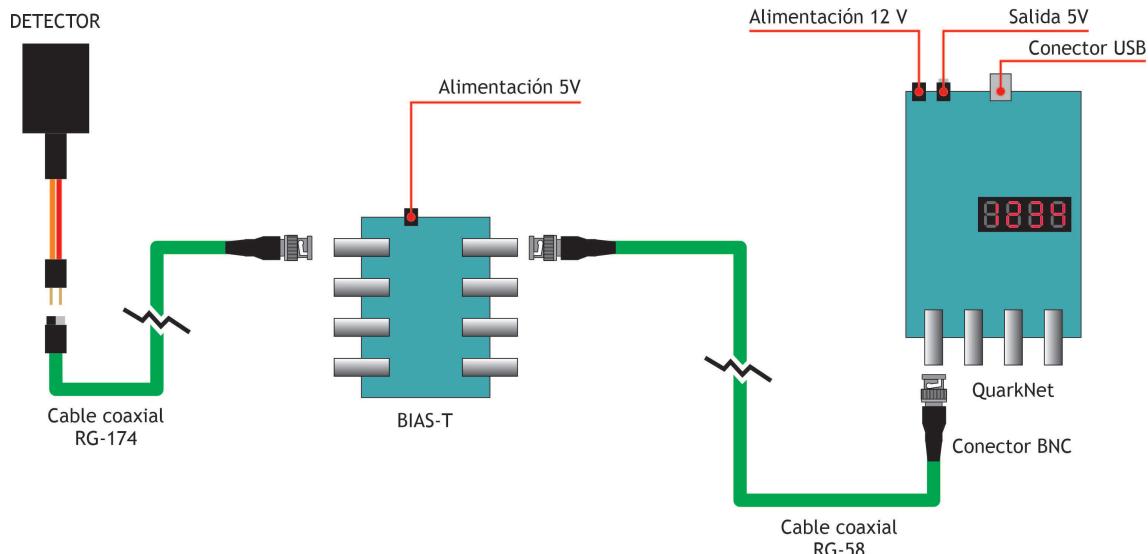


Figura 3.2: Esquema de la configuración 1 utilizada en los experimentos mencionados en este Capítulo.

3.2.1. Respuesta cualitativa a neutrones y gamma

En primer lugar se realizaron mediciones sobre el centellador #09 (inorgánico con ^{6}Li al 90 %). En estas mediciones se varió el umbral del discriminador y se registró la tasa de conteo mediante la placa QuarkNet, para distintos umbrales. Se realizaron tres mediciones:

1. fondo de radiación natural en el edificio del Instituto Dan Beninson (IDB) en

- el CAE,¹
2. en el Laboratorio de Instrumentación y Control (IyC) del CAE con una fuente de neutrones guardada en su blindaje (sin exponer el detector en forma directa),
 3. y en el Laboratorio de Instrumentación y Control (CAE) con el detector expuesto a la fuente de neutrones.

Para los ensayos con neutrones se utilizó una instalación de irradiación, a cargo de la Mg. Silvia Thorp. La misma consta de una fuente de neutrones de $^{241}\text{AmBe}$ de 100 mCi de actividad y un moderador de parafina. En la figura 3.3 puede verse un esquema de la misma. El bloque de parafina posee tres cavidades huecas para posicionar en uno, la fuente, y en los otros dos, los dispositivos a irradiar. La distancia entre las cavidades es de 10 cm, cantidad suficiente de parafina para generar un flujo de neutrones térmicos visible para el detector.

Por cuestiones de protección radiológica, el bloque de parafina se encuentra alojado en una caja de madera cuyas paredes laterales están recubiertas de 6 cm de parafina borada. Debido a la alta sección eficaz de captura de neutrones térmicos del ^{10}B este recubrimiento actuó como blindaje efectivo de la radiación emitida por la fuente.

Dado que en este laboratorio se encuentran guardadas varias fuentes de neutrones se espera que el fondo de radiación esté por encima de los valores registrados en la medición de fondo ambiental.

¹El edificio del IDB se encuentra en uno de los extremos del Centro Atómico y no posee material radiactivo de uso habitual por lo que se considera para este Trabajo que los resultados de las mediciones hechas en el mismo corresponden a radiación natural.

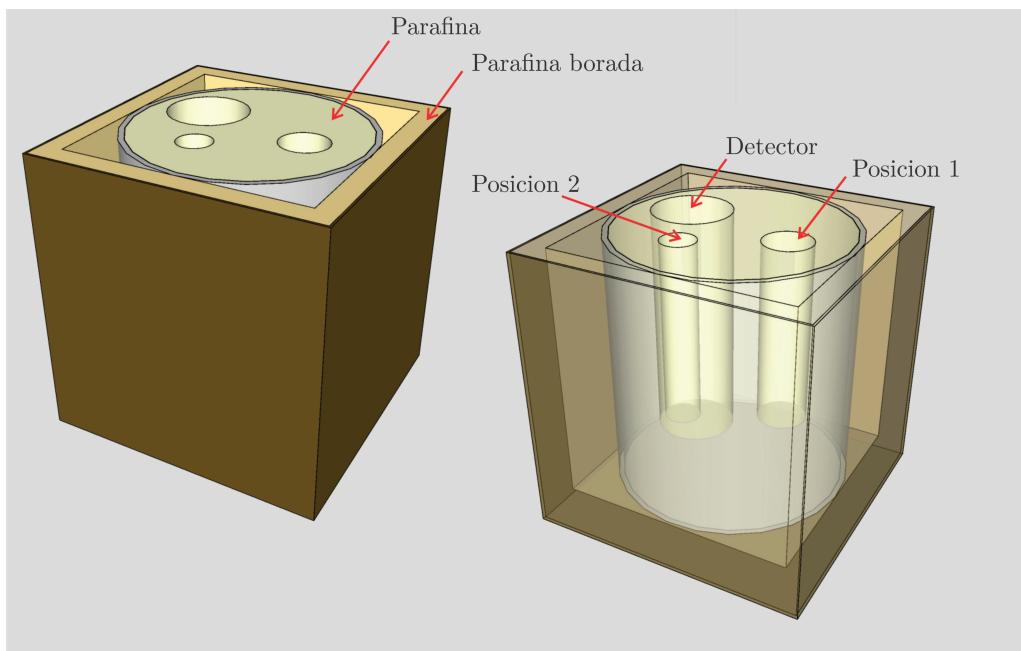


Figura 3.3: Esquema del bloque moderador y blindaje utilizado en los experimentos mencionados en este Capítulo.

Se determinó el flujo térmico en la posición de irradiación 1 del bloque moderador obteniéndose un flujo igual a 226 ± 34 nv ($\text{nv} = \text{neutrones cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Esta medición se realizó mediante una cámara de fisión marca Centronic y modelo FC165, con una sensibilidad reportada de 0.12 cps/nv y una incertezza relativa asociada al instrumento del 15 %.

En la Figura 3.4 se muestran los espectros integrales de altura de pulsos para tres condiciones de medición, como se mencionó anteriormente: fondo de radiación natural, fondo con fuente de neutrones guardada en blindaje y conteo con fuente en posición de irradiación.

En la medición de fondo de radiación natural medida en el IDB, se observa que la tasa tiende a hacerse nula para valores de umbral cercanos a los 50 mV. Como esta medición se realizó en ausencia de cualquier fuente de neutrones se espera que los valores registrados en cada medición correspondan mayormente a fondo gamma, una pequeña fracción a neutrones de fondo y otra a cuentas oscuras del SiPM (por la generación espontánea de portadores de carga en la zona depleta del semiconductor, ya sea por agitación térmica o por efecto túnel) o a ruido electrónico.

En la medición de fondo en el laboratorio de IyC, se observó que la tasa no tiende

a hacerse nula, aún para valores de umbral de voltaje altos, al contrario se observa que la tasa se estabiliza y decrece lentamente. Esto es esperable ya que algunos neutrones logran escapar de los blindajes.

La tercera medición que se muestra en el gráfico, realizada con la fuente de neutrones en la posición 1, presenta las mayores tasas, por encima de las 1000 cpm para umbrales altos. Con esto se obtuvo una primera evidencia de que el conjunto centellador-SiPM genera una respuesta al flujo de neutrones.

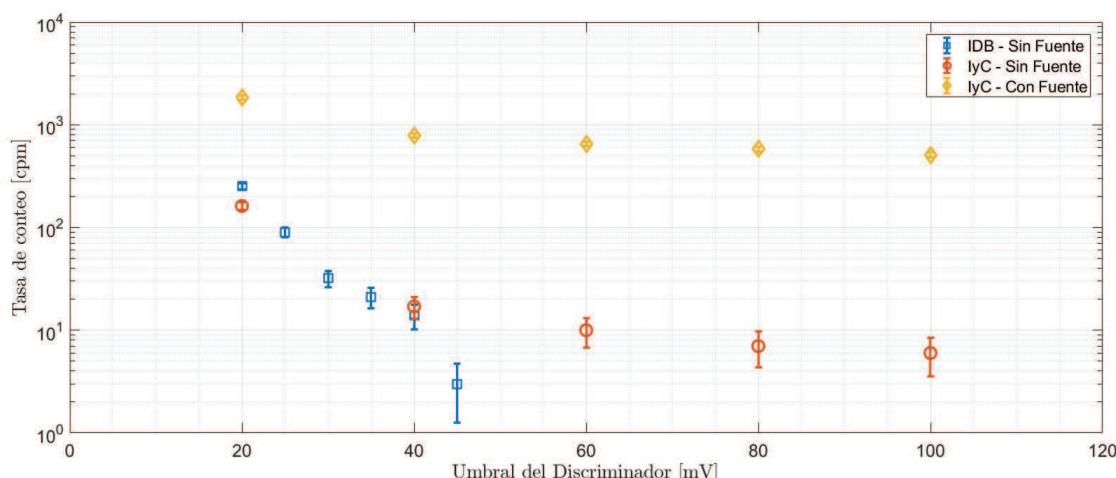


Figura 3.4: Variación de la tasa de conteo en función del umbral del discriminador para tres mediciones con el detector #9.

