



UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI PADOVA
DIPARTIMENTO DI FISICA ED ASTRONOMIA “Galileo Galilei”
SCUOLA DI DOTTORATO DI RICERCA IN FISICA
DOTTORATO IN COTUTELA

Development of Innovative Technology for Detection and Identification of Radioactive Materials

Tutor: Prof. Laszlo Sajo-Bohus (Simón Bolívar University)

Cotutor: Prof. Giuseppe Viesti (University of Padova)

Author: Felix E. Pino A.

September 22th, 2014



UNIVERSIDAD SIMÓN BOLÍVAR
 DECANATO DE ESTUDIOS DE POSTGRADO
 COORDINACIÓN DE FÍSICA
 DOCTORADO EN FÍSICA

**DESARROLLO DE TECNOLOGÍA MODERNA PARA LA
 DETECCIÓN E IDENTIFICACIÓN DE MATERIALES RADIATIVOS**

Por: Felix Eduardo Pino Andrades
Carnet No: 08-86538

Esta Tesis Doctoral ha sido aprobada con mención sobresaliente en nombre de la Universidad Simón Bolívar por el siguiente jurado examinador:

Prof. Jacinto Liendo
 Presidente

Prof. Laszlo Sajo-Bohus
 Principal - Tutor

Prof. Carlos Rojas
 Principal Externo - UCV

Prof. Giuseppe Viesti
 Co-tutor - UNIPD

Dr. Giancarlo Nebbia
 Principal Externo - UNIPD

22 de septiembre de 2014

AGRADECIMIENTOS

En primer lugar quiero agradecer a mis padres ellos me han brindado el apoyo y la confianza necesaria para cumplir con todas mis metas.

También quiero agradecer a mi esposa Johanna, por todo su sacrificio, por compartir cada segundo de su vida conmigo, por la felicidad, alegría y comprensión que me ha brindado en todo este tiempo, por darme la esperanza y la motivación para seguir adelante y hacer las cosas bien.

Quiero agradecer a mi tutor, el Prof. Laszlo Sajo Bohus, por su confianza y su disponibilidad para ayudarme siempre. Agradezco también a mi cotutor, el Prof. Giuseppe Viesti, por toda su disposición y ayuda brindada para la elaboración de esta Tesis Doctoral.

Agradezco al Prof. Haydn Barros por su eterna disposición para contribuir con ideas nuevas en todas las etapas de la realización de esta Tesis Doctoral.

Agradezco al International Centre for Theoretical Physics (ICTP) y al Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) por el apoyo económico brindado para la realización de las visitas a la Universidad de los Estudios de Padova dentro del marco del programa STEP.

Agradezco a la Dirección de Desarrollo Profesorado de la USB por su apoyo económico parcial para la compra de boletos aéreos Venezuela-Italia-Venezuela.

Agradezco a la Dirección de Energía Atómica del Ministerio para el Poder Popular de la Energía Eléctrica por su apoyo institucional para la obtención de la beca otorgada en conjunto por el ICTP y el OIEA.

Agradezco a todo el equipo de trabajo del Laboratorio de Física Nuclear de la USB, profesores, técnicos y estudiantes, los cuales siempre están preparados para brindar su ayuda.

Y finalmente, agradezco al grupo de trabajo de la Università degli Studi di Padova, Luca, Davide y Marco, por todo su apoyo para la realización de la parte experimental de esta Tesis Doctoral.



UNIVERSIDAD SIMÓN BOLÍVAR
DECANATO DE ESTUDIOS DE POSTGRADO
COORDINACIÓN DE FÍSICA
DOCTORADO EN FÍSICA

DESARROLLO DE TECNOLOGÍA MODERNA PARA LA DETECCIÓN E IDENTIFICACIÓN DE MATERIALES RADIATIVOS

Por: Felix Eduardo Pino Andrades

Carnet No: 08-86538

Tutor: Laszlo Sajo-Bohus (USB)

Cotutor: Giuseppe Viesti (UNIPD)

22 de septiembre de 2014

RESUMEN

Durante estos últimos 20 años se han reportado de manera oficial 2477 incidentes relacionados con materiales radiactivos. La implementación de sistemas de detección de materiales radiactivos en zonas como fronteras, puertos, aeropuertos, etc., ha sido crucial para evitar consecuencias mayores. El detector de neutrones basado en ^3He ha sido el principal componente de estos sistemas, pero la creciente demanda de ^3He ha causado una escasez y un aumento de precio del mismo. Esto ha motivado a la comunidad científica a desarrollar una nueva generación de detectores de neutrones. En este trabajo se presenta una caracterización completa, basada en experimentos y en simulaciones por Monte Carlo, de un conjunto de centelladores orgánicos modernos con capacidades de discriminación n/γ . Se presentan nuevos resultados referentes a la función de emisión de luz y a la eficiencia (para n y γ) del centellador EJ-309. Este centellador acoplado a un PMT H8500C sirvió para ensamblar un prototipo de espectrómetro $n - \gamma$ portátil. Se caracterizó el primer centellador orgánico plástico comercial (EJ-299-33) con capacidades de discriminación n/γ . Se estudió la respuesta del centellador orgánico EJ-339A (4,6 % de ^{10}B) con la finalidad de discriminar entre γ , neutrones rápidos y neutrones térmicos provenientes de una fuente de ^{252}Cf blindada. Finalmente, como otra alternativa, se exploró el uso del detector EJ-420 (basado en $\text{ZnS}(\text{Ag})/{}^6\text{LiF}$) para la detección de neutrones térmicos. El procesamiento de los datos adquiridos con todos los detectores se realizó con una electrónica nuclear moderna CAEN basada en *digitizers*.

Palabras Clave: Centelladores Orgánicos, Procesamiento Digital de Pulsos, Discriminación n/γ , Monte Carlo



UNIVERSIDAD SIMÓN BOLÍVAR
DECANATO DE ESTUDIOS DE POSTGRADO
COORDINACIÓN DE FÍSICA
DOCTORADO EN FÍSICA

**DEVELOPMENT OF INNOVATIVE TECHNOLOGY FOR
DETECTION AND IDENTIFICATION OF RADIOACTIVE
MATERIALS**

By: Felix Eduardo Pino Andrades

ID: 08-86538

Tutor: Laszlo Sajo-Bohus (USB)

Cotutor: Giuseppe Viesti (UNIPD)

September 22th, 2014

ABSTRACT

During the last 20 years 2477 incidents related with the smuggling of radioactive materials have been reported to the IAEA. The implementation of systems for detection of radioactive materials at borders, ports, airports, etc. is a critical issue to reduce the contraband and prevent further consequences. The neutron detector based in ^3He has been a common component in radiation portals, but the increasing demand of ^3He has caused its shortage with a very large cost increase. This situation has motivated the scientific community to develop a new generation of neutron detectors to replace the ^3He -based systems. In this work is reported a complete characterization, based on experiments and Monte Carlo simulations, of a set of modern organic liquid scintillator detectors with n/ γ discrimination capabilities. New results respect to the light output function and the neutron and gamma efficiencies of the EJ-309 scintillator are presented. The EJ-309 scintillator coupled to a PMT H8500C was used also in a prototype of a compact and portable n/ γ spectrometer. A complete study of the first commercial plastic scintillator with n/ γ discrimination capabilities (EJ-299-33) was performed. The response of the EJ-339A scintillator (loaded with 4.6 % of ^{10}B) was studied in order to discriminate between gamma, fast neutron and thermal neutron events coming from a shielded ^{252}Cf source. Finally, as another alternative to the standard ^3He systems, the use of the EJ-420 scintillator (based on $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{Li}$) for thermal neutron detection was tested. The pulse processing of all the detectors was performed using modern CAEN nuclear electronics based in fast digitizers.

Keywords: Organic Scintillators, Digital Pulse Processing, n/ γ Discrimination, Monte Carlo

ÍNDICE GENERAL

	Pág.
APROBACIÓN DEL JURADO	II
AGRADECIMIENTOS	III
RESUMEN	IV
ABSTRACT	V
ÍNDICE GENERAL	VI
LISTA DE TABLAS	IX
LISTA DE FIGURAS	X
INTRODUCCIÓN	1
CAPÍTULO I. MOTIVACIÓN	4
1.1. Antecedentes	4
1.2. Planteamiento y Justificación del Problema	13
CAPÍTULO II. MARCO TEÓRICO	15
2.1. Fundamentos de la Emisión de Luz en Centelladores Orgánicos	15
2.2. Discriminación por Forma de Pulsos en Centelladores Orgánicos	20
2.3. Figura de Mérito (FoM)	21
2.4. Eficiencia de Detección para Neutrones y Fotones Gamma en Centelladores Orgánicos.....	23
2.5. Resolución en Energía y Calibración de los Centelladores Orgánicos	25
2.6. Aspectos Fundamentales en la Medición de Tiempos en Centelladores	26
2.6.1. Resolución Temporal	28
CAPÍTULO III. MATERIALES Y MÉTODOS	31
3.1. Centelladores Orgánicos	31

3.2. Otros Detectores	34
3.2.1. Detector EJ-228	34
3.2.2. Detector EJ-420	35
3.3. Fotomultiplicadores (PMT's)	35
3.4. Electrónica Nuclear Modular tipo <i>VERSA Module Eurocard (VME)</i>	39
3.4.1. Módulo de Alimentación Compacto para Unidades tipo VME (VME-minicrate)	39
3.4.2. Fuente de Alto Voltaje	40
3.4.3. Unidades Digitalizadoras de Pulsos Nucleares (<i>digitizers</i>)	41
3.4.4. Puerto USB (<i>controller</i>)	44
3.5. Fuentes Radioisotópicas	45
3.6. Simulación del Transporte de Neutrones y Fotones Gamma por el Método de Monte Carlo	47
3.6.1. GEANT4 9.6	51
3.6.2. MCNPX 2.7.0	53
3.6.3. PENELOPE 2008	56
CAPÍTULO IV. RESULTADOS Y DISCUSIONES	58
4.1. Comparación entre el Desempeño de los Fotomultiplicadores	58
4.1.1. Respuesta en una zona con Campo Magnético	65
4.1.2. Resolución Temporal	67
4.2. Caracterización del Centellador EJ-309	74
4.2.1. Determinación de la Función de Emisión de Luz para Protones	74
4.2.2. Eficiencia Intrínseca para Neutrones	82
4.2.3. Eficiencia Intrínseca para Fotones Gamma	86
4.2.4. Espectrómetro n/γ Portátil	91
4.3. Caracterización del Centellador Plástico EJ-299-33	93
4.3.1. Resolución en Energía	93
4.3.2. Discriminación n/γ	95
4.3.3. Resolución Temporal	98
4.4. Caracterización del Centellador EJ-339A	102
4.4.1. Discriminación n/γ	103
4.4.2. Detección de Neutrones Térmicos	105
4.4.3. Eventos “ <i>capture-gated</i> ”	111
4.4.4. Efectos de Blindar una Fuente de ^{252}Cf con Polietileno	115

4.5. Detector de Neutrones Térmicos, EJ-420	119
4.5.1. Decaimiento de la molécula de ZnS(Ag)	122
CAPÍTULO V. CONCLUSIONES	126
APÉNDICE A. EJ-301	131
REFERENCIAS	133

LISTA DE TABLAS

	Pág.
3.1. Características físico-químicas de los centelladores líquidos EJ-309 y EJ-301	31
3.2. Características físico-químicas del centellador líquido EJ-339A	32
3.3. Características físico-químicas del centellador plástico EJ-299-33.....	33
3.4. Características físico-químicas del centellador plástico EJ-228	34
3.5. Características técnicas de los fotomultiplicadores usados en este trabajo. (*) Corresponde al diámetro en el caso de los fotomultiplicadores XP2020 y R1828-01 y al ancho por el largo en el caso del fotomultiplicador H8500C	38
3.6. Características técnicas y operacionales del VME8004	40
3.7. Características técnicas de la fuente de alto voltaje V6533.....	41
3.8. Características técnicas de los <i>digitizers</i>	42
3.9. Elenco de fuentes radioisotópicas. Las líneas gamma que se muestran son las más intensas reportadas en la literatura	46
4.1. Valores de resolución temporal de cada uno de los detectores estudiados en función del umbral en energía del DCFD. Las incertidumbres fueron determinadas siguiendo procedimientos de propagación de errores	71
4.2. Parámetros de ajuste de la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 obtenida en este trabajo. Se muestran también los co- rrespondientes parámetros de las funciones reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al. (2011). (*) El espesor de este detector es de 51 mm. Los espesores de los demás detectores son iguales a sus diámetros	80
4.3. Eficiencia de conteo total para neutrones emitidos por una fuente de ^{252}Cf . Se presentan los resultados experimentales y simulados por Monte Carlo con <i>GEANT4 9.6</i> y <i>MCNPX 2.7.0</i>	83
4.4. Eficiencia intrínseca (ϵ_{int}) de conteo para fotones gamma emitidos por ^{137}Cs , ^{22}Na y ^{60}Co de los centelladores EJ-309 y EJ-301 en función de la posición relativa de la fuente radiactiva (frontal o lateral a la celda que contiene el centellador). Se utilizó un umbral en energía de 0,2 MeV	87
4.5. Resumen de los valores de resolución en energía y resolución temporal de los centelladores estudiados. Los valores de resolución temporal están asociados a un umbral en energía en el DCFD igual a 0,15 MeV	101
4.6. Tiempos (τ_i) e intensidades (w_i) promedio de las tres componentes de de- caimiento del ZnS(Ag)	124

LISTA DE FIGURAS

	Pág.
2.1. Esquema de niveles de energía de una molécula orgánica con una estructura electrónica tipo π . Las flechas indican las transiciones electrónicas de interés para la emisión de luz. Nótese que el nivel S_{10} es donde se acumulan los electrones participantes en el proceso de excitación-desexcitación. Figura adaptada de [1]	16
2.2. Pulsos típicos correspondientes a eventos de neutrones rápidos y fotones gammas en centelladores orgánicos medidos a la salida del ánodo de un fotomultiplicador acoplado a un centellador orgánico	21
2.3. Representación de los parámetros de la Figura de Mérito (FoM) en el análisis de discriminación por forma de pulsos	22
2.4. Distribuciones Compton teóricas correspondientes a fotones incidentes de 511 keV , (a) sin aplicar el suavizado gaussiano y aplicándolo con distintos valores de σ . (b) $\sigma = 5 keV$, (c) $\sigma = 10 keV$, (d) $\sigma = 15 keV$ y (e) $\sigma = 25 keV$	26
2.5. Forma del pulso en cada paso del método “constant fraction timing”. Para mayor claridad sólo se muestra la parte anterior del pulso	28
2.6. (Arriba) Esquema simple para el estudio de la resolución temporal de un sistema de detectores. (Abajo) Espectro temporal típico	29
3.1. Esquema detallado de la celda de aluminio de 2”x 2” que contiene a los centelladores líquidos	33
3.2. (Derecha) detector plástico EJ-299-33. (Izquierda y centro) fotomultiplicador y acople óptico de silicona EJ-560	34
3.3. (Izquierda) esquema y (derecha) foto del detector de neutrones térmicos EJ-420	35
3.4. (Izquierda) vista externa. (Derecha) esquema detallado del fotomultiplicador H1949-51	37
3.5. (Izquierda) vista externa y (derecha) detalles del ánodo del fotomultiplicador H8500C	37
3.6. Curvas de eficiencia cuántica de los fotomultiplicadores usados en este trabajo	38
3.7. CAEN VME8004 minirate	40
3.8. Fuente de alto voltaje CAEN V6533	41
3.9. <i>Digitizer</i> CAEN V1720	42