Con la medición de radiación de fondo se estableció que utilizando un umbral por encima de los 50 mV se puede descartar la contribución de radiación gamma proveniente del fondo de radiación natural. De esta manera, colocando un umbral más alto se aumenta la probabilidad de que todos los eventos correspondan únicamente a neutrones. Dado esto se decidió realizar los siguientes ensayos utilizando un valor de umbral conservativo, para comparar los distintos compuestos de 200 mV.

3.2.2. Intercomparación cualitativa de los distintos compuestos centelladores

Para realizar la intercomparación se procedió a realizar mediciones con los distintos centelladores. Se acopló por vez cada compuesto centellador al mismo SiPM

y se realizaron mediciones de la tasa de cuentas para cada configuración, utilizando un umbral de 200 mV.

Para comparar la sensibilidad a neutrones de los detectores centelladores ensayados, se comparó la tasa de eventos obtenida con cada centellador. El gráfico de la Figura 3.5 muestra la respuesta de cada detector. Dado que el detector #28 (inorgánico, dopado con manganeso, con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) mostró un conteo dos órdenes de magnitud menor respecto de los demás compuestos no se lo consideró en esta comparación. Se observa que el mejor rendimiento se obtuvo con el detector #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta). Este gráfico también permite evaluar como varía la tasa de conteo en función de la carga de ${}^6\text{Li}$. Se observa que en los detectores provistos con el centellador orgánico, una mayor carga se traduce en una mayor sensibilidad, sin embargo esto no ocurre en principio con los centelladores inorgánicos, aunque debe mencionarse que estos últimos han sido fabricados por diferentes métodos.

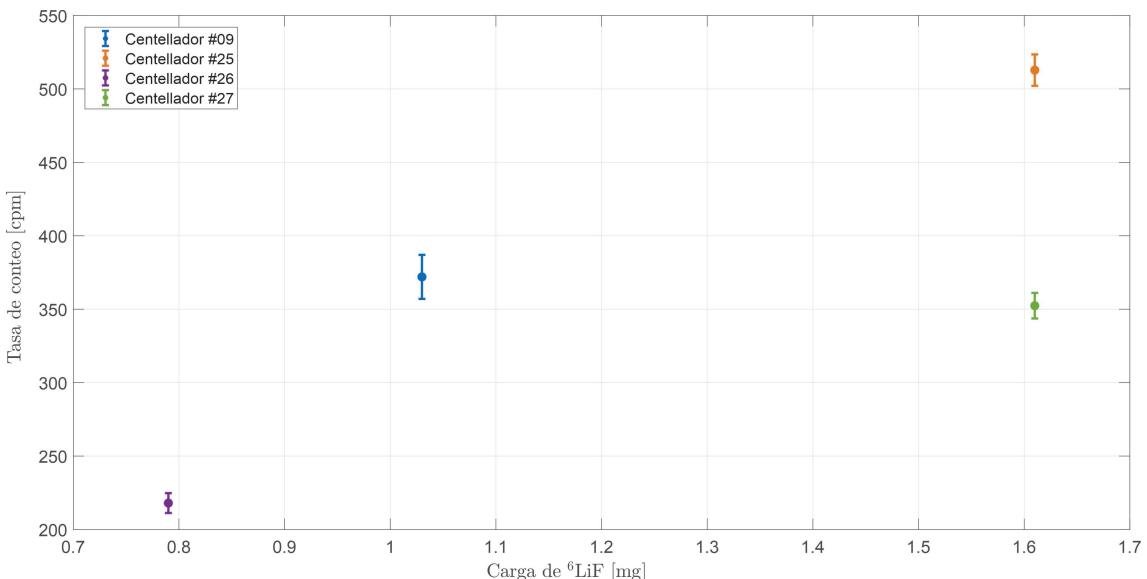


Figura 3.5: Variación de la tasa de conteo de los detectores ensayados en función de la carga de ${}^6\text{LiF}$. Se muestran los resultados de los centelladores #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con aerógrafo), #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta), #26 (orgánico con Li natural, preparado con pipeta) y #27 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta).

También se comparó la tasa de conteo de cada detector normalizado por la cantidad de ${}^6\text{Li}$ presente en cada centellador. Los resultados se muestran en el gráfico de la Figura 3.6 en el cual se observa que existe un mejor aprovechamiento de la

carga de ${}^6\text{Li}$ por parte del detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con aerógrafo). Esta tendencia no se repite en el centellador #27 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta).

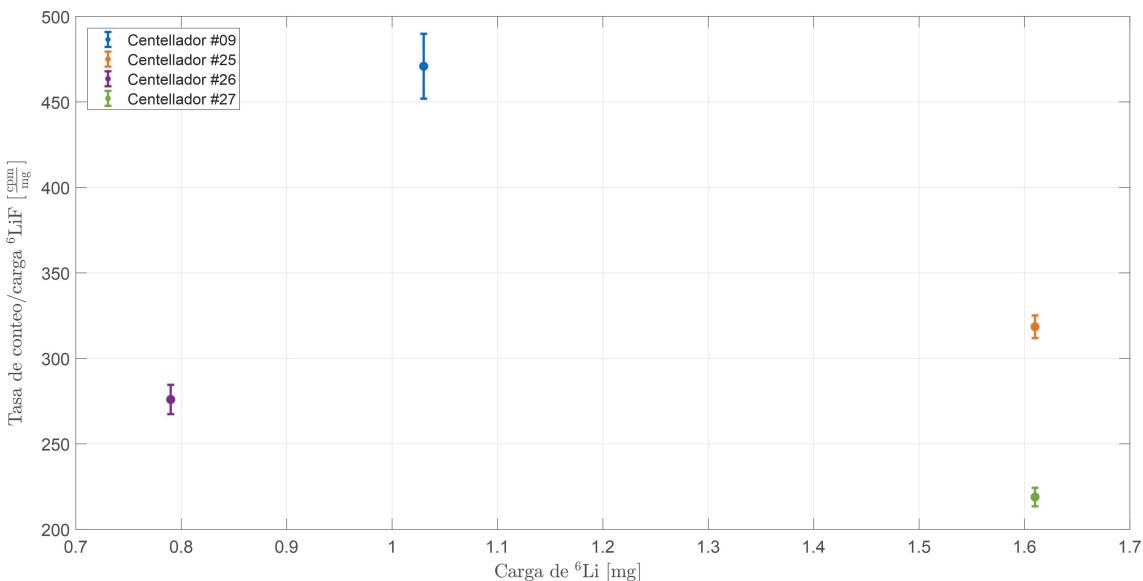


Figura 3.6: Aprovechamiento de la carga de ${}^6\text{LiF}$ en términos de la tasa de conteo obtenida por el detector. Se muestran los resultados de los centelladores #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con aerógrafo), #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta), #26 (orgánico con Li natural, preparado con pipeta) y #27 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %, preparado con pipeta).

En estas comparaciones se esperaba observar que hubiese un aumento en la tasa con el aumento de la carga de ${}^6\text{Li}$ tanto en los compuestos orgánicos como inorgánicos. Sin embargo, aunque se produjese más reacciones nucleares en el compuesto centellador esto no implica que todos los fotones producidos por el centelleo lleguen al SiPM. Esto puede explicarse considerando dos cuestiones, en primer lugar el agregado de más átomos de ${}^6\text{Li}$ cambia la opacidad del centellador, disminuyendo su capacidad para transmitir los fotones hacia el SiPM. En segundo lugar hay que considerar que el centellador #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) fue preparado con una técnica diferente al resto. El primero fue preparado añadiendo finas capas con aerógrafo, con el tiempo de secado adecuado entre capas. El resto fue preparado utilizando una pipeta en una sola aplicación.

La Figura 3.7 muestra los pulsos obtenidos para dos de los centelladores estudiados. En los centelladores orgánicos (representado por el detector #26) el pulso presenta una duración del orden de $1 \mu\text{s}$, con un tiempo de respuesta rápido. Al

contrario, el centellador inorgánico representado por el detector #09 presenta un pulso de larga duración, mayor a $10 \mu\text{s}$. Este pulso tiene un tiempo de respuesta mayor, con múltiples desexcitaciones retardadas.

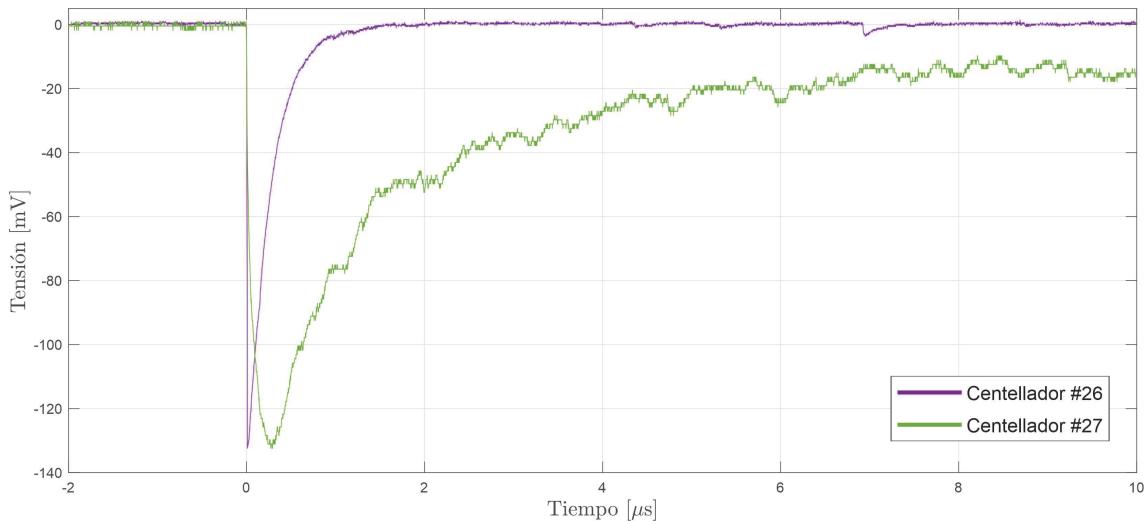


Figura 3.7: Pulsos característicos de los centelladores orgánicos (representado por el compuesto #26) e inorgánicos (representado por el compuesto #27) ensayados en este Trabajo.

Capítulo 4

Caracterización de la respuesta a campos neutrónicos y gamma

En este Capítulo se describen los estudios realizados con los detectores para caracterizar la respuesta de los mismos a campos neutrónicos y gamma. Como resultado de la intercomparación cualitativa desarrollada en el Capítulo anterior, se seleccionaron dos centelladores por sus mejores características. Estos fueron el centellador orgánico #25 (orgánico con ^{6}Li al 90 %, preparado con pipeta) y el inorgánico #09 (inorgánico con ^{6}Li al 90 %, preparado con aerógrafo). El objetivo de esta etapa fue estudiar la discriminación entre neutrones y fotones gamma por la altura y la forma del pulso, determinar el rechazo absoluto a fotones gamma y medir la sensibilidad a neutrones térmicos de los detectores.

Los estudios realizados se basaron en el análisis de los pulsos provenientes del SiPM. Para todos ellos se utilizó el sistema de adquisición de datos que se describe en la siguiente sección.

4.1. Sistema de adquisición de datos

Para la captura y adquisición de los pulsos se utilizó la configuración que se muestra en el esquema de la Figura 4.1. En esta configuración, el SiPM se conecta a un amplificador, cuya salida es registrada por un osciloscopio digital. El circuito amplificador fue desarrollado en colaboración con el Ing. Juan Alarcón (IyC, CNEA, CAE). Éste amplifica el pulso mediante el chip OPA656 con un rango dinámico de

5 V. El circuito fue alimentado con una fuente de laboratorio de ± 9 V marca Hewlett Packard y modelo E3620A. La polarización del SiPM se realizó mediante una fuente de alimentación DC programable marca Siglent y modelo SPD3303X la cual permite ajustar la tensión del SiPM en un rango de 0-32 V y hasta 3.2 A de corriente.

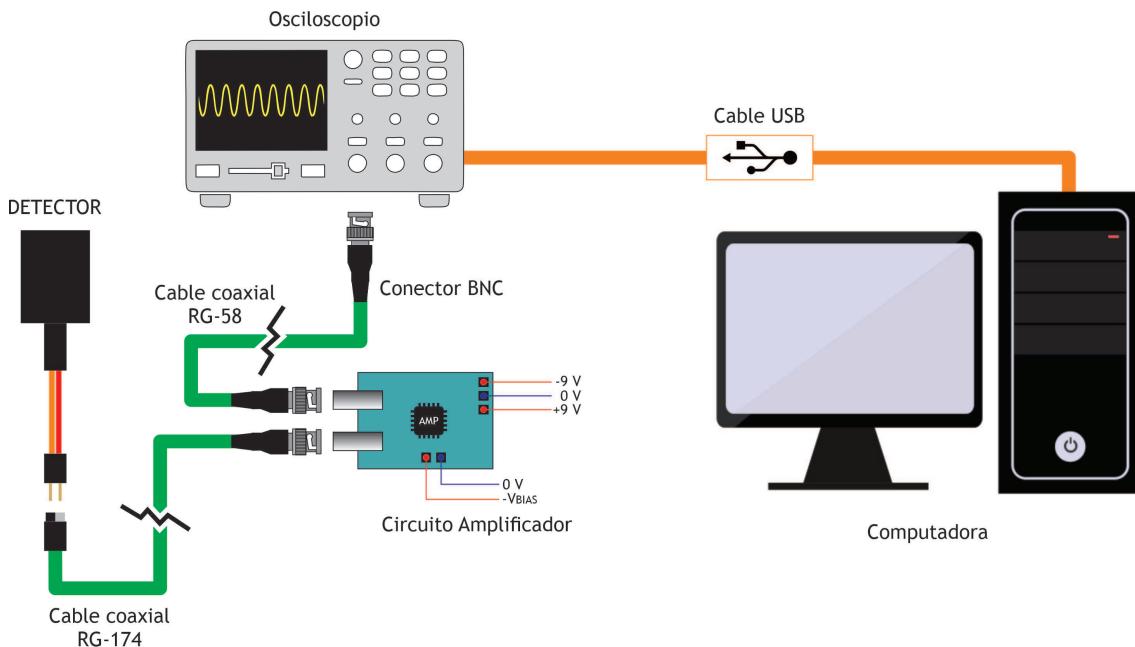


Figura 4.1: Esquema de la configuración 2 utilizada en los experimentos mencionados en este Capítulo.

Se utilizó un osciloscopio marca Siglent y modelo SDS 2104X para la captura de las formas de onda provenientes del amplificador. Éste posee una tasa de muestreo de 2 GS/s (GigaSamples per second) y una capacidad de almacenamiento de hasta 8×10^4 capturas con una tasa máxima de 5×10^5 capturas por segundo [13]. En todos los experimentos se fijó el umbral de disparo del osciloscopio en 300 mV, es decir, sólo se registraron formas de onda cuya amplitud superara este nivel. Cabe destacar que este umbral no puede ser comparado en forma directa en con el umbral fijado en la Capítulo 3, dado que en esta configuración se utilizó un amplificador distinto. Se programó el osciloscopio para capturar y digitalizar 2000 formas de onda, mediante el modo de adquisición rápido en la memoria del instrumento. Cada captura consistió en un grupo de 5600 puntos (valores de tensión), abarcando una ventana temporal de 2800 ns (200 ns por división, con 14 divisiones). En cuanto a la tensión se estableció una escala vertical de 500 mV por división, lo cual permitió capturar en pantalla desde -0.5 V hasta 4.5 V (10 divisiones), teniendo en cuenta

que la amplificación máxima era del orden de los 5 V.

4.2. Análisis de los datos adquiridos

Una vez que el osciloscopio captura la cantidad de formas de onda totales se adquieren los datos con la PC y se guardan en un archivo de texto plano para su posterior procesamiento y análisis. Este archivo incluye un encabezado con los parámetros relevantes de la medición y un cuerpo el cual consiste en la hora de llegada del evento y los valores de tensión por cada pulso. Esta adquisición se realizó utilizando el lenguaje Octave mediante el standard de comunicación NI-VISA (de National Instruments) [14]. Para el procesamiento y análisis de los datos se utilizaron algoritmos desarrollados en este lenguaje en el marco de este Trabajo.

De este procesamiento de los datos se trabajó principalmente con la altura relativa de los pulsos, medidos como la diferencia entre la línea de base (promediando el primer 20 % de los valores de la forma de onda) y la altura absoluta del pulso, tal como se muestra en la Figura 4.2. Con los valores de las alturas de los pulsos se realizaron histogramas de los datos, normalizados por la duración de la medición y por el ancho del bineado en mV.

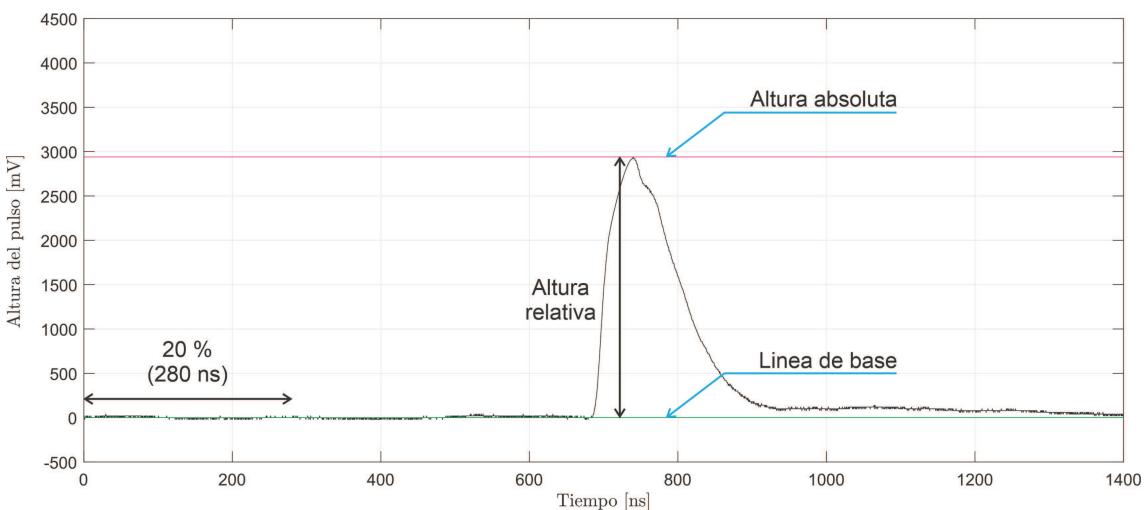


Figura 4.2: Análisis de la altura relativa de un pulso típico.

Además se trabajó con el área de los pulsos, la cual es proporcional a la carga

depositada por la radiación incidente en el centellador. La técnica de discriminación por forma de pulso requiere obtener un cociente entre la carga retardada (o carga de la cola del pulso, Q_{cola}) y la carga total (Q_{total}) depositada en el centellador, el cual se nombra en este Trabajo como ‘cociente PSD’. Para esto debe seleccionarse un tiempo arbitrario que permita calcular este cociente. Este valor puede optimizarse utilizando la denominada Figura de Merito, un parámetro que evalúa la separación entre dos poblaciones gaussianas en base a sus FWHM. En este Trabajo se seleccionó un tiempo de 200 ns a partir del valor máximo del pulso como inicio de la cola de este. La Figura 4.3 muestra la aplicación de esta técnica para un pulso de ejemplo.