3.10. <i>Digitizer</i> CAEN DT5751	43
3.11. Parámetros de adquisición descritos sobre un pulso digitalizado	44
3.12. Puerto USB CAEN V1718	45
3.13. Espectro de neutrones y fotones gamma de fisión de una fuente de ^{252}Cf ...	46
3.14. Proyección en dos dimensiones del modelo geométrico del detector utilizado para realizar las simulaciones por Monte Carlo	49
3.15. Vista 3D del modelo geométrico del detector utilizado para realizar las simulaciones por Monte Carlo	49
4.1. Esquema a escala del ánodo del fotomultiplicador H8500C. La superficie sombreada representa la sección transversal de la celda de diámetro 50,8 mm. También se definen los ánodos que constituyen cada una de las 4 líneas de salida	59
4.2. Esquema experimental usado para realizar las mediciones. Aunque sólo se presenta la configuración EJ-309/H8500C, el esquema es válido para cualquiera de las otras configuraciones	60
4.3. Resolución en energía para las configuraciones EJ-309/H1949-51 y EJ-301/H1949-51 en función del voltaje aplicado. La incertidumbre asociada a la determinación de σ es de 10 %	61
4.4. Resolución en energía de los detectores EJ-309/H8500C y EJ-301/H8500C en función del número de líneas de salida consideradas. La incertidumbre asociada a la determinación de σ es de 10 %	62
4.5. Espectros de ^{22}Na adquiridos con el detector EJ-309/H8500C considerando sólo la línea de salida 3 y tomando en cuenta todas las líneas de salida. Además se presenta el espectro adquirido con el detector EJ-309/H1949-51. Este último espectro tuvo un tiempo de adquisición mayor al de los primeros dos	63
4.6. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a la medición de una fuente de ^{252}Cf con el detector EJ-309/H8500C tomando en cuenta todas las líneas de salida. (b) Histograma del parámetro PSD utilizando un umbral para la emisión de luz (E_{th}) de 0,3 MeVee. También se muestran los ajustes gaussianos realizados a las distribuciones correspondientes a fotones gamma (γ) y neutrones rápidos (n)	64
4.7. Figura de mérito en función del número de líneas de salida consideradas para los detectores EJ-309/H8500C y EJ-301/H8500C. El umbral en emisión de luz usado fue $E_{th} = 0,3 \text{ MeVee}$	64
4.8. Mediciones de los espectros en energía de ^{22}Na con el detector EJ-309/H1949-51 para diferentes valores de campo magnético	65
4.9. Mediciones de los espectros en energía de ^{22}Na con el detector EJ-309/H8500C para diferentes valores de campo magnético	66

4.10. Disminución relativa de la posición del borde Compton asociado al fotón gamma de 1275 keV en función del valor de campo magnético en los detectores considerados en este estudio	66
4.11. Esquema experimental usado para realizar mediciones de coincidencias gamma-gamma con una fuente de ^{22}Na para determinar la resolución temporal de los detectores bajo estudio	68
4.12. (Arriba) Espectro temporal obtenido con los dos detectores plásticos EJ-228. (Abajo) Espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por cada detector ($E_{th} = 100 keV$)	69
4.13. Espectro temporal y espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por el sistema “EJ-228 # 2 – EJ-309/H1949-51”. $E_{th} = 100 keV$	70
4.14. Espectro temporal y espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por el sistema “EJ-228 # 2 – EJ-309/H8500C”. $E_{th} = 100 keV$	70
4.15. Resolución temporal de cada uno de los detectores estudiados en función del umbral en energía del DCFD	72
4.16. Distribución del retraso de las señales provenientes de los ánodos del PMT H8500C respecto al ánodo P48. Datos tomados de [2]	72
4.17. Esquema experimental utilizado para determinar la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309	75
4.18. Reconstrucción del espectro temporal de la totalidad de eventos en coincidencia. El efecto de implementar la discriminación n/γ en el detector EJ-309 es puesto en evidencia	76
4.19. Histogramas bidimensionales del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondientes a ^{22}Na (arriba) y ^{252}Cf (abajo). Se presenta también la curva que se usó para la discriminación n/γ . Los datos corresponden a los eventos producidos en el detector EJ-309	77
4.20. Espectros en emisión de luz para neutrones de 1, 5; 2, 5; 3, 5; 4, 5; 6; y 7 MeV . El espectro de mayor altura corresponde a neutrones de 7 MeV , los demás siguen en orden decreciente	79
4.21. Espectro en emisión de luz para neutrones de $2,50 \pm 0,08 MeV$ y su respectiva primera derivada. La escala vertical en la que se representa la derivada es arbitraria	79
4.22. Derivada extendida, alrededor de la zona de interés, del espectro en emisión de luz de neutrones de $2,50 \pm 0,08 MeV$. Se muestra el ajuste gaussiano a partir del cual se determinó su centroide	80
4.23. Función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309. Se presentan los puntos experimentales, el ajuste a estos puntos y las funciones de emisión de luz reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al. (2011)	81
4.24. Curvas de eficiencia intrínseca para neutrones del detector EJ-309. Se presenta la comparación entre los resultados experimentales y las simulaciones por Monte Carlo realizadas con <i>GEANT4 9.6</i> y <i>MCNPX 2.7.0</i> . Los umbrales en emisión de luz de estas curvas son: 0, 1, 0, 2, 0, 3 y 0, 4 $MeVee$	84

4.25. Curvas de eficiencia para neutrones determinadas con las simulaciones hechas con <i>MCNPX 2.7.0</i> utilizando las funciones de emisión de luz presentadas en la Fig. 4.23. El umbral en emisión de luz es $0,2 \text{ MeVee}$	85
4.26. Espectros en emisión de luz para neutrones de $2,5 \text{ MeV}$ calculados con las funciones de emisión de luz presentadas en la Fig. 4.23	85
4.27. Esquema experimental utilizado para medir la eficiencia de conteo total gamma de los centelladores EJ-309 y EJ-301. Se muestran las posiciones “frontal” y “lateral” de la fuente radiactiva con respecto al detector	86
4.28. Curvas de eficiencia intrínseca para fotones gamma del detector EJ-309 para umbrales en energía iguales a $0; 0,1; 0,2; 0,3$ y $0,4 \text{ MeV}$. Los puntos experimentales (asteriscos) corresponden a la fuente de ^{137}Cs ($E_\gamma = 0,662 \text{ MeV}$)	88
4.29. Curvas de eficiencia gamma calculadas con <i>PENELOPE 2008</i> , <i>GEANT4 9.6</i> y <i>MCNPX 2.7.0</i> para un umbral en energía de $0,1 \text{ MeV}$. El punto experimental corresponde al de la fuente de ^{137}Cs ($E_\gamma = 0,662 \text{ MeV}$)	89
4.30. Comparación entre el espectro diferencial en energía de ^{137}Cs medido con el detector EJ-309 y los correspondientes simulados con <i>PENELOPE 2008</i> , <i>GEANT4 9.6</i> y <i>MCNPX 2.7.0</i>	90
4.31. Prototipo de espectrómetro n/γ portátil	91
4.32. Esquema experimental usado para evaluar la resolución en energía y la capacidad de discriminación n/γ del centellador EJ-299-33	94
4.33. Espectros en energía adquiridos con los detectores EJ-299-33 y EJ-301 de una fuente de ^{22}Na	95
4.34. Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una fuente ^{252}Cf con adquisiciones hechas con los detectores EJ-299-33 (a) y EJ-301 (b)	96
4.35. Pulsos promedio correspondientes a eventos de neutrones rápidos y fotones gamma en los detectores EJ-299-33 (arriba) y EJ-301 (abajo)	97
4.36. Distribución del parámetro PSD de los eventos adquiridos con el detector EJ-299-33 con una fuente de ^{252}Cf . Esta figura corresponde a un umbral en emisión total de luz de $0,3 \text{ MeVee}$	98
4.37. Espectro temporal obtenido con el sistema de detectores EJ-228/EJ-299-33 usando un umbral en energía igual a $0,15 \text{ MeV}$. Se presenta además su ajuste gaussiano	99
4.38. Pulsos promedios de salida de los detectores EJ-228, EJ-299-33, EJ-309 y EJ-301. Corresponden a eventos gamma registrados en una ventana en energía de $(0,30 \pm 0,01) \text{ MeV}$	100

4.39. Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a mediciones hechas con el detector EJ-339A con las fuentes de ^{241}Am (a) y ^{252}Cf (b). La curva gris que se muestra en ambos gráficos define la frontera entre la región que corresponde a eventos gamma (ubicada por debajo de la curva) y la que corresponde a eventos de neutrones de fisión (por encima de la curva)	104
4.40. Distribución del parámetro PSD de los eventos adquiridos con el detector EJ-339A con una fuente de ^{252}Cf . El umbral en emisión total de luz es de $0,3\text{ MeVee}$	105
4.41. Gráfico de la figura de mérito de los detectores EJ-301, EJ-309, EJ-299-33 y EJ-339A en función del umbral en emisión total de luz. Las barras de errores que no se aprecian son comparables con el tamaño de los íconos	105
4.42. (a) Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una medición hecha con el detector EJ-339A de la fuente de ^{252}Cf blindada con 6 cm de polietileno. Los fotones gamma son principalmente los emitidos por la fuente de ^{252}Cf . (b) Acercamiento del gráfico (a) entre 0 y $0,3\text{ MeVee}$	106
4.43. Espectros en emisión de luz (hasta $0,1\text{ MeVee}$) adquiridos con el detector EJ-339A correspondientes a: ^{241}Am , ^{252}Cf sin blindaje de ningún tipo y ^{252}Cf blindado con 6 cm de polietileno	108
4.44. Figura tomada de Flaska et al. (2009) [3]. (a) Fracción de luz retardada (integral de la cola del pulso) en función de la emisión total de luz (integral total de cada pulso), y (b) relación entre la fracción de luz retardada y la emisión total de luz en función de la amplitud de cada pulso	109
4.45. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una medición con alta tasa de conteo en el detector EJ-339A usando una fuente de ^{252}Cf . (c) Fracción de luz retardada en función de la emisión total de luz de los mismos datos de (a). (b) y (d) son las mismas graficas (a) y (d) aplicando el filtro por apilamiento de pulsos en el <i>digitizer</i>	110
4.46. Evento correspondiente a la región acotada por un valor del parámetro PSD mayor que $0,5$ y una emisión total de luz entre $0,075$ y $0,1\text{ MeVee}$ en el gráfico de la Fig. 4.45a	111
4.47. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz de los eventos “ <i>capture gated</i> ” adquiridos con el detector EJ-339A. (b) Espectro en emisión de luz de estos eventos	112
4.48. Distribución temporal de los eventos “ <i>capture gated</i> ” medidos con el detector EJ-339A utilizando una fuente de ^{252}Cf	113
4.49. Pulsos (promedio) de salida del detector EJ-339A correspondientes a: la línea gamma de $59,54\text{ keV}$ del ^{241}Am , neutrones de fisión emitidos por ^{252}Cf y eventos “ <i>capture gated</i> ”	114
4.50. Esquema experimental utilizado para estudiar la respuesta de los detectores EJ-339A y EJ-301 en presencia de una fuente de ^{252}Cf blindada con polietileno	115

4.51. (a) Factor de transmisión de los neutrones de fisión e (b) incremento relativo de eventos (en la región gamma) adquiridos por el detector EJ-339A con $E < 0,1 \text{ MeVee}$ (número de capturas en el caso de la simulación por Monte Carlo) en función del espesor de polietileno	116
4.52. Resultados experimentales y simulaciones por Monte Carlo (<i>GEANT4 9.6</i>) de la relación entre el número de capturas neutrónicas registradas en el detector EJ-339A y el número de neutrones rápidos (con $E > 0,1 \text{ MeVee}$) medidos por el detector EJ-301, en función del espesor de polietileno con el que se blindo la fuente de ^{252}Cf	118
4.53. Esquema experimental utilizado para evaluar la respuesta del centellador EJ-420 en la detección de neutrones térmicos	119
4.54. Pulso de salida del detector EJ-420 correspondiente a un evento de captura neutrónica. Se muestran las ventanas de integración óptimas para la implementación del algoritmo de discriminación por forma de pulsos	120
4.55. Parámetro PSD en función de la integral larga (Q_{long}) de cada pulso de salida del detector EJ-420. Los gráficos corresponden a mediciones hechas con ^{252}Cf blindado con 6 cm de polietileno (a) y con ^{137}Cs (b)	121
4.56. Número de capturas neutrónicas registradas en el detector EJ-420 en un segundo en función del espesor del bloque de polietileno. El tamaño de las barras de error es comparable al de los círculos	122
4.57. Ejemplo de un pulso de salida del detector EJ-420. Se muestra el ajuste realizado a los datos con la ec. 4.7. Además, se muestran por separado las tres componentes de decaimiento incluidas en el ajuste	124
A.1. Gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para las fuentes de ^{241}Am (a) y ^{22}Na (b) construidos con los eventos registrados en el detector EJ-301. La curva gris define la frontera entre la región que corresponde a eventos gamma (debajo de la curva) y la que corresponde a eventos de neutrones rápidos (encima de la curva).....	131
A.2. Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para la fuente de ^{252}Cf construido con los eventos registrados en el detector EJ-301. La curva gris es la misma de la Fig. A.1	132

INTRODUCCIÓN

Durante estos últimos 20 años se reportaron un total de 2477 incidentes en la Base de Datos de Incidentes y Tráfico de Materiales Radiactivos del Organismo Internacional de Energía Atómica (*IAEA Incident and Trafficking Database: Incidents of nuclear and other radioactive material out of regulatory control*). Estos incidentes consisten principalmente en la posesión no autorizada, el uso en actividades criminales, la pérdida y el robo de materiales nucleares y/o fuentes radiactivas. La información contenida en esta base de datos refleja que inclusive en la actualidad los sistemas de control y de seguridad en las instalaciones donde se trabaja con estos tipos de materiales son vulnerables y deben ser fortalecidos. Un punto importante que se ha hecho notar en los datos recopilados por la OIEA es que a medida que ha aumentado la implementación de sistemas de monitoreo y detección de materiales radiactivos en zonas como fronteras, puertos, aeropuertos, entre otras, el número de incidentes reportados también ha incrementado. Esto refleja la importancia del desarrollo y la implementación de este tipo de sistemas para evitar consecuencias mayores. Sin embargo, uno de los principales componentes de estos sistemas es el contador proporcional basado en ^3He , el cual es usado como detector de neutrones principalmente para la detección de materiales nucleares. Sin embargo, la creciente demanda de ^3He , no sólo para aplicaciones de seguridad nacional sino para la industria (gas y petróleo), medicina e investigación básica, ha causado una escasez y un aumento de precio del mismo. Esto ha motivado a la comunidad científica a dirigir esfuerzos hacia el desarrollo de nuevos detectores de neutrones que puedan sustituir a los detectores basados en ^3He , sobre todo en las aplicaciones de seguridad nacional que son las que más demanda produce.

Desde hace más de una década el grupo de Física Aplicada de la Universidad de los Estudios de Padova comenzó a trabajar en una línea de investigación basada en la aplicación de las técnicas nucleares en el desarrollo de sistemas para la detección de materiales ilícitos (explosivos y drogas) y materiales radiactivos. El grupo de Física Nuclear de la Universidad Simón Bolívar ha colaborado activamente con el grupo de Padova en el fortalecimiento de dicha línea, de hecho, dentro del marco de dicha colaboración se elaboró este trabajo de tesis.

Este trabajo tiene como objetivo general la caracterización completa, basada en experimentos y en simulaciones por Monte Carlo, de un conjunto de centelladores orgánicos modernos (líquidos y sólidos) con capacidades de discriminación n/γ . Todo

esto con la finalidad de evaluar su posible implementación en sistemas de detección de neutrones y radiación gamma, los cuales pueden ser usados tanto en el ámbito de la seguridad nacional como en las ciencias básicas y aplicadas. Es importante mencionar que en este trabajo el procesamiento de los datos ha sido realizado con electrónica moderna basada en *digitizers*.

Específicamente se realizó un estudio completo del centellador líquido moderno EJ-309, el cual posee propiedades favorables (no es tóxico ni inflamable y es biodegradable) para trabajar en campo por sobre otros centelladores líquidos con capacidades de discriminación n/γ (como el EJ-301 y sus equivalentes comerciales). Se realizaron tres modelos idénticos, con *GEANT4 9.6*, *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008*, de la celda de aluminio cilíndrica de 2" x 2" que contiene al centellador EJ-309 principalmente para determinar las curvas de eficiencia intrínseca para neutrones y fotones gamma. Los modelos realizados con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* también sirvieron para estudiar los efectos de las diferencias en las funciones de emisión de luz para protones en la determinación de la eficiencia intrínseca para neutrones. Finalmente, se estudió la respuesta de un detector compacto, compuesto por el centellador EJ-309 acoplado a un fotomultiplicador plano de múltiples ánodos H8500C, y se comparó su desempeño con un detector similar asociado a un fotomultiplicador estándar (linear-focused). Con el detector compacto se ensambló un instrumento portátil, ligero, de bajo consumo de energía y con capacidad para funcionar en zonas con campos magnéticos moderados ($\sim 250 G$) para hacer espectrometría de neutrones y gammas.

Se hizo una caracterización completa del primer centellador orgánico plástico (sólido) comercial con capacidades de discriminación n/γ , el EJ-299-33, y se comparó su desempeño con los centelladores líquidos EJ-301 y EJ-309. A pesar de mostrar una capacidad de discriminación n/γ menor que la de los centelladores líquidos mencionados, sus demás características perfilan a este centellador como un buen candidato para aplicaciones en donde se requieran detectores de neutrones y gammas con volúmenes activos grandes (por ejemplo en portales para detección de materiales radiactivos).