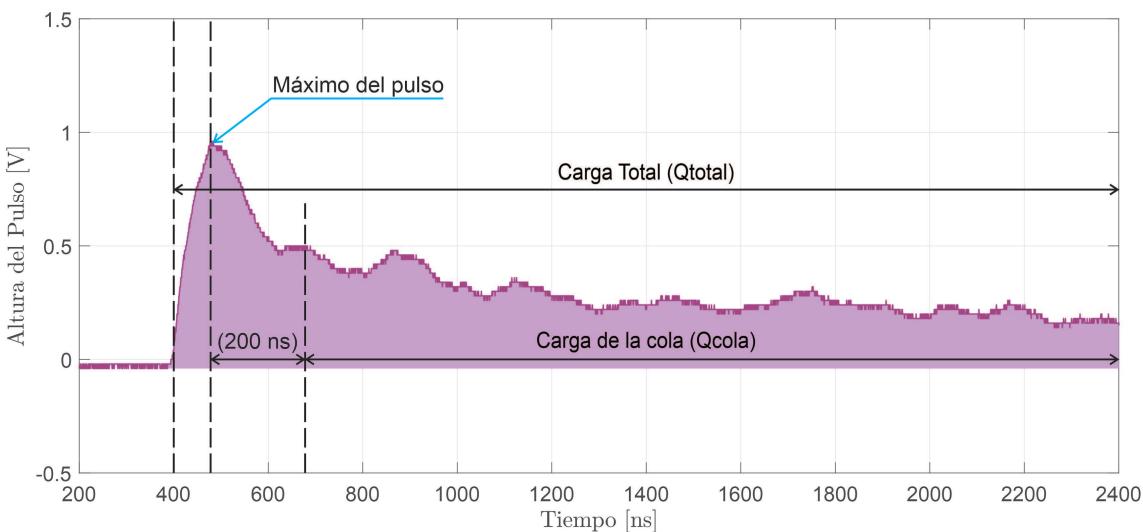


Figura 4.3: Elección del comienzo de la cola del pulso para el cálculo del cociente PSD.

4.3. Estudio de la discriminación por forma y altura de pulso

En este experimento se consideraron dos características de los pulsos con el objetivo de estudiar la discriminación entre neutrones y fotones gamma: su altura y su forma. Para ello, se llevaron a cabo irradiaciones con una fuente gamma de ^{60}Co y una de neutrones de $^{241}\text{AmBe}$. Estas se realizaron en una instalación de irradiación acondicionada para trabajar con fuentes gamma, a cargo de la Mg. Silvia Thorp.

Para las irradiaciones con neutrones se utilizó la misma fuente de $^{241}\text{AmBe}$ mencionada en los experimentos del Capítulo 3. Esta instalación no cuenta con un blo-

que moderador para neutrones de las mismas características que el utilizado en los experimentos mencionados en el Capítulo 3, en cambio la moderación se realizó interponiendo un pequeño bloque de parafina como se muestra en la Figura 4.4. Debido a esto no fue posible realizar una medición de flujo calibrada como en el caso anterior, por lo cual se realizó una estimación comparando la respuesta del detector #25 (orgánico con ^{6}Li al 90 %) en las dos configuraciones mencionadas, obteniendo un valor de flujo aproximado de 407 ± 61 nv. Es necesario aclarar que el resultado obtenido puede no corresponderse con la cantidad de neutrones térmicos que llegan al detector. Esto es debido a que no se conoce si hay diferencias en la contribución de fotones gamma entre ambas mediciones. Por esta razón este valor de flujo medido se utilizará en las siguientes secciones teniendo en cuenta esta condición.



Figura 4.4: Bloque de parafina utilizado para moderar los neutrones provenientes de la fuente de $^{241}\text{AmBe}$ en los experimentos mencionados en este Capítulo.

Para las irradiaciones con fuente gamma se utilizó una fuente sellada de ^{60}Co de $9.93 \mu\text{Ci}$ de actividad, calibrada al 14/11/2014. Este nucleido posee 2 emisiones gamma de alta probabilidad de ocurrencia, 1332 (99.9826 %) y 1173 keV (99.85 %). El detector se fijó con cinta de papel a una superficie rígida de manera que quedase inmovilizado y se colocó la fuente apoyada sobre el mismo. La tasa de dosis entregada por la fuente se estimó utilizando un dosímetro marca Automess y modelo 6150 AD 6/H el cual esta provisto de un tubo Geiger-Muller para medición de rayos-X,

radiación gamma, alpha y beta. Se obtuvo una tasa de dosis de $230.0 \pm 6.0 \mu\text{Sv/h}$

En la Figura 4.5 se muestran los espectros diferenciales de altura de pulsos obtenidos con las dos fuentes utilizando el detector #25 (orgánico con ^6Li al 90 %). Se observa que los pulsos provenientes de fotones gamma están distribuidos en un rango amplio de alturas respecto de los que provienen de neutrones. De esta manera, seleccionar un umbral de altura de pulso que separe ambos tipos de radiación no resulta eficiente en términos de optimizar la sensibilidad a neutrones térmicos del detector.

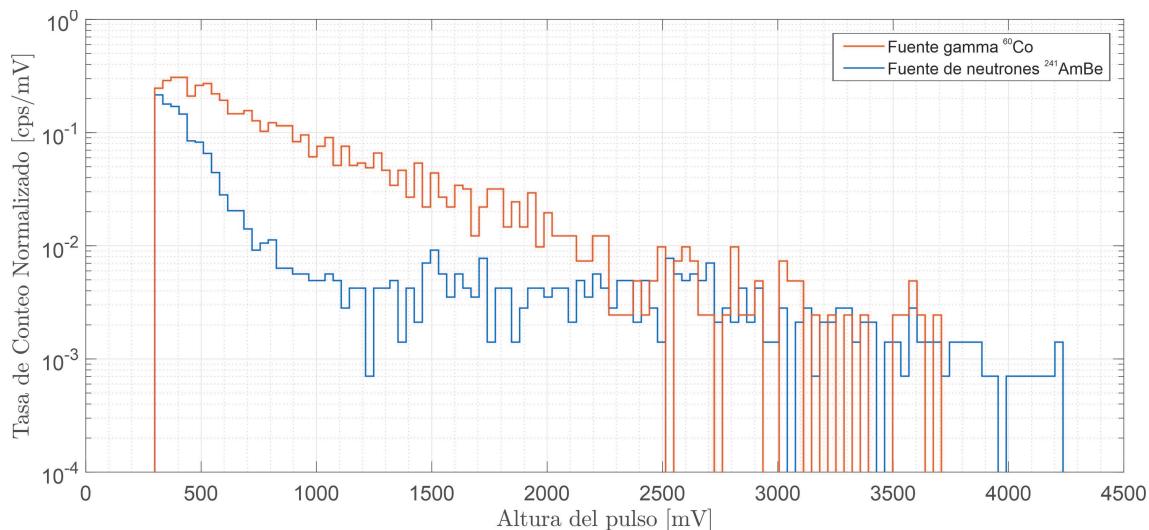


Figura 4.5: Espectros diferenciales de altura de pulsos normalizado obtenidos con el detector #25 (orgánico con ^6Li al 90 %).

En el caso del detector #09 (inorgánico con ^6Li al 90 %), en los espectros diferenciales de altura de pulsos mostrados en la Figura 4.6 se observa que la distribución de fotones gamma está reducida a un rango de alturas más acotado. Esto permite discriminar ambos tipos de radiación con mayor eficiencia sin una pérdida sustancial de sensibilidad del detector.

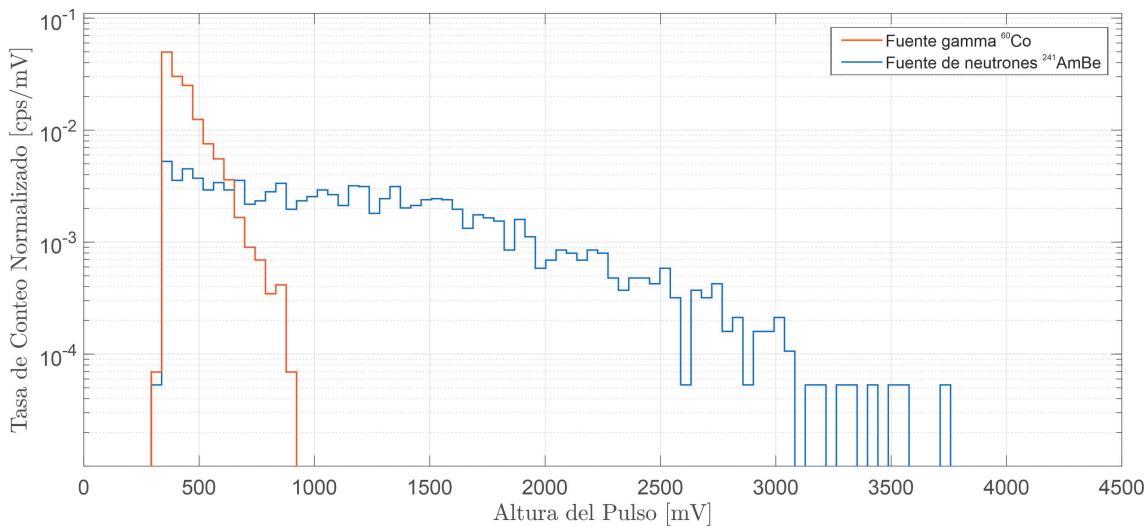


Figura 4.6: Espectros diferenciales de altura de pulsos normalizado obtenidos con el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %).

En la Figura 4.7 se muestran dos pulsos característicos obtenidos con el detector #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %). No se observan diferencias significativas entre ambos pulsos que permitan realizar una separación entre ambos tipos de radiación, neutrones o fotones gamma. El gráfico de la Figura 4.8 confirma que los pulsos provenientes de ambas fuentes se distribuyen en una sola población con valores de cociente PSD por debajo de 0.5, impidiendo cualquier tipo de separación.

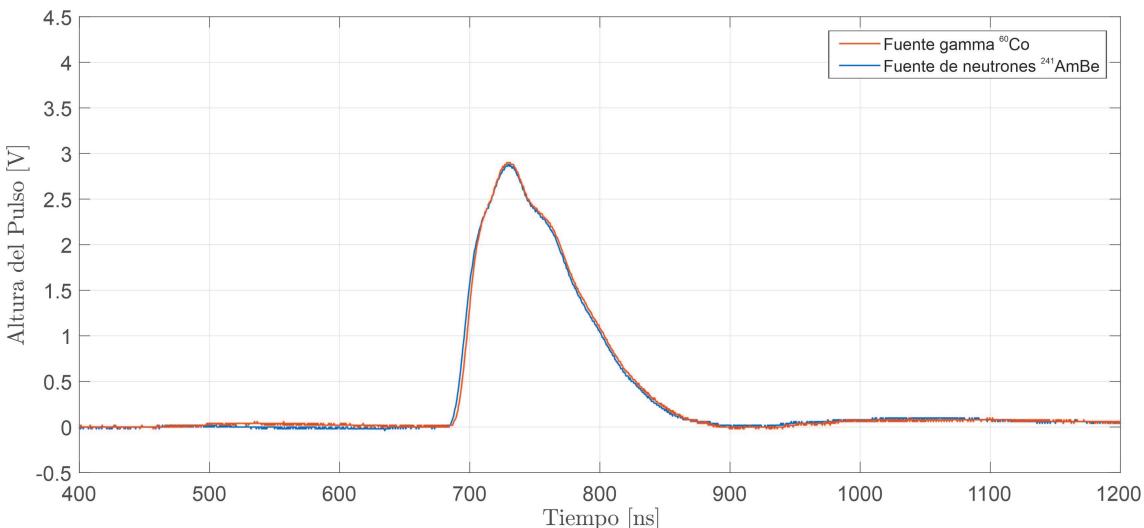


Figura 4.7: Pulsos típicos obtenidos con el detector #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) utilizando la fuente de neutrones y la fuente de fotones gamma.

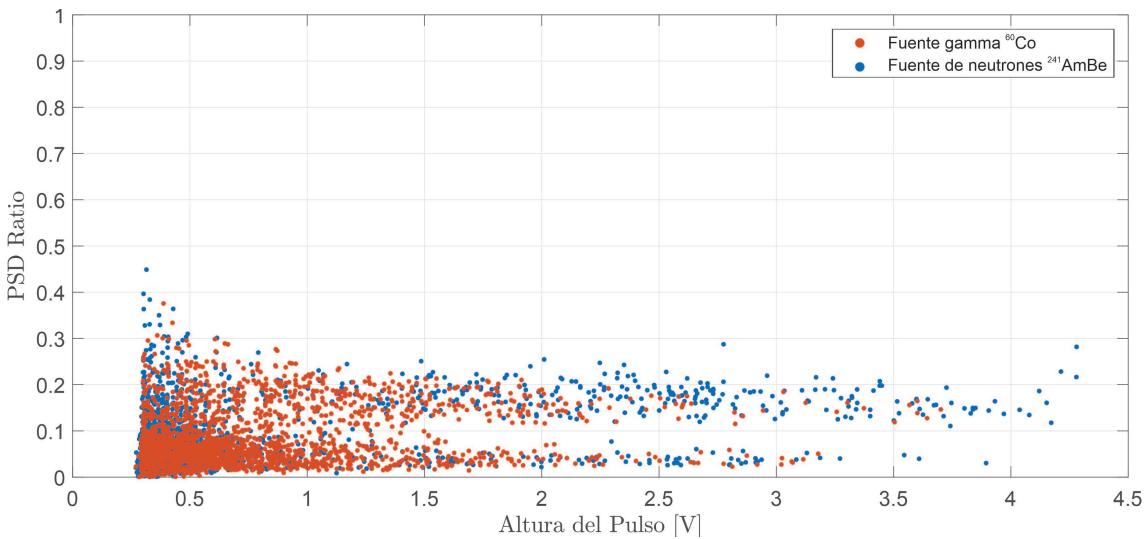


Figura 4.8: Análisis del cociente PSD en función de la altura de los pulsos para el detector #25 (orgánico con ^6Li al 90 %). Se observa que las poblaciones de neutrones y fotones gamma se solapan.

Al considerar el centellador #09 (inorgánico con ^6Li al 90 %) se observa que los pulsos presentan diferencias significativas que permiten diferenciarlos a simple vista, como se muestra en la Figura 4.9. El pulso proveniente de la fuente de ^{60}Co tiene un tiempo de subida de 40 ns y un tiempo de decaimiento de 150 ns. Por otro lado, el pulso proveniente de la fuente de $^{241}\text{AmBe}$ presenta un tiempo de subida ligeramente mayor, de 80 ns, y un tiempo de decaimiento muy superior, por encima de los $2 \mu\text{s}$. Estas diferencias presentadas permiten realizar una separación entre ambos tipos de radiación más efectiva que si solamente se considera la altura de los pulsos.

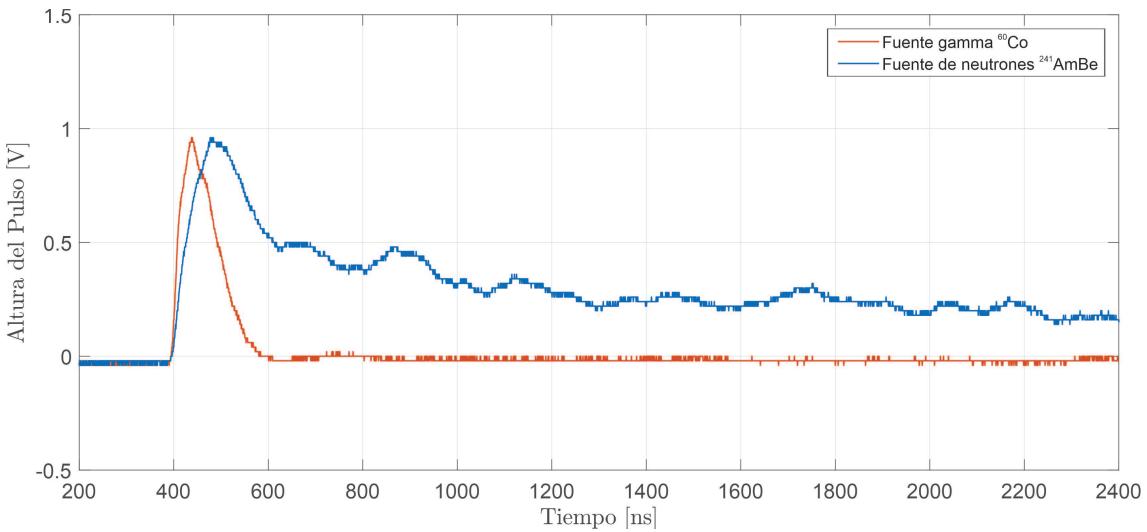


Figura 4.9: Pulsos típicos obtenidos con el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) utilizando la fuente de neutrones y la fuente de fotones gamma.

Entonces, al realizar un análisis de la forma de los pulsos con la técnica de la relación entre las cargas (cociente PSD) mostrado en la Figura 4.10 se observan dos poblaciones marcadamente diferenciadas. De esta manera, es posible establecer un umbral en base al cociente PSD a partir del cual la contribución de fotones gamma al conteo de neutrones sea despreciable.

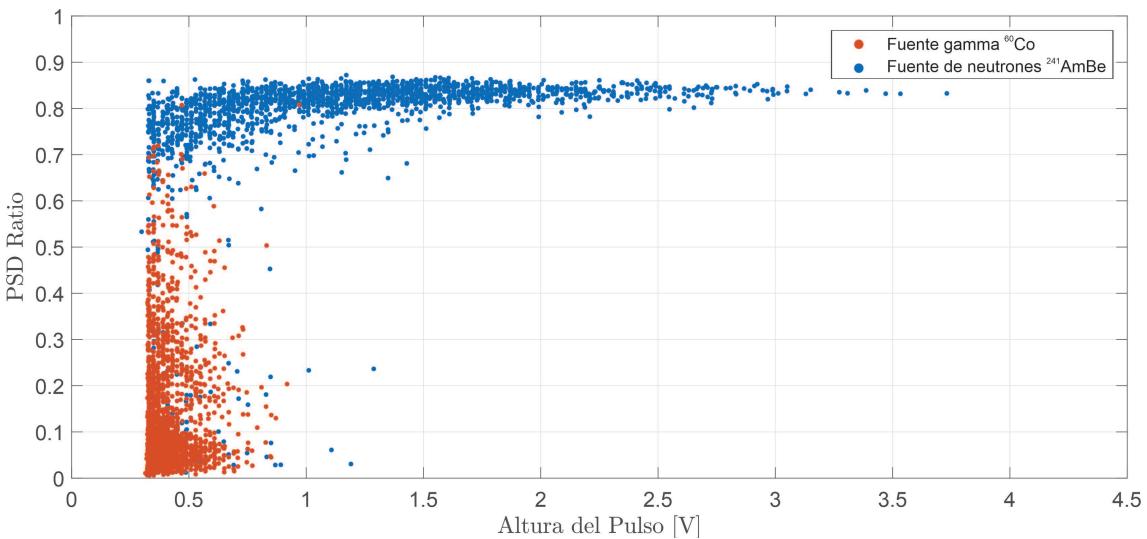


Figura 4.10: Análisis del cociente PSD en función de la altura de los pulsos para el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %). Se observa la separación de las dos poblaciones atribuidas a neutrones y fotones gamma.