Se estudió la respuesta de un centellador orgánico líquido cargado con 4,6% de ^{10}B , EJ-339A, ante un campo de radiación mixta (neutrones rápidos, neutrones térmicos y fotones gamma). Se determinó su capacidad de discriminación entre neutrones rápidos y fotones gamma, y además, se estudió su respuesta a eventos correspondientes a capturas neutrónicas del ^{10}B (neutrones térmicos). Con los resultados obtenidos se propuso un método para distinguir entre fuentes de fotones gamma de baja energía (por ejemplo de ^{241}Am) y una fuente de neutrones blindada con polietileno. También se realizó un modelo por Monte Carlo con *GEANT4 9.6* de este detector con la finalidad de contribuir a la interpretación de las mediciones y proponer así un procedimiento para estimar el espesor de un blindaje de polietileno aplicado a una fuente de ^{252}Cf .

Finalmente, se estudió la respuesta del detector EJ-420 como otra alternativa de detector de neutrones térmicos. Éste está basado en un compuesto de litio (enriquecido al 95 % con ${}^6\text{Li}$) disperso en una matriz de $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Se optimizó la técnica de discriminación por forma de pulsos, haciendo un procesamiento digital de los datos, para lograr distinguir casi por completo los eventos correspondientes a neutrones térmicos de los eventos gamma. También se estudió la cinemática del decaimiento de la molécula de $\text{ZnS}(\text{Ag})$ cuando es excitada por los productos de la reacción de captura neutrónica del ${}^6\text{Li}$. Se identificaron tres componentes de decaimiento y se determinaron sus tiempos característicos.

En lo que respecta al ámbito local, este trabajo tiene gran importancia ya que actualmente, y durante el futuro próximo, en el Laboratorio de Física Nuclear de la Universidad Simón Bolívar se están llevando a cabo una serie de proyectos de investigación los cuales requieren de especialistas en instrumentación nuclear, detectores de radiación (para gamma y neutrones), modelización por Monte Carlo, entre otras áreas. Estos proyectos de investigación involucran, entre otras cosas, el desarrollo de metodologías de procesamiento digital de pulsos para implementar un sistema anti-Compton en un detector de HPGe tipo pozo, la implementación de la técnica de discriminación α/β en medidas realizadas con centelladores líquidos y el desarrollo de detectores de neutrones y de radiación gamma para el desarrollo de una herramienta de sondeo para perfilaje estratigráfico de pozos petroleros y aplicaciones en hidrogeología.

CAPÍTULO I

MOTIVACIÓN

1.1. Antecedentes

Desde hace más de una década el grupo de Física Aplicada de la Universidad de los Estudios de Padova (UNIPD) comenzó a trabajar en una línea de investigación basada en la aplicación de las técnicas nucleares en el desarrollo de sistemas para la detección de materiales ilícitos (explosivos y drogas) y materiales radiactivos. El grupo de Física Nuclear de la Universidad Simón Bolívar ha colaborado activamente con el grupo de Padova en el fortalecimiento de dicha línea.

Entre finales de los años 1990's y principios del nuevo siglo, el grupo de Padova se dedicó al desarrollo de sistemas de detección de minas terrestres antipersonales [4–6]. Estos sistemas estaban compuestos principalmente por una fuente de neutrones (^{252}Cf o generadores D-T) y un detector de radiación gamma (NaI(Tl) o CsI(Tl)). Este último era utilizado para medir los fotones gamma característicos producidos por las reacciones de captura o reacciones inelásticas de los neutrones con los núcleos que componen el material bajo estudio. El reconocimiento de las minas se logró a partir de la alta concentración de nitrógeno y de los valores específicos de las relaciones entre las concentraciones elementales de C , N y O que exhiben este tipo de explosivos.

Entre los años 2004 y 2008 este mismo grupo trabajó, dentro del marco del proyecto EURITRACK (EUROpean Illicit TRAfficking Countermeasures Kit), en el desarrollo de un sistema de inspección de contenedores de carga para la detección de materiales ilícitos, tales como explosivos y drogas, basado en un generador de neutrones “*etiquetados*” (Tagged Neutron Inspection System, TNIS). El generador de neutrones que se desarrolló dentro del ámbito de este proyecto produce neutrones monoenergéticos de 14 MeV a partir de reacciones $D-T$, los cuales son etiquetados detectando la partícula α (producida en la reacción $D + T \rightarrow n + \alpha$) con un detector YAP:Ce sensible a la posición [2, 7]. Para determinar la composición química del material inspeccionado se midieron los fotones gamma característicos producidos por las reacciones de dispersión inelástica de los neutrones con los núcleos que componen dicho material [8]. Además, se realizaron simulaciones por Monte Carlo para estudiar los límites de la técnica en función de las propiedades del haz de neutrones, y además, en función de los materia-

les que se encuentran dentro del contenedor [9]. Finalmente se realizaron pruebas de campo en el puerto de Rijeka- Croacia, las cuales demostraron satisfactoriamente la funcionalidad del sistema desarrollado como un sistema de inspección complementario a los equipos de rayos X [10].

Desde 2007 y hasta principios de 2013 el grupo de Física Aplicada de la UNIPD desarrolló un sistema basado en la transmisión simultánea de neutrones rápidos y fotones gamma emitidos por una fuente de ^{252}Cf para el análisis no destructivo de materiales [11, 12]. La técnica permite determinar el número atómico promedio del material bajo estudio, y además, ofrece una excelente sensibilidad para elementos livianos (H , C , N , O). Es por esta última razón que se propuso usar la técnica en la detección de materiales orgánicos peligrosos tales como explosivos [13]. En el año 2009 se reportaron resultados donde se utilizó exitosamente la transmisión de los fotones gamma emitidos por una fuente de ^{252}Cf para la identificación de materiales [14], encontrándose mejores resultados para elementos con Z grande.

En el año 2012, Cester et. al. [15], publicaron un trabajo referido al estudio de la detección e identificación de fuentes de radiación ionizante, materiales ilícitos (tales como explosivos y drogas) y materiales nucleares tales como *Weapons Grade Plutonium* (WGPu), *Highly Enriched Uranium* (HEU), entre otros, por medio de un sistema de inspección versátil denominado SMANDRA (Sistema Mobile per Analisi Non Distruttive e Radiometriche). Este sistema está compuesto por dos unidades: una pasiva y otra activa. La primera incluye un conjunto de detectores de radiación gamma y neutrones ($NE-213$, $NaI(Tl)$, $LaBr(Ce)$ y un tubo de ^3He), una cadena de electrónica nuclear tipo VME basada en *digitizers*, baterías y una computadora portátil. La unidad activa incluye un generador de neutrones basado en reacciones D-T. La unidad pasiva puede ser usada en modo independiente para la detección e identificación de materiales radiactivos e incluso para la detección de ^{239}Pu . También, combinando ambas unidades, se puede utilizar el sistema como un *Tagged Neutron Inspection System* para la detección de fuentes de uranio altamente enriquecido y materiales ilícitos como explosivos y drogas.

Recientemente el grupo de Física Aplicada de la UNIPD ha estado trabajando en el desarrollo de un sistema de detección de materiales radiactivos (incluidos los materiales especiales nucleares), más compacto y mucho menos costoso que SMANDRA, basado en centelladores orgánicos líquidos con capacidades de discriminación n/γ . Esto con la finalidad de desarrollar una tecnología moderna con la capacidad de sustituir a los detectores de neutrones basados en ^3He en los sistemas utilizados actualmente en aplicaciones de seguridad nacional. Es precisamente dentro de este proyecto donde se enmarca esta tesis doctoral.

Los centelladores orgánicos líquidos han sido ampliamente usados en experimentos

realizados en laboratorios de investigación donde ha sido necesaria la detección de neutrones rápidos (reacciones nucleares, coincidencias, mediciones de tiempo de vuelo, entre otros). Hasta la actualidad el centellador líquido con capacidad de discriminación n/γ más usado es el conocido NE-213 (BC-501A y EJ-301 son los comerciales equivalentes que se encuentran en el mercado). Este detector ha sido usado en una gran variedad de experimentos relacionados con la detección de neutrones rápidos [16–19], es por esta razón que se han desarrollado una gran cantidad de metodologías experimentales, teóricas y basadas en simulaciones por Monte Carlo para caracterizarlo. En la literatura se encuentra una amplia variedad de trabajos relacionados con la caracterización de los centelladores orgánicos, en particular se pueden mencionar algunos relacionados con: la determinación de la eficiencia intrínseca para neutrones [20, 21], las mediciones de las funciones de respuesta para neutrones [22–24], la implementación de metodologías para realizar eficientemente la discriminación n/γ [25–28], el uso de códigos basados en el método de Monte Carlo [29–32], entre otros.

A pesar de ser ampliamente utilizado en laboratorios de investigación, el centellador NE-213 (y sus equivalentes comerciales) ha sido usado de manera muy reducida en aplicaciones de campo debido a que éste es tóxico e inflamable. Desde el punto de vista de la seguridad en el área de trabajo estos son dos puntos desfavorables. Es por ello que recientemente se han dirigido esfuerzos para desarrollar centelladores orgánicos con capacidades de discriminación n/γ que presenten propiedades físico-químicas favorables para ser implementados en aplicaciones de campo. Eljen Technology ha desarrollado recientemente un centellador líquido (EJ-309) que presenta baja toxicidad, posee un punto de ignición alto (~ 144 °C) e incluso es biodegradable.

Rápidamente se observó que diversos grupos de investigación comenzaron a estudiar la posibilidad de usar este centellador en aplicaciones de seguridad nacional. Pozzi et al. (2009) [33] mostraron que a partir del análisis de los espectros en emisión de luz de neutrones y fotones gammas, medidos con un arreglo de 6 detectores EJ-309, se pueden distinguir fácilmente muestras de óxido de plutonio (PuO_2) de una fuente de ^{252}Cf . Lavietes et al. (2010) [34] hicieron un conjunto de experimentos en el ámbito del desarrollo y la implementación de nuevos sistemas de seguridad en plantas de procesamiento y fabricación de combustible nuclear. Estos investigadores obtuvieron resultados satisfactorios acerca del desempeño de un detector EJ-309 en la detección de neutrones y fotones gamma implementando la técnica de discriminación por forma de pulsos. Recientemente Pawelczak et al. (2013) [35] estudiaron las capacidades de discriminación n/γ de un centellador EJ-309 contenido en una celda cilíndrica de 4" de diámetro por 3" de espesor. En particular, en dicho trabajo se examinó la distorsión de la forma de los pulsos causada por la longitud del cable que conecta el ánodo del PMT con la electrónica de procesamiento y su influencia sobre el parámetro de discriminación

n/γ . Para tener un control a distancia del sistema (de interés en aplicaciones de campo) usualmente se requieren cables largos, de por lo menos una decena de metros. Los resultados presentados en [35] muestran que la figura de mérito disminuye en 10 % cuando se usan cables de 13,7 m en comparación a cuando se usan cables de 0,6 m. Esto ocurre siempre y cuando el ancho de las ventanas de integración de los pulsos sean optimizadas en cada caso.

Casi en paralelo aparecen en la literatura un conjunto de estudios acerca de la caracterización del centellador EJ-309. Takada et al. (2011) [36] obtuvieron las funciones que describen la emisión de luz producida por protones, deuterones y partículas α en un centellador EJ-309. Las dimensiones de la celda cilíndrica usada para contener el centellador fueron 121,7 mm de diámetro por 121,7 mm de espesor. Las mediciones se realizaron en el ciclotrón del *National Institute of Radiological Sciences (NIRS)*, *Japón* y consistieron en hacer incidir un haz de protones, deuterones y partículas α (con energía cinéticas máximas de 70, 50 y 100 MeV respectivamente) sobre el volumen del centellador. La curva obtenida para la emisión de luz producida por protones fue utilizada para modelar (con *MCNPX 2.6*) la respuesta para neutrones de un detector tipo *Phoswich* compuesto por un centellador EJ-309 cubierto por un centellador plástico EJ-299-13, este último posee una constante de tiempo mucho más grande que la del EJ-309. Se midieron las respuestas del detector para neutrones producidos bombardeando un blanco de litio con protones con energías entre 10 – 80 MeV. Se encontró una buena correspondencia entre los resultados experimentales y los simulados con MCNPX. Enqvist et al. (2013) [37] midieron las funciones que describen la emisión de luz producida por protones en tres detectores EJ-309 cilíndricos de diferentes dimensiones. Los diámetros de los detectores estudiados fueron 12,7, 7,6 y 7,6 cm y sus espesores fueron 12,7, 7,6 y 5,1 cm respectivamente. Las mediciones se realizaron con un espectro de neutrones continuo producido por la reacción $^{27}\text{Al}(d, n)$ ($E_d = 7,44$ MeV). El análisis de las mediciones se hizo siguiendo el procedimiento propuesto por Kornilov et al. [24]. Los autores encontraron que, aunque las características de los PMT's son similares, las funciones que describen la emisión de luz dependen de las dimensiones del detector. Es preciso mencionar que las funciones de emisión de luz reportadas en [36,37] obedecen a la expresión exponencial presentada en la ec. 2.10 (con $D = 1$).

Con las funciones de emisión de luz reportadas en [37], Naeem et al. (2013) [38] modelaron con *GEANT4 9.5* y *MCNPX-PoliMi 2.0* la respuesta para neutrones (monoenergéticos y emitidos por una fuente de ^{252}Cf) de varios detectores EJ-309. Estos investigadores encontraron una buena correspondencia entre las mediciones y las simulaciones realizadas con ambos códigos.

Tal como se discute en [39] los detectores de neutrones utilizados en aplicaciones de seguridad nacional deben ser capaces de detectar neutrones en una zona con un alto

fondo gamma. El principal problema en esta situación es que los eventos correspondientes a pulsos apilados se confunden con eventos correspondientes a neutrones [40, 41]. Swiderski et al. (2011) [40], usando una electrónica de procesamiento de pulsos analógica, mostraron que aunque se implemente un circuito para rechazar los pulsos apilados es necesario blindar el detector con plomo y/o estaño (para atenuar el flujo de fotones gamma sobre el detector) para lograr reducir considerablemente los eventos clasificados erróneamente como eventos de neutrones. Por otra parte Stevanato et al. (2012) [41], haciendo uso de la adquisición y procesamiento digital de los pulsos con un *digitizer* CAEN V1720, diseñaron un algoritmo para rechazar los pulsos apilados en los centelladores EJ-301 y EJ-309. El algoritmo se implementó para identificar los eventos de neutrones provenientes de una fuente débil de ^{252}Cf en un ambiente con un fondo gamma alto (producido por una fuente de ^{137}Cs). Los resultados obtenidos fueron satisfactorios ya que los requerimientos exigidos por las normas internacionales fueron cumplidos.

Los centelladores orgánicos cargados con ^{10}B han sido ampliamente usados en el pasado, entre otras cosas, para hacer espectrometría de neutrones (usados en modo *capture-gated*) [42] y para la detección de anti-neutrinos electrónicos [43, 44], sin embargo, desde hace algún tiempo este tipo de detectores ha despertado interés en la caracterización de fuentes isotópicas de neutrones debido a sus capacidades para detectar simultáneamente fotones gammas, neutrones rápidos y neutrones térmicos [45, 46] implementando la discriminación por forma de pulsos. Esta misma propiedad ha hecho que sea considerado incluso para aplicaciones de seguridad nacional [47, 48].