Al considerar la altura de los pulsos, la selección de un umbral de discriminación es relativamente trivial observando los espectros presentados. Sin embargo, es necesario considerar que solo se está observando la respuesta a una fuente particular cuyas emisiones de fotones gamma se da en dos energías discretas. En campos mixtos de radiación, debe estudiarse adecuadamente la contribución de fotones gamma de múltiples energías de manera de establecer un umbral adecuado que permita realizar la discriminación sin penalizar la eficiencia del detector. En el caso de la discriminación por forma de pulso, se observa que la separación es más eficiente, permitiendo maximizar la sensibilidad del detector. Para el estudio de la forma de los pulsos se seleccionaron arbitrariamente los valores de inicio de la cola del mismo. A futuro es necesario optimizar este método con el fin de buscar la mejor separación entre las dos poblaciones.

4.4. Determinación del rechazo absoluto a fotones gamma

En este experimento se buscó determinar la capacidad de los detectores para rechazar fotones gamma en campos de mayor intensidad, con valores de flujo más cercanos a los que se espera encontrar en una instalación de haces de neutrones. Para lograr esto se irradiaron los mismos con una fuente de ^{60}Co de la cual se conocía la tasa de dosis que entrega con su incertezza asociada.

Los experimentos se realizaron en una instalación de irradiación de fotones gamma perteneciente al Departamento de Dosimetría de Radiaciones Ionizantes (CAE, CNEA) en colaboración con el Téc. Fabián Bedoya. La instalación cuenta con un irradiador marca Hopewell Designs y modelo G10-2-2600 (Figura 4.11) provisto de dos fuentes emisoras gamma, una de ^{137}Cs de 370 GBq y otra de ^{60}Co de 37 GBq, equipado con dos colimadores y tres atenuadores de plomo de diferentes espesores. Este dispositivo se encuentra dentro de una sala blindada con sistemas de enclavamiento y es monitoreado mediante una cámara de video remoto.



Figura 4.11: Dispositivo de irradiación Hopewell del Departamento de Dosimetría de Radiaciones Ionizantes (CAE, CNEA).

Además, se cuenta con un banco motorizado controlado remotamente que permite el desplazamiento del dispositivo a irradiar a distintas distancias desde la fuente. Se ubicó al detector en este banco con la ayuda de dos láseres: uno longitudinal que indica el centro del haz y otro transversal que permite elegir la distancia desde la fuente, tal como muestra la Figura 4.12. Para obtener la máxima tasa de dosis posible se eligió la menor distancia calibrada, la cual era de 0.8 m y no se utilizó atenuador. Esta tasa fue de 6.18 ± 0.07 mSv/h.

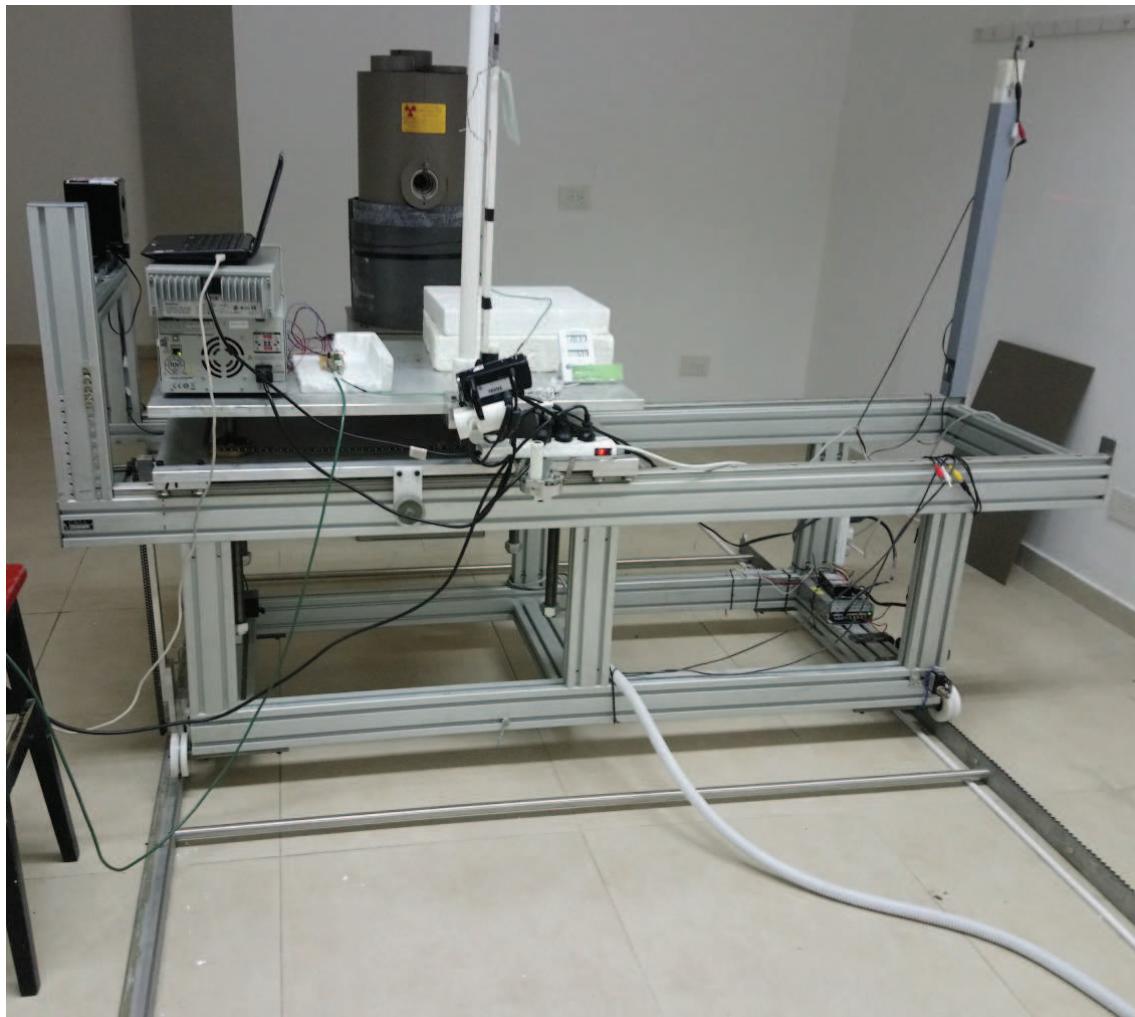


Figura 4.12: Banco motorizado utilizado para desplazar el dispositivo a irradiar a distintas distancias de la fuente.

Se colocaron los detectores (uno por vez) adheridos a una varilla de madera que se encastró sobre un soporte de tergopol, quedando de esta manera ubicado frente al irradiador. Luego, con ayuda de las guías láser se posicionó al detector con precisión, de manera que el punto de dosis calibrado correspondiera con el centro geométrico del centellador, como se muestra en la Figura 4.13.

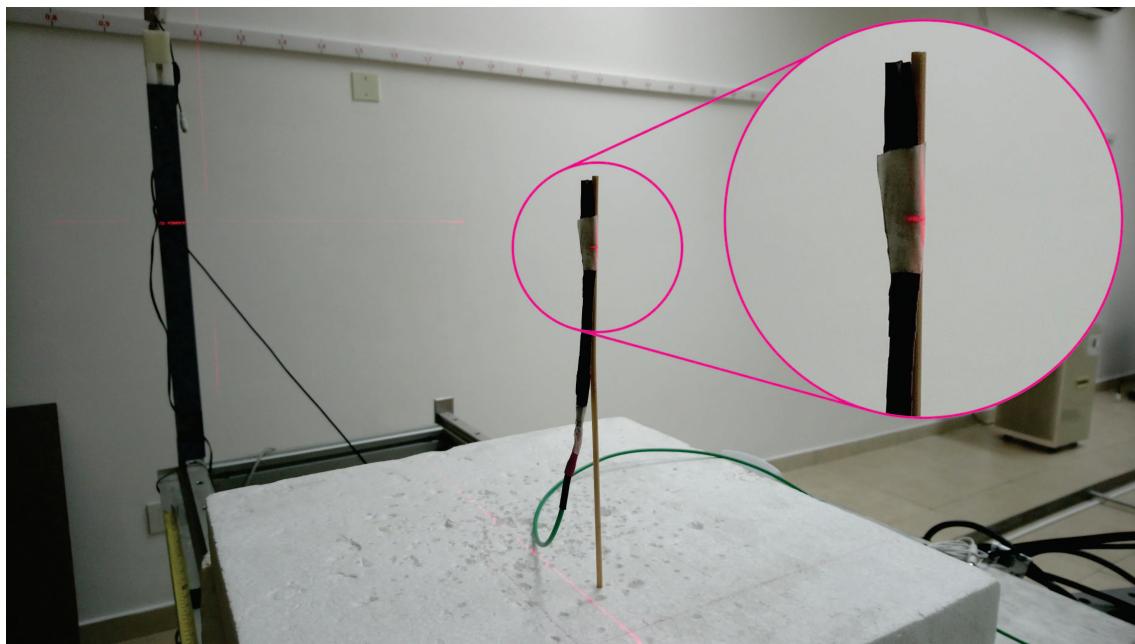


Figura 4.13: Detector colocado en la posición de irradiación. En la imagen se observa uno de los láseres marcando con precisión el lateral del detector.

Para determinar el tiempo de irradiación necesario con cada detector se utilizó la cámara de video remoto apuntando a la pantalla del osciloscopio. De esta manera, cuando se observaba que se habían capturado las 2000 formas de onda esperadas se interrumpía la irradiación desde la consola del equipo.