Jastaniah et al. (2004) [49] desarrollaron algoritmos para implementar la discriminación n/γ en diversos centelladores orgánicos a partir del procesamiento digital de los pulsos, además, aplicaron esta técnica de análisis para desarrollar un monitor de neutrones rápidos basado en los eventos “*capture-gated*” que se producen en un detector BC-523A (cargado con 4,41 % de ^{10}B), el cual posee un volumen de 685 cm^3 . Estos autores reportaron un tiempo característico de captura (τ) para este detector de $(470 \pm 80)\text{ ns}$, el cual está en excelente correspondencia con el modelo simple presentado en la ec. 1.1, a partir del cual se evidencia que el tiempo de captura sólo depende de: la densidad de núcleos de ^{10}B en el centellador ($N_{^{10}\text{B}}$), la sección eficaz de la reacción $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ para $E_n = 0,025\text{ eV}$ ($\sigma \sim 3870\text{ b}$) y la rapidez de un neutrón térmico ($v = 2,2 \times 10^5\text{ cm/s}$). Finalmente, Jastaniah et al. (2004) reportaron que el τ de un detector BC-523A más pequeño (105 cm^3) exhibe un valor muy similar al tiempo de captura correspondiente al detector de mayor volumen (685 cm^3). Este último resultado contrasta con lo publicado por Kamykowski (1990) [50] en donde se evidencia que el tiempo de captura del detector plástico BC-454 (cargado con 5 % de boro natural, es decir, 1 % de ^{10}B) depende del volumen del detector, más aún, el valor de τ se va

aproximando al valor predicho por el modelo simple (ec. 1.1) cuando el volumen del detector va incrementando.

$$\tau = [N_{10B}\sigma v]^{-1} \quad (1.1)$$

Flaska et al. (2009) [3] presentaron una caracterización de la respuesta de un detector BC-523A, y mostraron que los pulsos correspondientes a capturas neutrónicas pueden ser distinguidos fácilmente de los pulsos correspondientes a neutrones rápidos, haciendo uso del procesamiento digital de los pulsos con la finalidad de implementar el método de discriminación basado en la integración de la carga. Sin embargo, los resultados presentados en [3] muestran que en un gráfico de la fracción de luz retardada (parámetro PSD) en función de la emisión total de luz de cada evento, los eventos correspondientes a capturas neutrónicas se ubican por encima de los eventos correspondientes a neutrones rápidos (ver 4.44). Este resultado contrasta con lo observado por otros autores con detectores iguales o de características similares [44, 47, 49, 51]. Es por ello que uno de los objetivos de esta tesis es caracterizar un centellador EJ-339A (cargado con 4,6 % de ^{10}B) para fijar posición en este tema. Flaska et al. (2009) [3] también determinaron, por medio de experimentos y simulaciones por Monte Carlo, el tiempo de captura del detector BC-523A, obteniendo como resultados 973 ns y 703 ns respectivamente. Los autores sostienen que la diferencia entre el valor predicho por el modelo simple (ec. 1.1) y el medido experimentalmente se debe principalmente a los errores que se comenten clasificando los eventos y al tiempo muerto del sistema de adquisición.

Swiderski et al. (2010) [51] hicieron una comparación de la respuesta de tres centelladores orgánicos cargados con diferentes cantidades de ^{10}B : BC-523A2 (2 %), EJ-339A2 (2,5 %) y EJ-309B5 (4,6 %). En dicho estudio el procesamiento de los datos se realizó con electrónica analógica. La discriminación entre eventos de fotones gamma, neutrones rápidos y capturas neutrónicas se realizó utilizando el método del *zero-crossing point*. Se encontró que los centelladores con menor concentración de ^{10}B exhiben mejores capacidades de discriminación entre los eventos de captura neutrónica y el ruido. El pico de capturas neutrónicas (en el espectro de emisión total de luz) se observó a 60 keVee para los centelladores BC-523A2 (2 %) y EJ-339A2 (2,5 %). Sin embargo, los mejores resultados se obtuvieron con el detector EJ-309B5, en éste se observó el pico de capturas neutrónicas en aproximadamente 100 keVee, esto permitió una mejor discriminación entre estos eventos y los correspondientes a neutrones rápidos y fotones gamma. El centellador EJ-309B5 está compuesto por líquidos que poseen propiedades favorables (no es inflamable) en comparación a los otros, esto lo hace ideal para usos comerciales en el ámbito de la seguridad nacional. Finalmente, del estudio realizado por Swiderski et al. (2010) [51] se obtuvo que el efecto de *quenching* de la

emisión de luz producida por los eventos de captura neutrónica se debe principalmente a dos aspectos: la composición de los líquidos (relación $H:C$) y las características del compuesto que contiene boro.

Es bien conocido que los centelladores orgánicos (líquidos y plásticos) representan una solución eficaz y económica a diversos problemas que involucran la detección de neutrones. Sin embargo, casi todos los centelladores orgánicos con capacidades de discriminación n/γ que se encuentran disponibles en el mercado son de estado líquido, además, la mayoría de éstos poseen propiedades desfavorables (son tóxicos e inflamables) que hacen difícil su implementación en aplicaciones de campo. Es por esto que recientemente se han realizado esfuerzos para desarrollar centelladores orgánicos plásticos (de estado sólido) con capacidades de discriminación n/γ [52–54]. De hecho, a principios de 2013 la empresa Eljen Technology introdujo por primera vez al mercado un centellador plástico con capacidades de discriminación n/γ (EJ-299-33). Las ventajas que ofrecen estos centelladores plásticos sobre los líquidos en lo que respecta a los aspectos de seguridad son obvios, sin embargo, es necesario estudiar el desempeño de estos centelladores plásticos (capacidad de discriminación, eficiencia, entre otras) y compararlo con el de los centelladores líquidos con la finalidad de evaluar sus posibles usos.

Pozzi et al. (2013) [55], utilizando procesamiento digital de pulsos, compararon las capacidades de discriminación n/γ entre un detector plástico EJ-299-33 y un centellador líquido EJ-309 (ambos con iguales dimensiones, 5,08 cm de diámetro por 5,08 cm de espesor). Los autores encontraron que el detector EJ-299-33 exhibe una discriminación n/γ aceptable (FoM = 0,9 para un umbral en emisión de luz de 120 keVee), sin embargo, ésta es inferior a la del centellador EJ-309. Además, encontraron que la eficiencia de conteo total para neutrones del detector EJ-299-33 es menor que la del centellador EJ-309, esto se determinó haciendo una comparación directa entre los espectros en tiempo de vuelo de los neutrones emitidos por una fuente de ^{252}Cf medidos con ambos detectores.

Nyibule et al. (2013) [56] determinaron las funciones de emisión de luz de un detector EJ-299-33 (de 5 cm de diámetro por 5 cm de espesor) correspondientes a un conjunto de 11 iones con energías cinéticas que arriban hasta 20 AMeV. Los iones corresponden a isótopos que van desde el ^1H hasta ^{12}C . Se evidenciaron los potenciales usos de este centellador, tanto en ciencia como en ingeniería, debido a las diferencias observadas en la forma de los pulsos producidos por las diferentes partículas. Además, se remarcó la idea de usar este detector en situaciones donde sea necesaria la discriminación n/γ ya que se encontraron valores para la FoM iguales a 0,76; 2,0 y 2,8 para umbrales en emisión de luz iguales a 200, 500 y 900 keVee respectivamente. Finalmente, se encontró que es difícil alcanzar una buena discriminación entre iones más pesados

utilizando sólo la respuesta del detector EJ-299-33.

Además de los centelladores orgánicos cargados con conversores de neutrones térmicos (^{10}B , ^6Li , Gd), los detectores basados en la combinación del centellador $\text{ZnS}(\text{Ag})$ con el ^6LiF han venido ofreciendo una solución económica y eficaz al problema de la detección de neutrones térmicos en aplicaciones tales como: radiografías con neutrones [57], dispersión de neutrones térmicos [58,59], detección de antineutrinos [60], entre otras. Debido a la excelente respuesta que ofrece este tipo de detector en presencia de un fondo gamma intenso, en este trabajo se propone usarlo en la identificación de fuentes de neutrones blindadas. El conjunto de aplicaciones en las cuales se han podido implementar estos detectores ha llevado a la comunidad científica a realizar estudios para caracterizar su respuesta. Por ejemplo, Wu et al. (2013) [59] estudiaron la respuesta de tres detectores comerciales, basados en $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{LiF}$, con diferentes relaciones de masa entre el $\text{ZnS}(\text{Ag})$ y el ^6LiF . Se encontró que el que exhibe mayor eficiencia de detección es el que posee una relación 3:1. Un estudio similar fue realizado por Kojima et al. (2004) [57] quienes compararon la eficiencia entre un detector $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{LiF}$ y otros basados en $\text{ZnS}(\text{Ag})/^{10}\text{B}_2\text{O}_3$, encontrando un valor más elevado en el primer caso.

Conocer los tiempos de decaimiento de la molécula de $\text{ZnS}(\text{Ag})$, en particular cuando es excitada por partículas α , es importante por dos razones, permite describir de una manera precisa la cinemática de recombinación de la molécula y por otra parte permite hacer un procesamiento adecuado de los pulsos de salida de los detectores de neutrones basados en $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{LiF}$. En la actualidad las empresas que ofrecen comercialmente este tipo de detector reportan que el tiempo de decaimiento de la componente rápida está entre $0,2 - 0,25 \mu\text{s}$. Información un poco más detallada acerca de los tiempos de decaimiento del centellador $\text{ZnS}(\text{Ag})$ cuando es excitado por partículas α fue publicada por Kraitor et al. (1969) [61], quienes reportaron tres componentes de decaimiento de $0,032$; $0,2$ y $2,6 \mu\text{s}$. Esta información se obtuvo para un detector en particular (*K-430 Phosphor*) ajustando una suma de exponenciales (ver ec. 4.7) al perfil temporal de los pulsos de salida producidos por partículas α emitidas por muestras de uranio natural.

Mikhailik et al. (2013) [62] estudiaron las propiedades luminiscentes y de centelleo de un detector basado en $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{LiF}$ cuando es excitado por fotones ultravioletas de $4,1 \text{ eV}$ y por partículas α de $5,5 \text{ MeV}$ en un rango de temperaturas entre $7 - 295 \text{ K}$. Se observaron tres componentes de decaimiento, más lentas que las reportadas en [61], de aproximadamente 4 , 17 y $100 \mu\text{s}$. Se observó un efecto marginal de disminución del tiempo de decaimiento de la componente más rápida a medida que disminuye de la temperatura. No se observaron cambios importantes ni en el espectro de emisión ni en las demás componentes de decaimiento en función de la temperatura.

Kubota et al. (2004) [63] cuantificaron y reportaron dos componentes de decaimien-

to para el centellador $ZnS(Ag)/{}^6LiF$ utilizando los pulsos de salida producidos por neutrones. Los autores definieron las componentes de decaimiento rápida y lenta como el tiempo en el cual la intensidad de luminiscencia (integral del pulso) alcanza la mitad de su valor total en dos ventanas de tiempo, desde $0 - 0,4 \mu s$ (para la componente rápida) y desde $0 - 4 \mu s$ (para la componente lenta). Los valores reportados para cada componente fueron $0,223$ y $1,77 \mu s$.

1.2. Planteamiento y Justificación del Problema

Entre 1993 y 2013 se reportaron un total de 2477 incidentes en la Base de Datos de Incidentes y Tráfico de Materiales Radiactivos del Organismo Internacional de Energía Atómica (*IAEA Incident and Trafficking Database: Incidents of nuclear and other radioactive material out of regulatory control*). De todos estos incidentes, 424 están relacionados con posesión no autorizada de materiales nucleares (uranio, plutonio, torio, etc.) y fuentes radiactivas (entre las más comunes están ^{192}Ir , ^{137}Cs y ^{241}Am) y su uso en actividades criminales. 663 incidentes están relacionados con la pérdida o robo tanto de materiales nucleares como de fuentes radiactivas, 1337 incidentes tienen que ver con otros eventos como por ejemplo la recuperación de fuentes huérfanas, posesión no autorizada de materiales radiactivos, entre otros. El resto de incidentes no han podido ser categorizados en ninguno de los tres grupos antes mencionados. La información contenida en esta base de datos demuestra que actualmente persisten problemas con el tráfico ilícito, pérdidas, robos y eventos no autorizados relacionados con materiales nucleares y fuentes radiactivas. Además, esto indica que los sistemas de control y de seguridad en las instalaciones donde se trabaja con estos tipos de materiales son vulnerables y deben ser fortalecidos.

Un punto importante que se ha hecho notar en los datos reportados por el OIEA es que a medida que ha aumentado la implementación de sistemas de monitoreo y detección de materiales radiactivos en zonas como fronteras, puertos, aeropuertos, entre otras, el número de incidentes reportados también ha incrementado. Lejos de ser una mala noticia, esto refleja la importancia del desarrollo y la implementación de este tipo de sistemas para evitar consecuencias mayores. Sin embargo, en este punto surge otro problema, ya que usualmente este tipo de sistemas está constituido principalmente por detectores de radiación gamma y detectores de neutrones. Estos últimos son sumamente importantes para la detección de materiales nucleares. Hasta hace pocos años el detector de neutrones comúnmente usado en estos sistemas era el contador proporcional basado en ^3He , sin embargo, la creciente demanda de este producto, no sólo para aplicaciones de seguridad nacional sino para industria, medicina e investigación básica, ha causado una escasez y un aumento de precio del mismo. Para tener una idea, *GE Reuter Stokes* (una de las grandes compañías que producen los detectores basados en ^3He) estimó en 2009 que para los siguientes años la demanda de ^3He estaría entre 40 – 70 mil litros/año, mientras que la producción sería entre 10 – 20 mil litros/año. Esto trajo como consecuencia que los precios de ^3He se dispararan desde \$100/litro a \$2000/litro. Todo esto ha motivado a la comunidad científica a dirigir esfuerzos hacia el desarrollo de nuevos detectores de neutrones que puedan sustituir a los detectores basados en ^3He , sobre todo en las aplicaciones de seguridad nacional que son las que más demanda produce. De hecho, Kouzes et al. (2010) [64] propusieron cuatro tipos

de detectores de neutrones los cuales pueden sustituir a los detectores de ^3He en los sistemas que existen actualmente. Estos detectores son: 1) contadores proporcionales basados en BF_3 , 2) *boron-lined neutron detectors*, los cuales consisten en un compuesto con boro depositado en la superficie interna de un tubo de metal que contiene un gas inerte, 3) fibras de vidrio cargadas con litio y 4) fibras plásticas cubiertas con $\text{ZnS}(\text{Ag})/{}^6\text{Li}$.

Por todo lo mencionado anteriormente se justifica la elaboración de este trabajo, en el cual se realizó la caracterización completa de un conjunto de centelladores orgánicos modernos (líquidos y sólidos) con capacidades de discriminación n/γ , con la finalidad de proponer un sistema compacto de detección de neutrones y fotones gamma compuesto por este tipo de detectores y por electrónica nuclear basada en *digitizers*. El instrumento ha sido concebido para aplicaciones de seguridad nacional (detección de materiales nucleares y fuentes radiactivas), pero también puede ser usado en investigación y ciencias aplicadas.

En lo que respecta al ámbito local, este trabajo tiene gran importancia ya que actualmente, y en el futuro cercano, en el Laboratorio de Física Nuclear de la Universidad Simón Bolívar se están llevando a cabo una serie de proyectos de investigación los cuales requieren de especialistas en instrumentación nuclear, detectores de radiación (para gamma y neutrones), modelización por Monte Carlo, entre otras áreas. Es de hacer notar que este trabajo de tesis está basado precisamente en las áreas de interés antes mencionadas. Estos proyectos de investigación involucran, entre otras cosas, el desarrollo de metodologías de procesamiento digital de pulsos para implementar un sistema anti-Compton en un detector de HPGGe tipo pozo que será usado en estudios de geocronología [65, 66], la implementación de la técnica de discriminación α/β en medidas realizadas con centelladores líquidos para estudios de hidrogeología y datación por ${}^{14}\text{C}$ [67], y finalmente, el desarrollo de detectores de neutrones y de radiación gamma para el desarrollo de una herramienta de sondeo para perfilaje estratigráfico de pozos petroleros y aplicaciones en hidrogeología [68].

CAPÍTULO II

MARCO TEÓRICO

2.1. Fundamentos de la Emisión de Luz en Centelladores Orgánicos

En los centelladores orgánicos el proceso de centelleo se relaciona con las transiciones electrónicas en la estructura de niveles de energía de una molécula simple, por esta razón, éste es observado para una especie molecular dada independientemente de su estado físico (líquido como parte de una solución, sólido policristalino, vapor, entre otros). El caso opuesto se presenta en los centelladores inorgánicos, por ejemplo el ioduro de sodio $NaI(Tl)$, los cuales requieren de una estructura cristalina regular para que el proceso de centelleo ocurra [1].

La mayoría de los centelladores orgánicos usados en la actualidad están basados en moléculas con una estructura electrónica tipo π (π -*electron structure*). Esta estructura está compuesta por dos conjuntos de estados, *singletes* (estados con spin igual a 0), denotados como S_0, S_1, S_2, \dots y *tripletes* (estados con spin igual a 1), denotados como T_0, T_1, T_2, \dots (ver Fig. 2.1). Para las moléculas de interés, la diferencia en energía entre los estados S_0 y S_1 tiene un valor aproximado entre 3 y 4 eV , mientras que la diferencia en energía entre los estados singletes superiores normalmente es menor. También, como puede observarse en la Fig. 2.1, cada singlete está subdividido en un subconjunto de niveles ($S_{01}, S_{11}, S_{20}, \dots$) separados por un ancho en energía mucho más fino (aproximadamente 0,15 eV). Estos niveles corresponden a estados vibracionales de la molécula. S_{00} representa el estado vibracional más bajo del estado base electrónico, S_0 , de la molécula. A temperatura ambiente (300 $^{\circ}K$) la mayoría de las moléculas se encuentran en el estado S_{00} , ya que la diferencia en energía entre los estados vibracionales de la molécula es mucho mayor que la energía de agitación térmica (0,025 eV).