De este experimento se obtuvieron los espectros integrales de altura de pulsos que se muestran en la Figura 4.14 y en la Figura 4.15. Estos espectros son consistentes con los obtenidos en la sección anterior. Del análisis de los mismos se puede establecer los umbrales que permitan un rechazo absoluto a fotones gamma. Para el caso del detector #25 (orgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) este umbral debe colocarse en un valor relativamente alto, por encima de los 4300 mV, imposibilitando rechazar todos los fotones gamma sin penalizar la sensibilidad a neutrones térmicos del detector, tal como se había observado en la sección anterior. En cambio, el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) posee un rechazo a fotones gamma superior, permitiendo colocar un umbral más bajo. Estableciendo un umbral en 900 mV se obtiene un rechazo a fotones gamma de 1332.492 keV mejor que 1 en 2000, lo que equivale a una probabilidad menor a 5×10^{-4} .

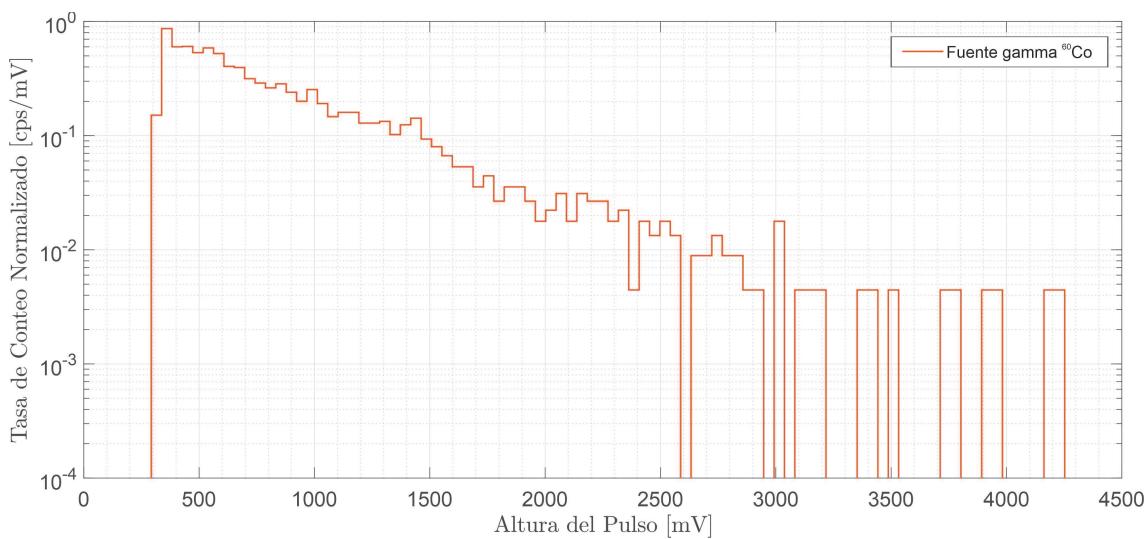


Figura 4.14: Espectro diferencial de altura de pulsos de la fuente de ^{60}Co obtenido con el detector #25 (orgánico con ^{6}Li al 90 %).

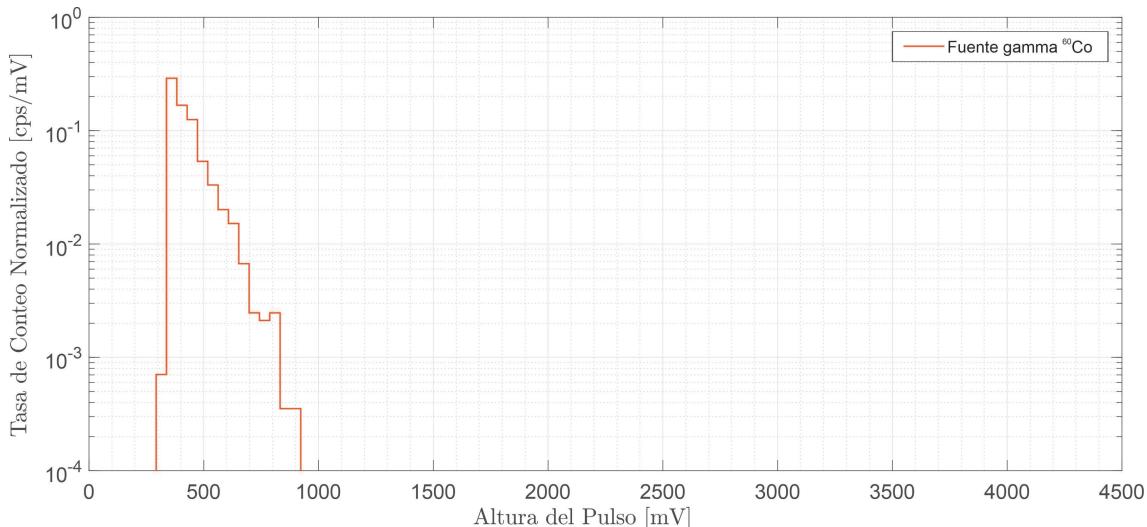


Figura 4.15: Espectro diferencial de altura de pulsos de la fuente de ^{60}Co obtenido con el detector #25 (orgánico con ^{6}Li al 90 %).

Luego se realizó un análisis de la forma de los pulsos obtenidos con el detector #09 (inorgánico con ^{6}Li al 90 %). Como se observa en la Figura 4.16, la población de fotones gamma se ubica en la parte inferior del gráfico. Al seleccionar un umbral igual 0.6 se obtiene un rechazo absoluto a fotones gamma de 1332.492 keV mejor que 7 en 2000, esto equivale a una probabilidad menor a 3.5×10^{-3} . No se analiza el detector #25 (orgánico con ^{6}Li al 90 %) debido a que no se habían observado diferencias significativas en la forma de los pulsos.

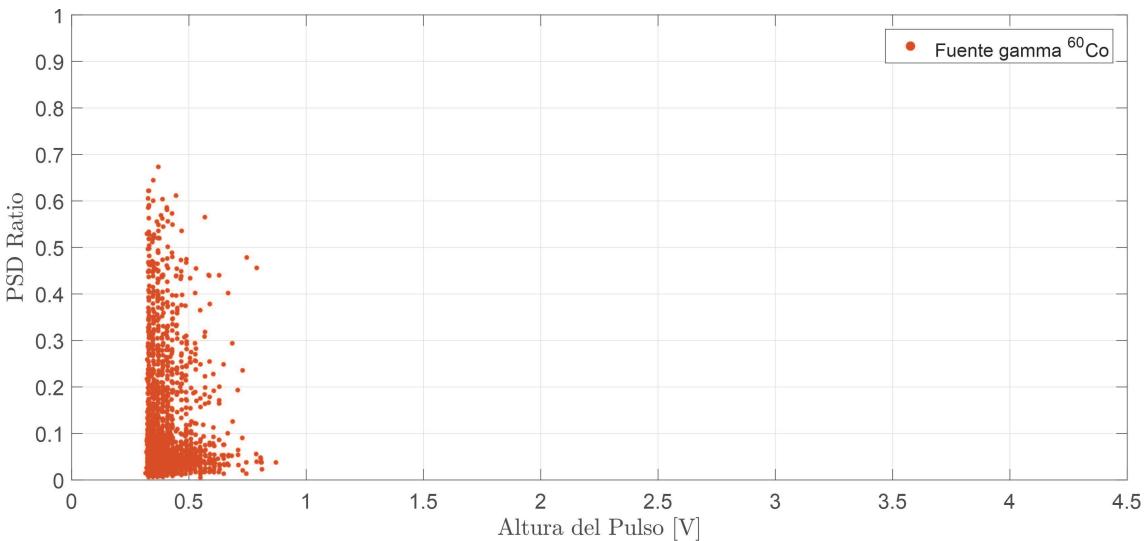


Figura 4.16: Análisis del cociente PSD en función de la altura de los pulsos para el detector #09 (inorgánico con ^6Li al 90 %) con la fuente de ^{60}Co .

4.5. Medición de la sensibilidad a neutrones térmicos

En esta sección se presenta un análisis de los datos obtenidos en los experimentos anteriores descritos en este Capítulo con el objetivo de calcular un valor de sensibilidad para el detector #09 (inorgánico con ^6Li al 90 %).

Para este análisis se utilizaron los pulsos obtenidos utilizando la fuente de neutrones cuyo flujo calculado fue de 407 ± 61 nv (se enfatiza nuevamente que este valor es una aproximación, como se discutió en la Sección 4.3) y la fuente calibrada de ^{60}Co cuya tasa de dosis era de 6.18 ± 0.07 mSv/h.

Se comenzó analizando la población de fotones gamma en el gráfico de cociente PSD en función de la altura del pulso (Figura 4.16). Como estas irradiaciones se realizaron lejos de cualquier fuente de neutrones y como los tiempos de medición fueron relativamente cortos como para observar radiación natural de neutrones, se espera que todos los pulsos obtenidos correspondan a interacciones con fotones gamma. En este gráfico se observa que para un cociente PSD igual a 0.6, la cantidad de fotones gamma que no se rechazan es menor a 3.5×10^{-3} . Entonces, seleccionando este umbral es posible calcular la cantidad de pulsos que corresponden a neutrones

y relacionar este valor con la sensibilidad del detector.

La Figura 4.17 muestra el cociente PSD de los pulsos obtenidos con la fuente de neutrones. En este gráfico se observa que existe una contribución de fotones gamma, los cuales pueden provenir del fondo ambiental de radiación o de la propia fuente de neutrones, por el decaimiento del ^{241}Am . Al seleccionar un cociente PSD de 0.6 se aceptan un total de 1798 pulsos (en un tiempo de irradiación de 420 segundos), los cuales se atribuyen a interacciones con neutrones. Con este valor se puede calcular una tasa de neutrones de 4.28 ± 0.10 cps, lo cual implica una sensibilidad a neutrones térmicos de 0.0105 ± 0.0016 cps/nv.