Cuando una partícula cargada incide sobre el volumen del centellador, parte de la energía cinética transferida por ésta se invierte en la excitación de las moléculas del centellador, poblándose de esta manera los estados electrónicos S_1, S_2, S_3, \dots . Este proceso es esquematizado en la Fig. 2.1 con las flechas que apuntan hacia arriba. Luego de algunos picosegundos, todos los singletes superiores se desexcitan hacia el estado S_1 a través de transiciones internas que no involucran la emisión de luz [1, 69]. Por lo tanto, el efecto neto del proceso de excitación de una de estas moléculas es la población

del estado S_{10} .

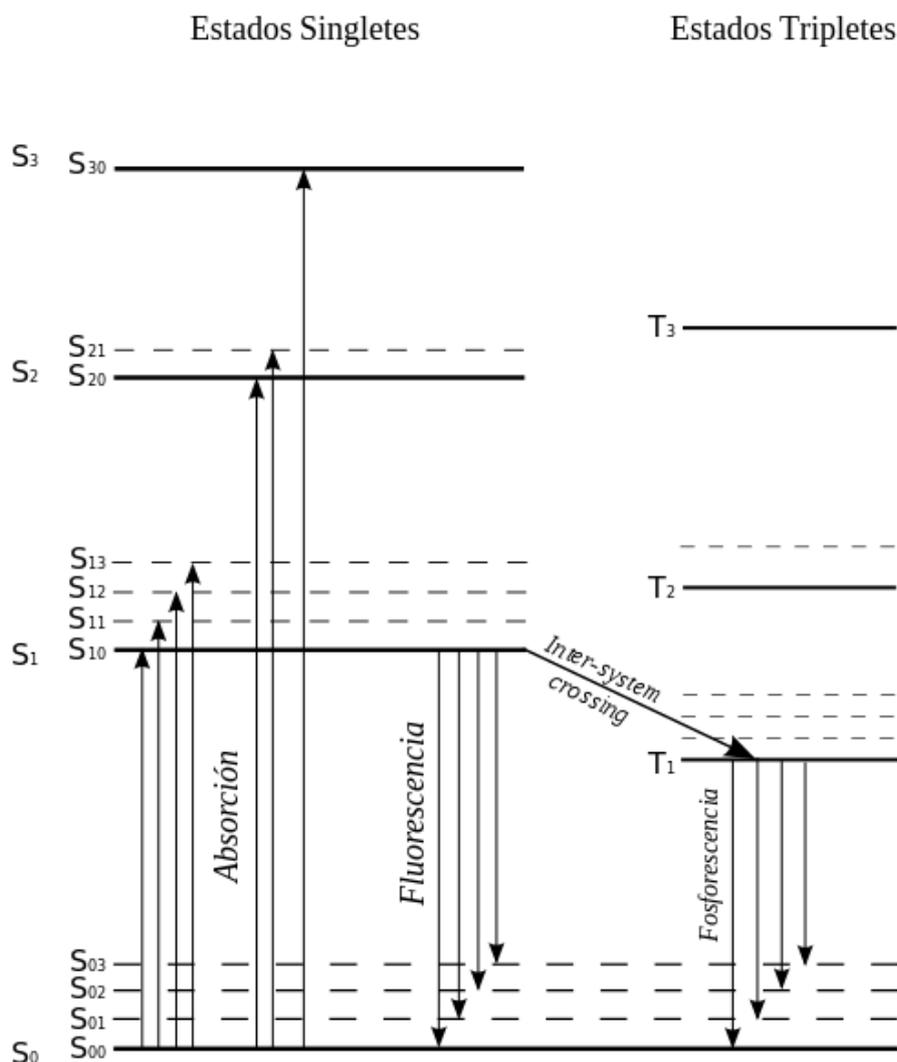


Figura 2.1. Esquema de niveles de energía de una molécula orgánica con una estructura electrónica tipo π . Las flechas indican las transiciones electrónicas de interés para la emisión de luz. Nótese que el nivel S_{10} es donde se acumulan los electrones participantes en el proceso de excitación-desexcitación. Figura adaptada de [1]

La componente principal de la emisión de luz (o centelleo) proviene de las transiciones entre el estado S_{10} y alguno de los estados vibracionales del estado base, esta componente se denomina *fluorescencia* (ver Fig. 2.1). Si denotamos con τ a la constante de decaimiento del estado S_{10} , entonces la intensidad de luz emitida $I(t)$, por fluorescencia, en el instante de tiempo t obedece una ley exponencial del tipo:

$$I(t) = I_0 e^{-t/\tau} \quad (2.1)$$

Para la mayoría de los centelladores orgánicos τ es del orden de los nanosegundos

[1], es por ello que, en este tipo de centelladores, la fluorescencia se conoce como la componente rápida de la emisión total de luz. Debido a que la mayoría de las emisiones de fluorescencia son de menor energía que la energía mínima de excitación (excepto por la transición $S_{10} - S_{00}$), es común considerar a los centelladores orgánicos como transparentes a su propia emisión.

Por otra parte, existen transiciones denominadas *inter-system crossing* las cuales son las responsables de poblar los estados tripletes desde el estado S_{10} (ver Fig. 2.1). La constante de tiempo característica del estado T_1 ($\sim 10^{-3}$ s) es mucho más grande que τ . La emisión de luz durante este proceso de desexcitación es conocida como *fosforescencia* (ver Fig. 2.1). Es de hacer notar que la energía (longitud de onda) de los fotones emitidos en este proceso es menor (mayor) que la correspondiente de los emitidos en la fluorescencia. Otro hecho interesante ocurre cuando moléculas que se encuentran en el estado T_1 pasan por agitación térmica o por interacciones bimoleculares al estado S_1 y luego decaen al estado base S_0 . En este caso, la luz emitida se conoce como *fluorescencia retardada*. En la sec. 2.2 se profundizará en la importancia de la emisión de luz retardada en la técnica de discriminación de partículas, la cual está basada en el análisis de la forma de los pulsos de salida provenientes de los fotosensores acoplados a centelladores orgánicos.

Solamente una pequeña fracción de la energía cinética depositada por una partícula cargada dentro del volumen del centellador es convertida en luz (energía fluorescente), el resto es disipada principalmente en forma de vibración local (calor). En ese sentido, se define la *eficiencia de centelleo* como la fracción de la energía cinética de la partícula incidente que se convierte en luz, fundamentalmente ésta depende del tipo de centellador, del tipo de partícula y de la energía cinética con la que incide. Desde el punto de vista práctico, se desea que este parámetro sea tan grande como sea posible, sin embargo, existen diversos mecanismos que conducen a una disminución en la cantidad de luz producida y registrada por el fotosensor que se acopla al centellador, entre éstos se pueden mencionar: 1) la luz puede ser atenuada en el volumen del detector, esto ocurre en particular si el volumen del detector es grande. 2) las moléculas excitadas pueden relajarse por medio de mecanismos alternos los cuales no están vinculados a la emisión de luz (vibración molecular, recombinación, entre otros) y, 3) las partículas incidentes de rango corto pueden dañar a las moléculas del centellador (por ejemplo protones energéticos, partículas alfa e iones pesados), por lo que en este caso parte de la energía cinética de la partícula incidente no se estaría invirtiendo en la excitación de las moléculas del centellador. El efecto producido por estos mecanismos mencionados anteriormente se asocian al término *extinción o quenching*. Por ejemplo, en la fabricación de centelladores orgánicos líquidos es importante eliminar las impurezas, tales como el oxígeno disuelto, ya que éstas favorecen mecanismos alternos de desexcitación.

La emisión de luz causada por la interacción de electrones con algunos centelladores orgánicos, tales como el antraceno y el estilbeno, muestra una correlación lineal con la energía cinética inicial de los electrones [1]. Mientras que, la emisión de luz causada por la interacción de partículas cargadas pesadas, tales como protones y partículas alfa, tiene una dependencia no lineal con la energía cinética inicial de la partícula. Además, a paridad de energía cinética, la cantidad de luz emitida por la excitación causada por electrones es siempre mayor que la causada por partículas cargadas pesadas [1]. Debido a la dependencia de la respuesta del centellador con el tipo de partícula se utiliza el término *MeV electron equivalent (MeVee)* para cuantificar la emisión de luz causada por diferentes partículas en un determinado centellador (con una cierta geometría). Por definición un electrón con energía cinética igual a 1 *MeV* produce 1 *MeVee* de luz (siempre y cuando deposite toda su energía cinética dentro del volumen del centellador).

Como primera aproximación, en ausencia de *quenching*, se puede decir que la cantidad de luz (o energía fluorescente) emitida por unidad de longitud, $\frac{dL}{dx}$, por un centellador orgánico es proporcional a la pérdida de energía por unidad de longitud de la partícula incidente $\frac{dE}{dx}$.

$$\frac{dL}{dx} = S \frac{dE}{dx} \quad (2.2)$$

En la ec. 2.2 S es una constante que corresponde a la eficiencia de centelleo.

Sin embargo, la relación comúnmente conocida y postulada por Birks [69], está basada en la suposición de que una alta densidad de ionización a lo largo de la trayectoria de la partícula causa daños a las moléculas del material, lo que trae como consecuencia una disminución en la eficiencia de centelleo, es decir, *quenching*. Entonces, suponiendo que la densidad de moléculas dañadas a lo largo de la trayectoria de la partícula es proporcional a la densidad de ionización ($B \frac{dE}{dx}$) (B es una constante de proporcionalidad), y que alguna fracción k de la densidad de moléculas dañadas corresponderá al *quenching*, la ecuación 2.2 se modifica según la expresión:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (2.3)$$

La ecuación 2.3 es conocida como la *fórmula de Birks* [69].

Conviene estudiar a partir de la ecuación 2.3 algunos casos particulares interesantes. Por ejemplo, cuando un centellador líquido es excitado por electrones (directamente o por la interacción de fotones gamma), $\frac{dE}{dx}$ es pequeño para valores suficientemente grandes de E (por ejemplo para electrones con $E = 1 \text{ MeV}$ moviéndose en agua con $\rho = 1 \text{ g/cm}^3$, $\frac{dE}{dx} = 1,862 \text{ MeV/cm}$), entonces, la fórmula de Birks predice la siguiente

relación:

$$\left(\frac{dL}{dx}\right)_e = S \left(\frac{dE}{dx}\right)_e \quad (2.4)$$

Por lo tanto, el incremento de emisión de luz por unidad de energía depositada en el medio es constante

$$\left(\frac{dL}{dE}\right)_e = S \quad (2.5)$$

En este régimen la emisión de luz está relacionada linealmente con la energía cinética de los electrones incidentes.

$$L = \int_0^E \frac{dL}{dE} dE = SE \quad (2.6)$$

En el caso de las partículas alfa, $\frac{dE}{dx}$ es muy grande, por ejemplo, para una partícula alfa de 1 *MeV* que se mueve en agua ($\rho = 1 \text{ g/cm}^3$) éste es igual a $2,19 \times 10^3 \text{ MeV/cm}$, por lo tanto la ec. 2.3 predice que ocurre una saturación a lo largo de la trayectoria de la partícula:

$$\left(\frac{dL}{dx}\right)_\alpha = \frac{S}{kB} \quad (2.7)$$

El valor apropiado para kB puede ser determinado tomando la relación entre la ec. 2.5 (emisión de luz causada por electrones por unidad de energía perdida a lo largo de la trayectoria) y la ec. 2.7 (emisión de luz causada por partículas alfa por unidad de longitud):

$$kB = \left(\frac{dL}{dE}\right)_e \bigg/ \left(\frac{dL}{dx}\right)_\alpha \quad (2.8)$$

El parámetro kB , definido por la ecuación 2.8, es frecuentemente usado para describir las diferencias entre las emisiones de luz causadas por electrones y partículas cargadas pesadas con la misma energía cinética [1]. Este parámetro (kB) depende de la energía cinética de las partículas, es decir, no tiene un valor constante para todo el rango en energía.

Con la finalidad de presentar diversos modelos para el comportamiento experimental de la emisión de luz en los centelladores orgánicos, algunos autores han propuesto distintas fórmulas semiempíricas [1]. Experimentalmente se mide la emisión de luz (en *MeVee*) causada por una determinada partícula (protones, partículas alfa, entre otras)

en función de la energía cinética con la que ésta incide sobre el centellador. La ec. 2.9 es una de las fórmulas semiempíricas más usadas en el caso de los protones. Ésta en particular está inspirada en la *fórmula de Birks* 2.3.

$$L_p = L_0 \frac{E_p^2}{E_p + L_1} \quad (2.9)$$

Donde L_p representa la emisión de luz (en *MeVee*) producida por la interacción de protón con energía cinética inicial E_p (en *MeV*). L_0 y L_1 son parámetros de ajuste. En trabajos recientes [24, 36, 37] se ha observado el uso de una fórmula de tipo exponencial (ver ec. 2.10) para el ajuste de la función de emisión de luz para protones en centelladores orgánicos.

$$L_p = AE_p - B \left(1 - e^{-CE_p^D} \right) \quad (2.10)$$

Donde A , B , C y D son los parámetros de ajuste en este caso.

2.2. Discriminación por Forma de Pulsos en Centelladores Orgánicos

Como se mencionó en la sección 2.1 la emisión de luz en centelladores orgánicos está compuesta principalmente por una componente rápida (fluorescencia) y una componente retardada (fluorescencia retardada). La componente rápida es la de mayor intensidad, sin embargo, la fracción de luz que aparece en la componente retardada depende de la naturaleza de la partícula que causó la excitación [69]. Esta propiedad se emplea para diferenciar partículas de diferentes tipos (neutrones, gammas, iones pesados, entre otras) que causen una emisión de luz de igual intensidad por parte del centellador. Sobre este hecho está basada la técnica de análisis denominada *Discriminación por Forma de Pulsos*. Esta técnica ha sido implementada en el desarrollo de este trabajo para discriminar entre eventos de fotones gamma, neutrones rápidos y neutrones térmicos.

Tal como fue mencionado en la sec. 2.1 la fracción de luz retardada se origina a partir de las moléculas excitadas en el estado triplete T_1 (ver Fig. 2.1) a lo largo de la trayectoria de la partícula ionizante. Interacciones entre dos de estas moléculas excitadas en el estado T_1 (interacciones bimoleculares) traen como consecuencia que una de ellas pase al estado S_1 (que luego decae produciendo la fluorescencia retardada) y que la otra vaya al estado base S_0 [1]. Estas interacciones bimoleculares dependen del cuadrado de la densidad de moléculas en el estado T_1 [1]. Por lo tanto, es claro que la intensidad de la fluorescencia retardada (componente lenta de la emisión total de luz) debe ser proporcional a la densidad de moléculas excitadas en el estado triplete T_1 a

lo largo de la trayectoria de la partícula, que a su vez es proporcional a la densidad de moléculas excitadas en el estado S_1 . Esto es así ya que las moléculas llegan al estado T_1 principalmente a través del *inter-system crossing* desde el estado S_1 . Teniendo en cuenta que la excitación de las moléculas hacia el estado S_1 depende, entre otras cosas, de la pérdida lineal de energía de la partícula ionizante a lo largo de la trayectoria, $\frac{dE}{dx}$, entonces la intensidad de luz retardada que se observa es mayor para partículas con $\frac{dE}{dx}$ grande [1]. En la Fig. 4.49 se muestran dos pulsos típicos, extraídos por ejemplo del ánodo de un fotomultiplicador acoplado a un centellador orgánico, correspondientes a eventos asociados con un neutrón rápido (protones producidos por dispersiones elásticas) y con un fotón gamma (electrones producidos fundamentalmente por Efecto Compton). Claramente se observa que la fracción de luz retardada del evento asociado a protones (neutrón rápido) es mayor que la del evento asociado a electrones (fotón gamma).

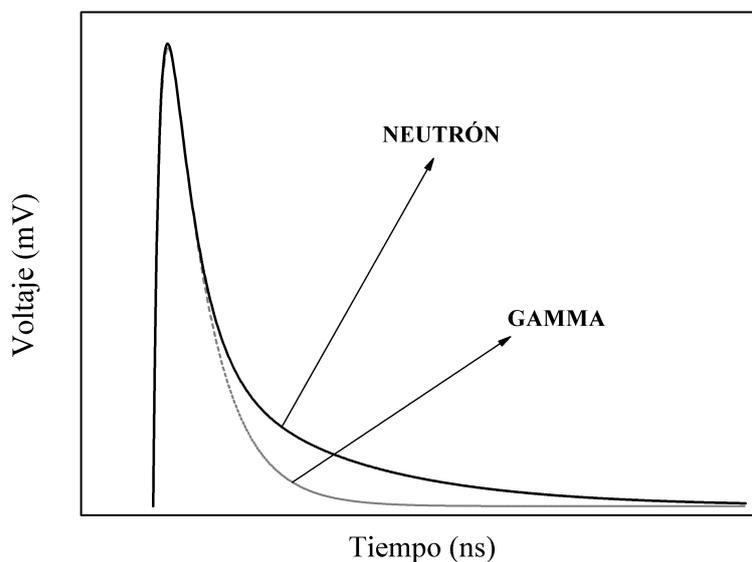


Figura 2.2. Pulsos típicos correspondientes a eventos de neutrones rápidos y fotones gammas en centelladores orgánicos medidos a la salida del ánodo de un fotomultiplicador acoplado a un centellador orgánico

2.3. Figura de Mérito (FoM)

Uno de los parámetros cuantitativos de gran importancia en la aplicación de técnicas de discriminación por forma de pulsos es la *Figura de Mérito (FoM)*. En este caso, la FoM se define como una medida de la capacidad de discriminación del sistema (centellador - electrónica de procesamiento de pulsos) entre diferentes tipos de eventos (por ejemplo entre neutrones y fotones gamma) dentro de una aplicación determinada. Típicamente, cuando se implementa una técnica de discriminación por forma de pulsos,

el resultado de la medición se expresa por medio de un histograma de un *parámetro de forma de los pulsos*, que puede ser por ejemplo la fracción de luz retardada, el tiempo de subida de los pulsos, entre otros. En dicho histograma es posible identificar distribuciones que corresponden a cada tipo de evento involucrado en la detección. Por ejemplo, en la Fig. 2.3 se presenta un histograma idealizado de un parámetro de forma, en el cual observan dos distribuciones gaussianas correspondientes a dos tipos de eventos denotados como *A* y *B*.

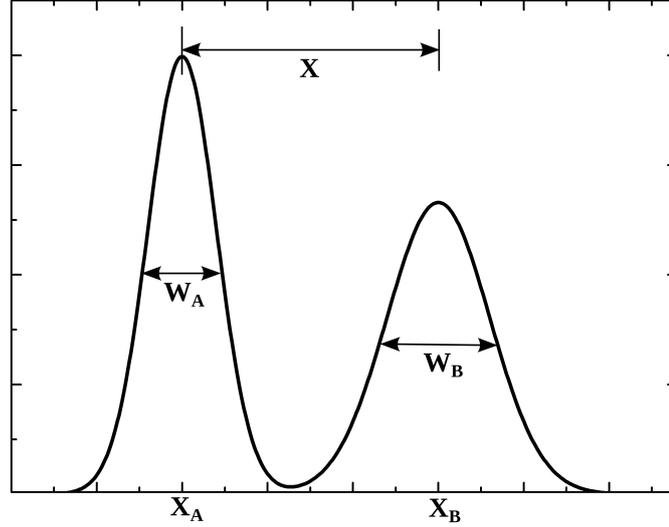


Figura 2.3. Representación de los parámetros de la Figura de Mérito (FoM) en el análisis de discriminación por forma de pulsos

De la Fig. 2.3 se deriva la ecuación que comúnmente se utiliza para determinar la *FoM* y que sigue a continuación [1]:

$$FoM = \frac{X}{W_A + W_B} = \frac{X_B - X_A}{W_A + W_B} \quad (2.11)$$

Donde X_A , X_B , W_A y W_B son los centrosides y los anchos a media altura de las distribuciones correspondientes a cada tipo de evento (ver Fig. 2.3). El error asociado a la *FoM* se determinó siguiendo los procedimientos estándares de propagación de errores (ver ecuación 2.12).

$$\frac{\Delta(FoM)}{FoM} = \left(\frac{(\Delta X_B + \Delta X_A)}{X_B - X_A} \right) + \left(\frac{(\Delta W_A + \Delta W_B)}{W_A + W_B} \right) \quad (2.12)$$

donde ΔX_A , ΔX_B , ΔW_A y ΔW_B son los errores asociados a los centrosides y a los anchos a media altura de las distribuciones correspondientes a cada tipo de evento. Estos valores se determinan aplicando un ajuste gaussiano a cada una de las distribuciones.

En este trabajo se implementó la técnica de discriminación por forma de pulsos utilizando como parámetro de forma de los pulsos la fracción de luz retardada. Ésta se determina haciendo la diferencia entre dos integrales del pulso. Una de ellas corresponde a la emisión total de luz (integral total) y la otra corresponde únicamente a la componente rápida (integral parcial). En la sección 3.4.3 se explica con mayor detalle el procedimiento que se utilizó para implementar dicha técnica en este trabajo de tesis.

2.4. Eficiencia de Detección para Neutrones y Fotones Gamma en Centelladores Orgánicos

En un detector (activo) de radiación se produce un pulso eléctrico por cada partícula o *cuanto* de radiación que interactúa en su volumen activo. En el caso de los neutrones y fotones gamma (partículas neutras) la transferencia de energía en estas interacciones debe ser importante para que se lleve a cabo el proceso de detección eficazmente. Además, teniendo en cuenta que los neutrones y fotones gamma pueden viajar distancias relativamente grandes entre interacciones, conviene definir dos parámetros cuantitativos relacionados con la eficiencia de detección de estas partículas. Estos parámetros permitirán relacionar el número de pulsos medidos con el número de partículas emitidas por la fuente y con el número de partículas que inciden sobre el detector. Se definen la *Eficiencia Total*, ϵ_{tot} , y la *Eficiencia Intrínseca*, ϵ_{int} , de un detector para una determinada partícula (neutrones o fotones gamma) como:

$$\epsilon_{tot} = \frac{\text{Número de pulsos medidos}}{\text{Número de partículas emitidas por la fuente}} \quad (2.13)$$

$$\epsilon_{int} = \frac{\text{Número de pulsos medidos}}{\text{Número de partículas que incidieron sobre el detector}} \quad (2.14)$$

Para un tipo de partícula determinado ϵ_{tot} y ϵ_{int} dependen fundamentalmente de la energía cinética de la partícula incidente y de las propiedades del detector (composición, densidad, entre otros). Sin embargo, a diferencia de la eficiencia intrínseca, la cual es independiente del factor geométrico [1], ϵ_{tot} depende de los detalles de la geometría de medición (por ejemplo: distancia entre la fuente y el detector, geometría de la fuente, entre otros). Es por esta última razón que la eficiencia intrínseca es utilizada para caracterizar y comparar el desempeño de detectores.

Para una fuente isótropa, los dos tipos de eficiencias de detección se relacionan según la expresión: $\epsilon_{tot} = \epsilon_{int}(\Omega/4\pi)$, donde Ω es el ángulo sólido del detector visto desde la

posición de la fuente.

Debido a que este tipo de detectores está compuesto principalmente por elementos químicos con número atómico bajo (H y C) y a que su densidad es aproximadamente $0,9 \text{ g/cm}^3$, existe una probabilidad muy baja de que los fotones gammas sean absorbidos completamente en un volumen pequeño (como por ejemplo un cilindro de 51 mm de espesor por 51 mm de diámetro). En lugar de esto, la respuesta de estos detectores corresponde a la distribución Compton de los electrones que reculan dentro del volumen del detector [1]. Esta distribución es la que predice la fórmula de la sección eficaz de Klein-Nishina (ver ec. 2.15).

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{\pi r_e^2}{m_e c^2 \alpha^2} \left(2 + \frac{s^2}{\alpha^2 (1-s)^2} + \frac{s}{(1-s)} \left(s - \frac{2}{\alpha} \right) \right) \quad (2.15)$$

Donde T es la energía cinética del electrón que recula, $r_e = 2,818 \times 10^{-15} \text{ m}$ es el radio clásico del electrón, $m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ es la energía en reposo del electrón, $\alpha = h\nu/m_e c^2$, $s = T/h\nu$ y $h\nu$ es la energía del fotón incidente.

En el caso de que los fotones gamma incidentes sean monoenergéticos la distribución Compton luce, en teoría, como se muestra en la Fig. 2.4a (sin tomar en cuenta las dispersiones múltiples), por lo tanto, se define la *Eficiencia de Conteo Intrínseca para Fotones Gamma* (para una energía incidente determinada) como aquel valor que toma en cuenta la suma de todos los conteos registrados por el detector, es decir, el área bajo la curva de la Fig. 2.4a. En ocasiones, es común considerar únicamente los conteos que están por encima de cierto umbral en energía, esto se hace con el propósito de filtrar la respuesta de eventos no deseados (ruido, entre otros). En este caso se debe especificar cuál es el umbral en energía con el que se está reportando la *Eficiencia de Conteo Intrínseca para Fotones Gamma*.

El caso de los neutrones es similar al de los fotones gamma ya que la respuesta de los centelladores orgánicos a causa de la interacción de neutrones monoenergéticos obedece a una distribución continua. En este caso la respuesta depende de la distribución en energía de los protones que reculan, éstos son producidos fundamentalmente por las dispersiones elásticas de los neutrones con los núcleos de los átomos de hidrógeno presentes en el centellador. Usando argumentos de Mecánica Clásica y teniendo en cuenta que: las masas del neutrón y del protón son aproximadamente iguales, se inciden neutrones monoenergéticos y que el protón se encuentra en reposo antes de la interacción, la distribución en energía de los protones que reculan es continua y equiprobable, y además, se extiende desde energías cercanas a cero hasta una energía que corresponde aproximadamente a la energía del neutrón incidente. Entonces, la *Eficiencia de Conteo Intrínseca para Neutrones* (para una energía incidente determinada) es aquella que toma en cuenta la suma de todos los conteos registrados por el detector por encima de

cierto umbral en emisión de luz, que por supuesto debe ser especificado en las unidades correspondientes (por ejemplo *MeVee*).

En la práctica, para el caso de los neutrones, la respuesta de estos detectores difiere considerablemente de los aspectos teóricos simples mencionados anteriormente. Algunas de las principales causas son: la emisión de luz no es lineal con la energía cinética de los iones pesados (protones, partículas alfa, entre otros), algunos eventos corresponden a dispersiones múltiples, pueden haber interacciones (dispersiones elásticas, inelásticas, entre otras) con otros núcleos mayoritarios presentes en el centellador (por ejemplo el carbono) y la resolución en energía finita del detector.

2.5. Resolución en Energía y Calibración de los Centelladores Orgánicos

La calibración de los centelladores orgánicos y la determinación de su resolución en energía son dos aspectos que están estrechamente ligados y que han sido materia de estudio en el pasado [1, 70] debido a las características especiales de estos detectores. Es conocido que la emisión de luz depende de la partícula incidente (electrón, protón, alfa, entre otras), y que además, ésta es lineal para electrones sólo con energías cinéticas entre 40 keV y $1,6 \text{ MeV}$ [71]. Como ya se mencionó en la sección 2.4, la respuesta de este tipo de detector a causa de la interacción de fotones gamma obedece a la distribución Compton de los electrones que reulan por las interacciones Compton que ocurren dentro del volumen del detector, por lo tanto, dada la energía del fotón gamma incidente, entonces la energía del borde Compton es conocida con certeza [1]. Sin embargo, la resolución en energía del centellador hace que la posición del máximo de la distribución Compton se desplace hacia energías más bajas. Uno de los métodos para determinar dicho desplazamiento ha sido desarrollado usando simulaciones por Monte Carlo [70], sin embargo, en este trabajo se empleó un método más simple, el cual fue desarrollado por Stevanato et al. [71], y que consiste en:

- Hacer una medición con alta estadística de la emisión de luz producida por una fuente de ^{22}Na ($E_{\gamma,1} = 511 \text{ keV}$ y $E_{\gamma,2} = 1275 \text{ keV}$).
- Construir un conjunto de distribuciones Compton teóricas (con la fórmula de Klein-Nishina, ec. 2.15) para $E_{\gamma,1}$ y $E_{\gamma,2}$ con diferentes aproximaciones gaussianas (aplicadas a cada canal), es decir, con diferentes valores para σ . En la Fig. 2.4 se muestra el efecto que produce la aproximación gaussiana sobre la distribución Compton de Klein-Nishina para $E_{\gamma,1}$ usando distintos valores para σ . La ecuación utilizada para hacer la aproximación gaussiana es de la forma bien conocida:

$$y_G(x) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E-E_c)^2}{2\sigma^2}} \quad (2.16)$$

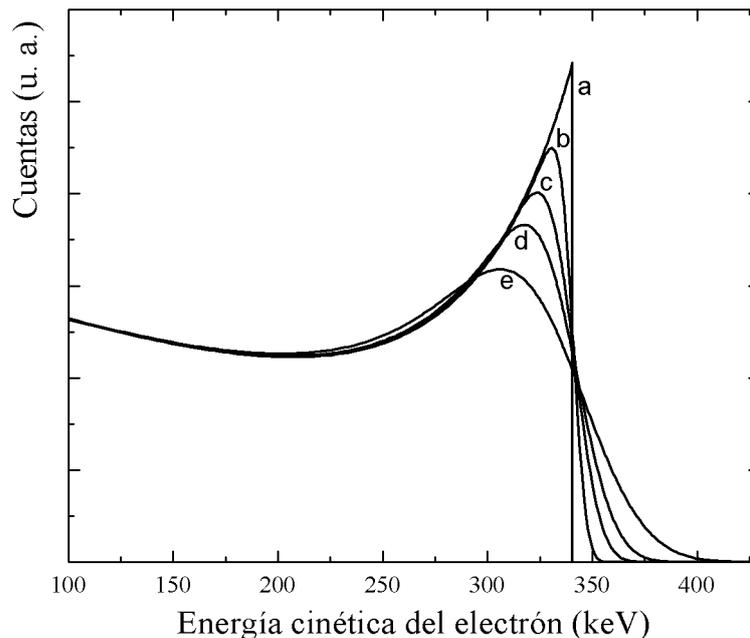


Figura 2.4. Distribuciones Compton teóricas correspondientes a fotones incidentes de 511 keV , (a) sin aplicar el suavizado gaussiano y aplicándolo con distintos valores de σ . (b) $\sigma = 5 \text{ keV}$, (c) $\sigma = 10 \text{ keV}$, (d) $\sigma = 15 \text{ keV}$ y (e) $\sigma = 25 \text{ keV}$

- Determinar el valor de σ que mejor reproduce la distribución experimental haciendo un análisis por χ^2 .

Al encontrar los mejores ajustes para las respuestas experimentales de $E_{\gamma,1}$ y $E_{\gamma,2}$, quedan determinadas las posiciones (en energía) de los nuevos máximos de ambas distribuciones Compton y por ende dos puntos de referencia con los cuales se puede calibrar en energía el detector. Este método ha sido implementado en un detector de HPGe y la calibración obtenida coincidió, dentro de las incertidumbres asociadas, a la calibración estándar (usando los picos de máxima absorción) [71].

El valor encontrado para σ es una buena medida de la resolución en energía del detector. Stevanato et al. [71] encontraron una buena correspondencia entre sus resultados y los presentados por Dietze y Klein (1982) [72], quienes usaron un método basado en el ajuste lineal de la zona decreciente del espectro (por encima del borde Compton) para estimar la resolución del detector. El método usado en este trabajo ofrece una incertidumbre del 10% en la determinación de sigma σ [71].

2.6. Aspectos Fundamentales en la Medición de Tiempos en Centelladores

En un gran número de aplicaciones el instante de tiempo en el cual un cuanto de radiación interacciona con el volumen del detector es de particular interés. La exactitud

con la cual esta información puede ser obtenida depende de las propiedades del detector y del tipo de electrónica que se use para procesar la señal. Los mejores resultados son obtenidos con “detectores rápidos”, es decir, aquellos donde el pulso de voltaje se conforma en el menor tiempo posible. En el caso de detectores con igual tiempo de conformación del pulso, aquellos donde se genera el mayor número de portadores de carga por pulso muestran mejores propiedades temporales [1]. Otro factor que influye en las características temporales de un sistema (detector-electrónica) es el rango dinámico de los pulsos (relación entre amplitud máxima y mínima). Si la amplitud de los pulsos se distribuye en un rango amplio, entonces se perderá exactitud en situaciones que involucren mediciones de tiempos.

La operación fundamental en la medición del tiempo de ocurrencia de un evento en el detector consiste en la generación de un pulso lógico a partir del pulso de salida del detector (por ejemplo, del ánodo de un PMT). Típicamente se asocia el instante de tiempo en el cual inicia a conformarse el pulso lógico al tiempo de ocurrencia del evento en el detector. Sin embargo, existen diversos factores que introducen cierto grado de incertidumbre en este tipo de medición, éstos pueden ser divididos en dos categorías en función del rango dinámico de los pulsos: “*time jitter*” (si la amplitud de los pulsos es constante) y “*amplitude walk*” (si la amplitud de los pulsos está distribuida en un rango amplio).