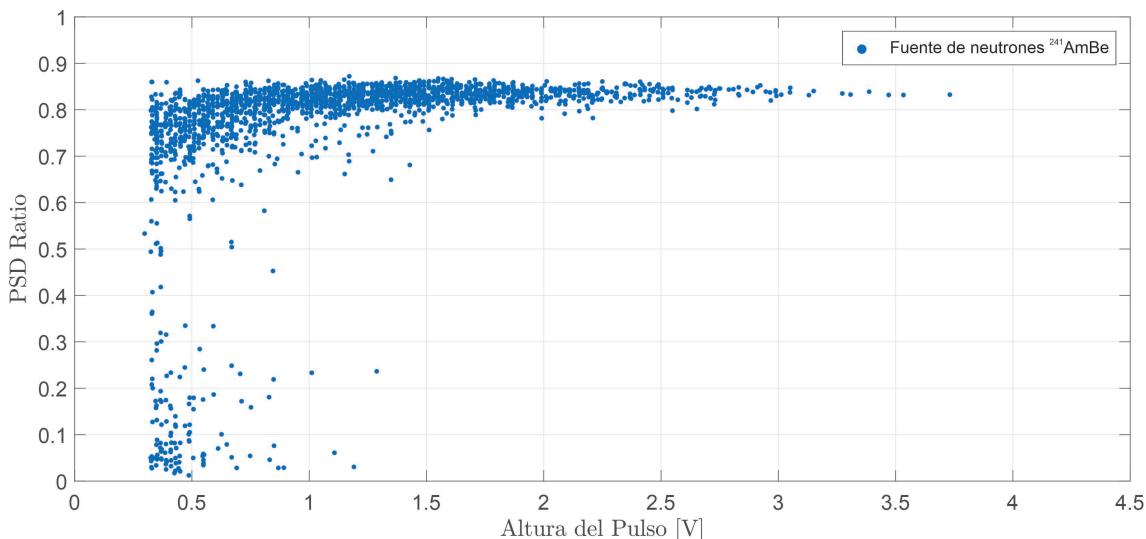


Figura 4.17: Análisis del cociente PSD en función de la altura de los pulsos para el detector #09 (inorgánico con ^6Li al 90 %) con la fuente de $^{241}\text{AmBe}$.

También se realizó un análisis de la altura de los pulsos a partir del gráfico de la Figura 4.6. Como se mencionó en la Sección 4.4 es posible lograr un rechazo absoluto de fotones gamma colocando un umbral por encima de los 900 mV de altura del pulso. De esta manera se aceptan 1140 eventos que se atribuyen a interacciones con neutrones en un tiempo de irradiación de 420 segundos. Con estos valores se calculó una tasa de neutrones de 2.714 ± 0.080 cps, la cual permite obtener una sensibilidad a neutrones térmicos de 0.0067 ± 0.0010 cps/nv.

Capítulo 5

Conclusiones

El presente Trabajo, realizado en el marco del Proyecto Final Integrador, permitió contribuir al diseño y desarrollo de un detector de neutrones. Se comenzó con 5 placas centelladores provistas por el grupo del Dr. Horacio Corti y se finalizó con un detector prototípico con la posibilidad de ser instalado a futuro en la instalación del haz Prompt Gamma del RA-3.

Se comenzó realizando el acople mecánico y óptico de los centelladores con los fotomultiplicadores de silicio. Se realizaron pruebas de los distintos detectores irradiándolos con una fuente de neutrones y se observó su respuesta, mediante un sistema de adquisición de datos que permitió registrar la tasa de conteo de eventos. De estas pruebas se evidenció que los centelladores responden satisfactoriamente a los neutrones, con tasas de conteo de algunos ordenes de magnitud por encima del fondo natural de radiación. Solo en el caso del centellador preparado con sulfuro de zinc dopado con manganeso la respuesta se encontró por debajo del desempeño de los otros compuestos.

Los compuestos centelladores orgánicos mostraron una respuesta más rápida en el decaimiento de los pulsos respecto a los centelladores inorgánicos. Esta característica los vuelve más atractivos cuando se requiere conteo de neutrones con altos flujos. Además, los compuestos orgánicos evidenciaron un grado de proporcionalidad entre la carga de ${}^6\text{LiF}$ y la tasa de conteo. En cambio, el aumento del compuesto convertidor en los centelladores inorgánicos evidenció una posible pérdida en su opacidad.

De los compuestos ensayados se seleccionaron los que presentaron la mayor tasa de conteo y el mejor aprovechamiento de la carga de ${}^6\text{LiF}$. Estos fueron el compuesto #25, preparado con el centellador orgánico EJ-200 y el compuesto #09, preparado con el centellador inorgánico ZnS:Ag, ambos con ${}^6\text{LiF}$ enriquecido en ${}^6\text{Li}$ al 90 %.

Luego se construyó un circuito amplificador y se desarrollaron algoritmos utilizando el lenguaje Octave para la adquisición de las formas de onda capturadas por un osciloscopio digital. Con esta nueva implementación se estudiaron los pulsos provenientes del SiPM, analizando la forma y la altura de los mismos.

Se comenzó estudiando la capacidad de los detectores para discriminar los fotones gamma de los neutrones analizando la forma y la altura de los pulsos típicos provenientes de dos fuentes, una de ${}^{60}\text{Co}$ que proveyó fotones gamma y una fuente de ${}^{241}\text{AmBe}$ para la provisión de neutrones. De este estudio se concluyó que el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) es el mejor candidato para lograr una discriminación eficiente entre fotones gamma y neutrones. Esta discriminación es posible utilizando ambas características del pulso: altura y forma.

Además, se determinó que para este detector es posible obtener un rechazo absoluto a fotones gamma de 1332.492 keV con una probabilidad menor que 5×10^{-4} , colocando un umbral de discriminación en un valor de 900 mV de altura de pulso. O un rechazo con una probabilidad menor que 3.5×10^{-3} en el caso de realizar un análisis de la forma de los pulsos, estableciendo un umbral para el cociente PSD igual a 0.6, con un tiempo de inicio de la cola del pulso establecido en 200 ns después del máximo.

Por último, con los umbrales calculados para el rechazo a fotones gamma se calcularon dos valores de sensibilidad a neutrones térmicos del detector. Si se utiliza un umbral de discriminación en la altura de los pulsos se puede obtener una sensibilidad de 0.0067 ± 0.0010 cps/nv y en el caso de utilizar el análisis por forma de pulso se puede aumentar este valor hasta las 0.0105 ± 0.0016 cps/nv. Este último valor de sensibilidad calculado puede aumentar significativamente si se parte de un umbral más bajo que los 300 mV utilizados en este Trabajo y se realiza una optimización del análisis de la forma de los pulsos.

Se concluye entonces que el detector #09 (inorgánico con ${}^6\text{Li}$ al 90 %) presenta las mejores características dentro de los parámetros estudiados, siendo el candidato

propuesto para continuar con el desarrollo del monitor de haces. Como siguiente paso se propone realizar un estudio más detallado de la sensibilidad a neutrones realizando una nueva medición del flujo y utilizando un umbral de discriminador más bajo con el objetivo de mejorar el estudio de discriminación por forma de pulso. Además, se cree conveniente realizar un estudio comparativo de nuevas preparaciones del mismo centellador con diferentes cargas de ${}^6\text{LiF}$ y espesores, mejorando las técnicas de preparación. Otro punto importante a considerar a futuro es un estudio de la durabilidad del detector en presencia de campos intensos de radiación dado su posible aplicación como monitor de haces en campos de radiación mixtos.

Como cierre de este Trabajo se hace énfasis en la necesidad de continuar mejorando el diseño de este detector. Los resultados obtenidos en el transcurso de este Proyecto Final Integrador permiten asumir un horizonte prometedor si se continua optimizando el preparado de los compuestos centelladores, partiendo de estas conclusiones. Se espera poder abordar este desafío en el marco de la Beca CNEA "Desarrollo de detectores de neutrones basados en centelladores cargados con Li-6".

Referencias

- [1] A. Cho, Helium-3 Shortage Could Put Freeze On Low-Temperature Research. Science, 326(5954), 778-779, (2009).
- [2] J. Valledor, Desarrollo de centelladores basados en ${}^6\text{Li}$ para detección de neutrones, Tesis de Maestría, Instituto Sabato, CNEA-UNSAM, (2018).
- [3] Argentina.gob.ar, El RA-3 asegura la provisión de radioisótopos médicos, <https://www.argentina.gob.ar/noticias/el-ra-3-asegura-la-provision-de-radioisotopos-medicos>, (2019).
- [4] Glenn F. Knoll, Radiation detection and measurement, John Wiley & Sons, Fourth edition, (2010).
- [5] www-nds.iaea.org, International Network of Nuclear Reaction Data Centres, <https://www-nds.iaea.org/nrdc/>, (2019).
- [6] Brookhaven National Laboratory, 'National Nuclear Data Center' <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>
- [7] R. Kouzes, The ${}^3\text{He}$ Supply Problem, (2009).
- [8] Industrialización del Litio y Agregado de Valor Local: Informe Tecno-Productivo. (2015). Ciudad Autónoma de Buenos Aires: Andrés Castello y Marcelo Kloster.
- [9] SensL, 'An Introduction to the Silicon Photomultiplier' <https://www.sensl.com/downloads/ds/TN%20-%20Intro%20to%20SPM%20Tech.pdf>
- [10] E. TECHNOLOGY, 'EJ-200 PLASTIC SCINTILLATOR (Data Sheet)' http://www.eljentechnology.com/images/products/data_sheets/EJ-200_EJ-204_EJ-208_EJ-212.pdf

- [11] BICRON, 'ZnS(Ag) Zinc Sulfide Scintillation Material',
http://www.hep.ph.ic.ac.uk/fets/pepperpot/docs+papers/zns_602.pdf
- [12] SensL, 'SiPM C-Series Datasheet', <http://sensl.com/downloads/ds/DS-MicroCseries.pdf>
- [13] siglent.eu, Siglent SDS2104X, <https://www.siglent.eu/sds2104x.htm>, (2018).
- [14] ni.com. (2018). National Instruments VISA - National Instruments.
<https://www.ni.com/visa>