Las principales fuentes de “*time jitter*” son debidas a las fluctuaciones aleatorias de amplitud y forma de los pulsos alrededor de un valor, causadas por ejemplo por el ruido electrónico, por la naturaleza discreta de la señal eléctrica generada en el detector, entre otras. Mientras que, las fuentes de “*amplitude walk*” son producidas por las diferencias en forma y amplitud de los pulsos, debidas a las características del evento en sí (tipo de partícula que interaccionó, energía depositada, entre otras).

Existen diversos métodos para generar el pulso lógico que lleva la información del tiempo de ocurrencia de un evento en el detector, algunos de éstos son: “*leading edge triggering*”, “*crossover timing*” y “*constant fraction timing*” [1]. Aunque los dos primeros métodos suelen arrojar buenos resultados bajo determinadas condiciones, el tercer método es el más usado en el caso de los centelladores orgánicos por las ventajas que ofrece en lo que respecta a minimizar las fuentes de incertidumbre. Este método consiste en generar un pulso lógico un tiempo fijo después que el pulso de entrada (igual al pulso de salida de un PMT) ha alcanzado una fracción constante de su amplitud. Este instante de tiempo es independiente de la amplitud del pulso de entrada siempre y cuando la forma de éstos, en la región de subida, sea constante (tal como es el caso de los centelladores orgánicos). La unidad de electrónica nuclear que implementa este método se denomina *constant fraction discriminator (CFD)*.

Los pasos requeridos para llevar a cabo la determinación del tiempo de ocurrencia

de un evento a través del método “*constant fraction timing*” se muestran en la Fig. 2.5. En esta figura “ V ” representa sólo la parte anterior del pulso de entrada al CFD, “ fV ” es la misma señal de antes multiplicada por una fracción constante “ f ” (f es siempre menor que 1), “ $-V(t - t_d)$ ” representa la señal V invertida y retrasada un tiempo t_d . f y t_d son parámetros que deben ser ajustados por el operador. Finalmente, el instante de tiempo en el cual el pulso de entrada ha alcanzado una fracción constante de su amplitud coincide con el instante de tiempo en el cual la señal “ $fV - V(t - t_d)$ ” pasa por cero voltios (es decir cruza la abscisa en la Fig. 2.5).

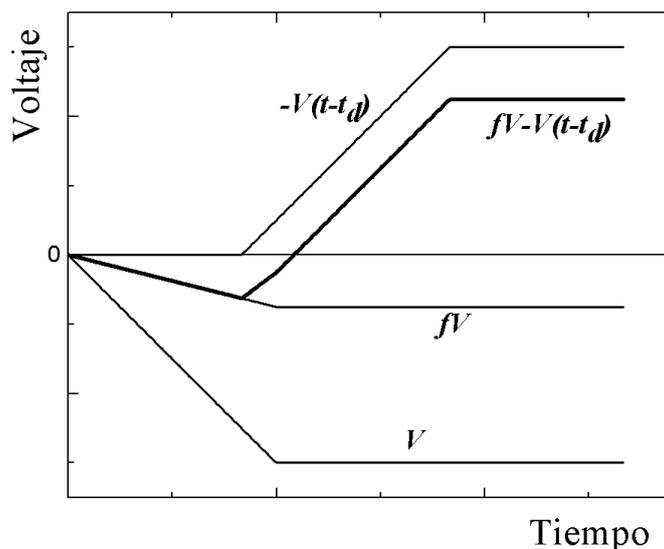


Figura 2.5. Forma del pulso en cada paso del método “*constant fraction timing*”. Para mayor claridad sólo se muestra la parte anterior del pulso

2.6.1. Resolución Temporal

Antes de hablar de resolución temporal conviene mencionar algunos aspectos fundamentales en la medición de intervalos de tiempos. El “*time to amplitude converter* (TAC)” es una unidad de electrónica nuclear que produce un pulso de salida con una amplitud proporcional al intervalo de tiempo entre los instantes de llegada de dos pulsos de entrada denominados “*start*” y “*stop*”. El histograma de la amplitud de los pulsos de salida de un TAC se denomina *espectro temporal*. En la práctica éste puede ser construido enviando el pulso de salida del TAC a un analizador multicanal (MCA).

Un ejemplo simple en el cual se obtiene un espectro temporal consiste en colocar una fuente radiactiva (capaz de emitir por lo menos dos cuantos de radiación detectables por cada desintegración, es decir, en coincidencia) entre dos detectores independientes. Los pulsos de salida de cada detector son enviados a dos CFD (independientes). Luego de retrasar los pulsos de salida de uno de los dos CFD, aquellos que no fueron retrasados

se usan como “start” mientras que los del otro detector se usan como “stop” en un TAC. Finalmente los pulsos de salida del TAC son enviados a un MCA. En la Fig. 2.6 se presenta un esquema de lo explicado anteriormente y el espectro temporal típico que se obtiene en un experimento de este tipo.

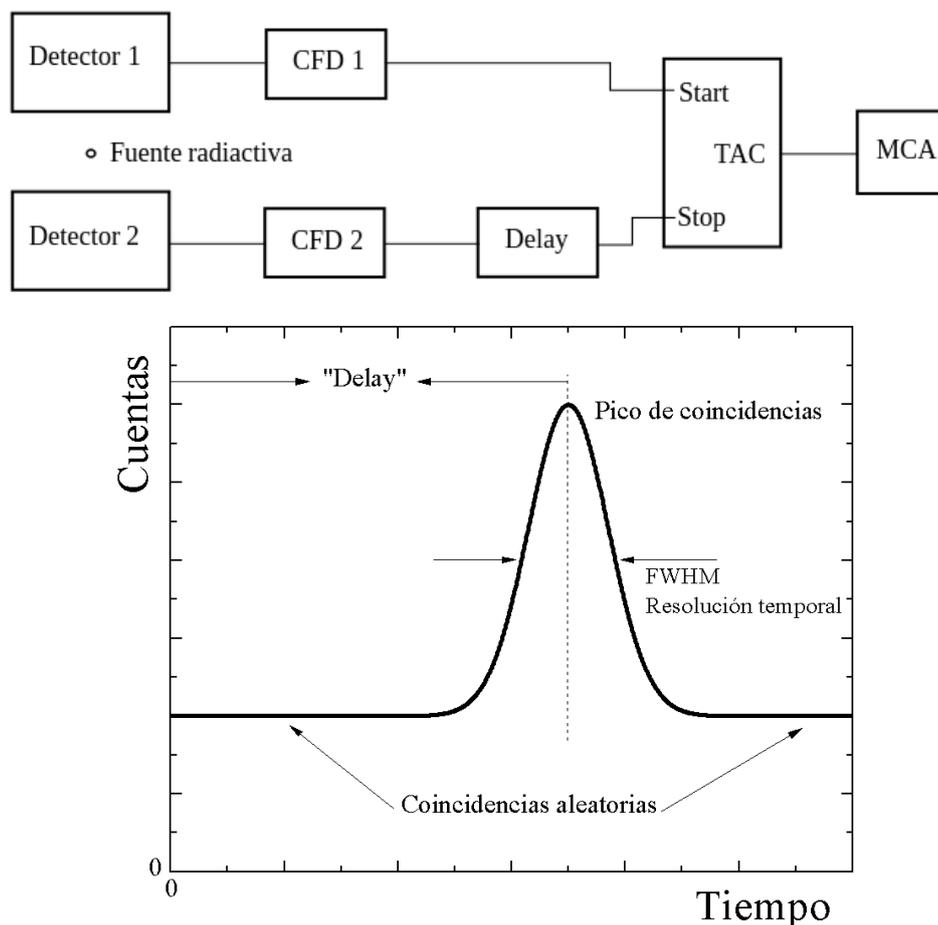


Figura 2.6. (Arriba) Esquema simple para el estudio de la resolución temporal de un sistema de detectores. (Abajo) Espectro temporal típico

Una fracción de los cuantos de radiación que emite la fuente radiactiva en coincidencia verdadera serán detectados simultáneamente en ambos detectores. Este tipo de eventos produce en el espectro temporal lo que se conoce como el *pico de coincidencias*. Es de hacer notar que si no se retrasa uno de los dos pulsos provenientes de los detectores entonces el pico de coincidencias se ubicaría alrededor del cero y por lo tanto sólo se observaría la mitad de la distribución. El efecto de retrasar el pulso que se usa como *stop* en el TAC es desplazar el pico de coincidencias hacia la derecha del espectro temporal con la finalidad de observarlo completamente. Una vez sustraído el fondo, el ancho a media altura (FWHM) del pico de coincidencias es una medida de la incertidumbre total que tiene el sistema para la medición de tiempos, este parámetro

es usualmente conocido como la *resolución temporal* del sistema. Si los detectores y la electrónica nuclear de procesamiento de pulsos son similares entonces las fuentes de error deben ser simétricas, y por lo tanto el pico de coincidencias debe ser simétrico.

Otra característica presente en el espectro temporal de la Fig. 2.6 es el fondo continuo de coincidencias aleatorias sobre el cual se ubica el pico de coincidencias. Este fondo es producido fundamentalmente por aquellos cuantos de radiación que se detectan en uno de los detectores y que para los cuales: o no existen cuantos de radiación coincidentes provenientes de la fuente (radiación de fondo, entre otros) o simplemente éstos no se detectan en el detector opuesto. Debido a que este tipo de eventos se producen de manera aleatoria, el intervalo de tiempo que transcurre entre la llegada de los pulsos de *start* y *stop* (que no corresponden a una coincidencia verdadera) puede ser cualquier valor dentro del rango temporal del TAC. Más aún, si las tasas de conteo en los detectores son pequeñas comparadas con el inverso del rango temporal del TAC, la distribución de coincidencias aleatorias es uniforme, tal como se muestra en la Fig. 2.6 [1].

CAPÍTULO III

MATERIALES Y MÉTODOS

3.1. Centelladores Orgánicos

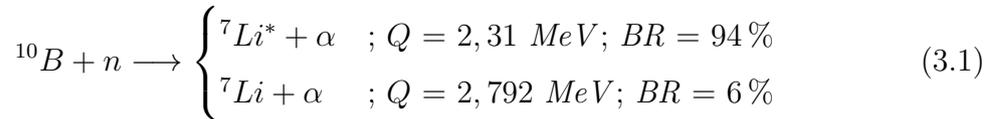
Los detectores de radiación utilizados en este trabajo fueron fabricados por la empresa Eljen Technology, Texas, USA. Los líquidos orgánicos EJ-301 y EJ-309 poseen propiedades que permiten discriminar entre eventos de neutrones rápidos y radiación gamma. El líquido EJ-301 es idéntico al NE-213, frecuentemente usado desde su descubrimiento hasta la actualidad [16, 22, 25, 27, 73]. El EJ-309 es un nuevo tipo de centellador líquido que posee propiedades químicas favorables para trabajar en condiciones adversas, entre las cuales resaltan su baja toxicidad y su alto punto de ignición. En la Tabla 3.1 se presentan las características más importantes de cada centellador.

Tabla 3.1. Características físico-químicas de los centelladores líquidos EJ-309 y EJ-301

Centellador Líquido	EJ-309	EJ-301
Emisión de luz (% Antraceno)	75 %	78 %
λ de emisión máxima (nm)	424	425
Tiempo de decaimiento, componente rápida (ns)	$\sim 3,5$	3,2
Densidad (g/cm^3)	0,959	0,874
Índice de refracción	1,57	1,505
Punto de ignición ($^{\circ}C$)	144	26
Relación atómica $H:C$	1,25	1,212

Un tercer tipo de centellador líquido seleccionado para ser caracterizado en este estudio es el EJ-339A. Su principal característica es que está cargado con 4,6 % (en masa) de ^{10}B . Este líquido, además de poseer propiedades para discriminar entre eventos de neutrones rápidos y radiación gamma, permite la detección de neutrones de baja energía, extendiéndose hasta la región térmica. Algunas de las propiedades físico-químicas del detector EJ-339A son resumidas en la Tabla 3.2. En trabajos anteriores estos

tipos de detectores han sido usados para hacer espectrometría de neutrones por absorción total, en la cual el pulso producido por el (los) protón(es) que recula(n) (debido a la(s) dispersión(es) elástica(s) del neutrón incidente) es medido en coincidencia con el pulso producido por los fragmentos de fisión provenientes de la reacción de captura ($\sigma = 3870$ b) entre el neutrón ya termalizado y el ^{10}B :



En el primer caso mostrado en la ec. 3.1 el $^7\text{Li}^*$ se desexcita emitiendo un fotón de $0,482 \text{ MeV}$ (vida media $\sim 10^{-13} \text{ s}$). Por conservación de la energía y del momentum lineal se deduce que la energía cinética con la cual la partícula α es emitida es $1,47 \text{ MeV}$ en el primer caso y $1,777 \text{ MeV}$ en el segundo caso [1].

Tabla 3.2. Características físico-químicas del centellador líquido EJ-339A

Emisión de luz (% Antraceno)	65 %
λ de emisión máxima (nm)	425
Tiempo de decaimiento, componente rápida (ns)	3,7
Densidad (g/cm^3)	0,92
Índice de refracción	1,415
Punto de ignición ($^{\circ}\text{C}$)	-8
Boro-10 (átomos/ cm^3 x 10^{22})	0,254
Carbono (átomos/ cm^3 x 10^{22})	2,87
Hidrógeno (átomos/ cm^3 x 10^{22})	4,98
Oxígeno (átomos/ cm^3 x 10^{22})	0,802

Los tres tipos de detectores líquidos fueron adquiridos de la empresa Eljen Technology, Texas, USA, encapsulados por el fabricante en una celda cilíndrica de aluminio de $1,52 \text{ mm}$ de espesor, la cual posee una cavidad de $2''$ de diámetro por $2''$ de profundidad para contener el líquido. En la Fig. 3.1 se muestra un esquema detallado de la celda.

Un nuevo tipo de centellador plástico, denominado EJ-299-33, ha sido desarrollado recientemente por la empresa Eljen Technology, Texas, USA con la finalidad de tener a la mano un detector plástico con capacidad para discriminar entre eventos de neutrones rápidos y fotones gamma implementando técnicas de análisis por forma de pulsos. Con

la mayoría de centelladores plásticos que existen en el mercado sensibles a estos dos tipos de partículas, usualmente se implementan otras técnicas de análisis, más complejas y menos versátiles, para discriminar entre neutrones rápidos y fotones gamma (por ejemplo espectros de tiempo de vuelo). Es por ello que, estudiar la respuesta de este nuevo plástico centellador y compararla con la respuesta de los centelladores líquidos, en el ámbito de la detección simultánea de neutrones rápidos y fotones gamma, es de gran importancia para estudiar las futuras aplicaciones de este nueva generación de detectores. Eljen Technology ha facilitado al grupo de Física Aplicada del Departamento de Física de la Universidad de los Estudios de Padova un prototipo de este material para caracterizarlo completamente. El prototipo consiste en un cilindro de 2" de diámetro por 2" de profundidad, ver Fig. 3.2. Algunas de sus características físico-químicas se presentan en la Tabla 3.3.

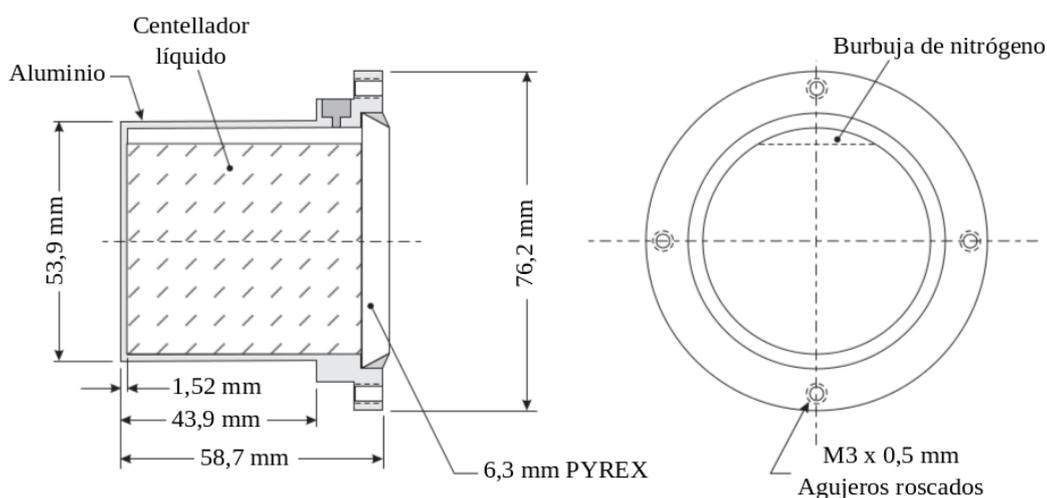


Figura 3.1. Esquema detallado de la celda de aluminio de 2" x 2" que contiene a los centelladores líquidos

Tabla 3.3. Características físico-químicas del centellador plástico EJ-299-33

Emisión de luz (% Antraceno)	56 %
λ de emisión máxima (nm)	420
Densidad (g/cm^3)	1,08
Carbono (átomos/ $cm^3 \times 10^{22}$)	4,86
Hidrógeno (átomos/ $cm^3 \times 10^{22}$)	5,13

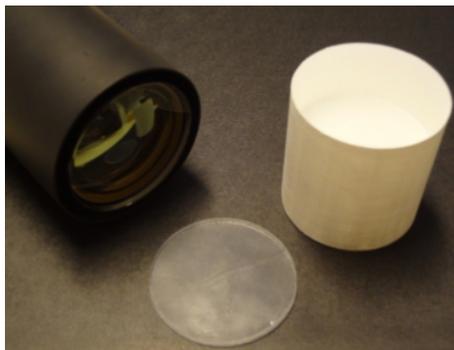


Figura 3.2. (Derecha) detector plástico EJ-299-33. (Izquierda y centro) fotomultiplicador y acople óptico de silicona EJ-560

3.2. Otros Detectores

3.2.1. Detector EJ-228

El EJ-228 es un detector plástico, sensible tanto a fotones gamma como a neutrones rápidos, que posee propiedades favorables para ser usado en medidas donde se requiere una resolución temporal elevada ($< 1 \text{ ns}$). En este trabajo se utilizó este detector para hacer las medidas de resolución temporal de los detectores EJ-301, EJ-309 y EJ-299-33, y como detector de “start” en medidas de tiempo de vuelo. Estas últimas fueron necesarias para determinar la emisión de luz y la eficiencia para neutrones del centellador EJ-309. Al igual que los demás detectores, el EJ-228 utilizado en este trabajo es de geometría cilíndrica de 2” de diámetro por 2” de espesor. En la Tabla 3.4 se presentan algunas de sus características físico-químicas.

Tabla 3.4. Características físico-químicas del centellador plástico EJ-228

Emisión de luz (% Antraceno)	67 %
λ de emisión máxima (nm)	391
Tiempo de subida (ns)	0,5
Tiempo de decaimiento (ns)	1,4
Densidad (g/cm^3)	1,023
Índice de refracción	1,58
Relación atómica $H:C$	1,1

3.2.2. Detector EJ-420

El EJ-420 es un detector de neutrones térmicos de alta eficiencia, para ser usado especialmente en presencia de un campo de radiación gamma intenso (hasta 10^7 fotones gamma por neutrón). Este detector emplea un compuesto de Li (enriquecido al 95 % con 6Li) disperso en una matriz de sulfuro de zinc activado con plata ($ZnS(Ag)$). El proceso de detección está basado en la reacción nuclear ($\sigma = 910 \text{ b}$) entre el neutrón térmico y el núcleo de 6Li :



donde $E_{3H} = 2,73 \text{ MeV}$ y $E_{\alpha} = 2,05 \text{ MeV}$

Los productos de la reacción (3H y α) excitan a las moléculas de $ZnS(Ag)$ las cuales al desexcitarse producen el centelleo. Éste debe ser medido con un dispositivo apropiado (por ejemplo un fotomultiplicador) para completar el proceso de detección.

En este trabajo se utilizó un detector EJ-420 con forma de disco, con 51 mm de diámetro y $0,25''$ de espesor. La concentración de 6Li presente en el detector es 9 mg/cm^2 . En la Fig. 3.3 se presentan un esquema detallado y una foto del detector EJ-420.

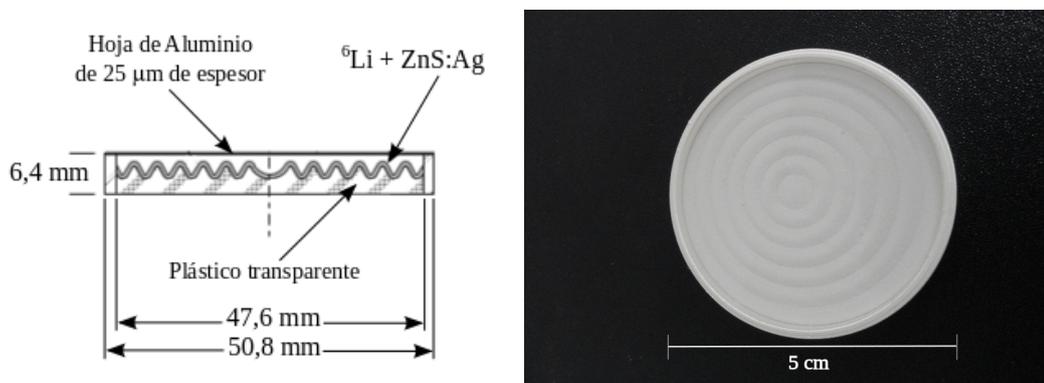


Figura 3.3. (Izquierda) esquema y (derecha) foto del detector de neutrones térmicos EJ-420

3.3. Fotomultiplicadores (PMT's)

Los dispositivos comúnmente usados para hacer la lectura de la emisión de luz (*read-out*) de los detectores centelleadores son los tubos fotomultiplicadores. Su función es

convertir señales luminosas de baja intensidad (cientos de fotones) en un pulso de corriente eléctrica, que posteriormente puede ser procesado analógicamente o digitalmente, sin añadir una cantidad de ruido considerable a la señal. La estructura típica de un tubo fotomultiplicador está compuesta por un recipiente de vidrio, que soporta las condiciones internas de vacío. Dentro de dicho recipiente se encuentra un *cátodo*, el cual es una capa muy fina compuesta de un material fotosensible (típicamente bialkali, K_2CsSb activado con oxígeno y cesio [1]) en la cual se producen electrones libres por Efecto Fotoeléctrico. Ya que la cantidad de electrones liberados del cátodo es muy pequeña como para conformar una señal eléctrica manejable, se acopla una estructura de dínodos en una geometría de recolección de electrones eficiente. Estos elementos (bajo la acción de una diferencia de potencial) son los responsables de la multiplicación de los electrones primarios, es decir, de la amplificación de la corriente, tanto así que la cantidad final de electrones varía entre 10^7 y 10^{10} (ganancia del orden de 10^7). Finalmente, los electrones son recolectados a través del ánodo del fotomultiplicador, conformándose de esta manera una señal eléctrica adecuada para ser procesada por una cadena electrónica nuclear.

Los fotomultiplicadores utilizados en este trabajo para detectar la emisión de luz de los centelladores mencionados en la sección 3.1 podemos dividirlos de la siguiente manera:

- Fotomultiplicadores con una estructura de dínodos lineal (*linear focused*): PHOTONIS XP2020 y HAMAMATSU H1949-51.
- Fotomultiplicador con una estructura de dínodos de canales metálicos (*metal channel type*): HAMAMATSU H8500C.

A diferencia del tubo fotomultiplicador XP2020, el H1949-51 es un tipo de fotomultiplicador que viene ensamblado por la empresa HAMAMATSU, está constituido principalmente por: un tubo fotomultiplicador HAMAMATSU R1828-01, un divisor de voltaje que incluye un conector tipo SHV-R para el alto voltaje y uno tipo BNC-R para extraer la señal de salida del ánodo y una cubierta cilíndrica de mu-metal como blindaje contra campos magnéticos. Los fotomultiplicadores con estructura de dínodos lineal son frecuentemente usados para hacer las lecturas de salida de los centelladores orgánicos, ya que entre otras cosas exhiben respuestas espectrales y temporales adecuadas para realizar dicha tarea [1]. En la Fig. 3.4 se muestra un esquema interno y una vista externa del fotomultiplicador H1949-51.

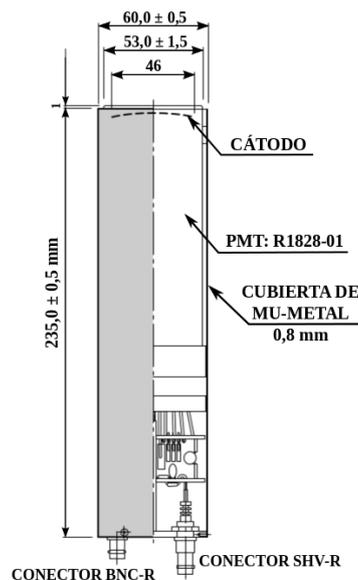


Figura 3.4. (Izquierda) vista externa. (Derecha) esquema detallado del fotomultiplicador H1949-51

Por otra parte el H8500C es un fotomultiplicador con geometría plana, de volumen compacto, de sección transversal cuadrada y con múltiples ánodos (64 en total, distribuidos en una matriz de 8 x 8 tal como se muestra en la Fig. 3.5). Es precisamente esta última propiedad lo que hace a este fotomultiplicador ideal para mediciones sensibles a la posición. Además, el diseño compacto del H8500C reduce considerablemente el tiempo de tránsito de los electrones en la estructura de dínodos (ver Tabla 3.5), por lo que este dispositivo posee una respuesta temporal mas rápida que la de los fotomultiplicadores con una estructura de dínodos lineal. También por esta última razón, la respuesta de este dispositivo bajo la influencia de campos magnéticos es poco variable.

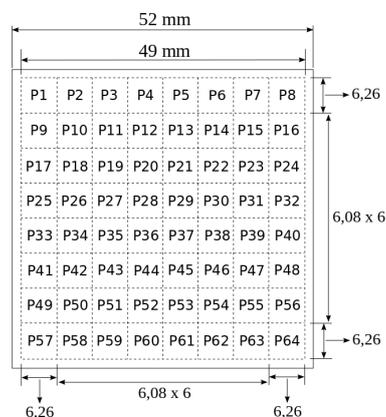
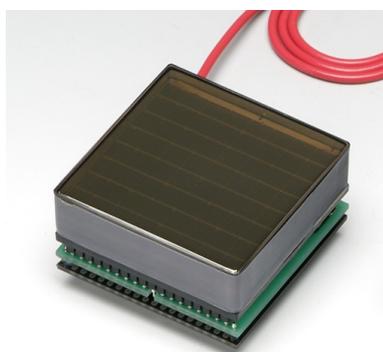


Figura 3.5. (Izquierda) vista externa y (derecha) detalles del ánodo del fotomultiplicador H8500C

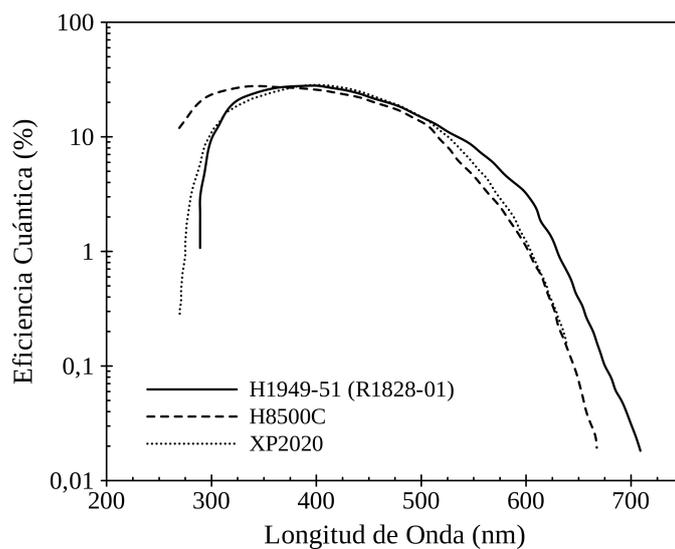


Figura 3.6. Curvas de eficiencia cuántica de los fotomultiplicadores usados en este trabajo

Tabla 3.5. Características técnicas de los fotomultiplicadores usados en este trabajo. (*) Corresponde al diámetro en el caso de los fotomultiplicadores XP2020 y R1828-01 y al ancho por el largo en el caso del fotomultiplicador H8500C

Fotomultiplicador	XP2020	H1949-51 (R1828-01)	H8500C
Respuesta Espectral (nm)	270-650	300-650	
Longitud de Onda de máxima respuesta (nm)	420		400
Material del fotocátodo	Bialkali (K_2CsSb)		
Material de la ventana	Borosilicato		
Dimensión efectiva del fotocátodo (*)	44 mm	46 mm	49 mm x 49 mm
Estructura de los dínodos	lineal		Canales metálicos
Número de dínodos	12		12 (cada ánodo)
Corriente media en el ánodo (mA)	0,2		0,1
Ganancia típica	3×10^7	2×10^7	$1,5 \times 10^6$
Tiempo de subida (ns)	1,6	1,3	0,8
Tiempo de tránsito (ns)	28		6

En la Tabla 3.5 se presenta una comparación entre las características de los tres fotomultiplicadores usados en este trabajo. Es importante mencionar que la respuesta espectral de los tres dispositivos es máxima para valores de longitud de onda muy aproximados a las longitudes de onda de emisión máxima de los centelladores bajo estudio (ver sección 3.1). En la Fig. 3.6 se presentan de manera comparativa las curvas de eficiencia cuántica de los tres fotomultiplicadores.

3.4. Electrónica Nuclear Modular tipo *VERSA Module Eurocard (VME)*

Uno de los elementos originales introducidos en este trabajo es la adquisición y procesamiento de todas las mediciones con electrónica nuclear tipo VME, basada en *digitizers*. Todas las unidades utilizadas fueron fabricadas por la empresa italiana *CAEN*. Estas unidades pueden ser controladas desde una computadora (vía puerto USB), por lo que es posible operar y configurar el sistema a distancia, de manera óptima y eficaz de acuerdo a las necesidades del operador.

El acrónimo VME significa *VERSA Module Eurocard*, éste corresponde a una arquitectura estándar de transferencia de datos de la *International Electrotechnical Commission, IEC* (ANSI/IEEE 1014-1987) ampliamente usada en diversos campos de la física experimental y la ingeniería. Fue desarrollada a finales de los años 1970's por Motorola como una combinación entre las especificaciones eléctricas del *VERSA*bus y la compatibilidad mecánica para unidades con el estándar europeo (*Eurocard*). El uso de la arquitectura VME permite la comunicación directa entre las diferentes unidades dentro del *crate* (módulo de alimentación que alberga las distintas unidades electrónicas), cada unidad es identificada con una dirección lógica de 32 bit (la cual está escrita sobre la unidad). La unidad que se coloca en la primera ranura del *crate* es la que actúa como controlador del flujo de datos, en nuestro caso es el *Controller V1718* (ver sección 3.4.4). En lo que resta de esta sección se presenta una descripción de cada una de las unidades que constituyen la cadena electrónica nuclear del sistema de detección utilizado en este trabajo.

3.4.1. Módulo de Alimentación Compacto para Unidades tipo VME (*VME-minicrate*)

Para alimentar las unidades que constituyen la cadena electrónica nuclear se usó un *minicrate* compacto, modelo VME8004, desarrollado por la empresa *CAEN*, ver Fig. 3.7. Éste tiene capacidad para albergar sólo 4 unidades VME modelo 6U (1U = 1,75"). La ranura más baja, ver Fig. 3.7, es donde se coloca la unidad que controla el sistema. Las principales características técnicas del VME8004 se presentan en la Tabla 3.6.

Tabla 3.6. Características técnicas y operacionales del VME8004

Dimensión	19" x 2U, 4 ranuras para tarjetas 6U
Plano posterior	VME64 J1/J2
Alimentación principal	100 - 240 Vac (50 - 60 Hz)
Potencia de salida total máx.	365 W
Corriente máxima	25A @ +5V 10A @ -12V 10A @ +12V
Ruido	< 60 mVpp @ +5V < 160 mVpp @ +12V < 250 mVpp @ -12V
Refrigeración	Flujo de aire horizontal, 66m ³ /h



Figura 3.7. CAEN VME8004 minicrate

3.4.2. Fuente de Alto Voltaje

Para suministrar alto voltaje a los fotomultiplicadores ($\sim 1,5 \text{ kV}$) se utilizó la unidad fabricada por la empresa CAEN, tipo VME 6U modelo V6533. Esta unidad posee 6 canales independientes con un rango de salida entre 0 - 4 kV . Ofrece versatilidad ya que tres de sus canales de salida tienen polaridad positiva y el resto tiene polaridad negativa. También posee sensores de temperatura en cada canal que hacen posible monitoreo continuo durante el tiempo de utilización. La unidad está provista de una señal de alerta para advertir al usuario si el voltaje de salida difiere en 2% del voltaje programado, además, si la corriente de salida es más grande que la corriente programada, la unidad se apaga automáticamente después que transcurre un intervalo de tiempo que debe ser especificado por el usuario al momento de su configuración. La V6533 se controla desde una computadora por medio de un programa llamado *S.HI.V.A.* (Software for HIgh Voltage Administration) desarrollado por Cester D. dentro del marco de

su tesis de doctorado en física. Las características técnicas de la V6533 se presentan en la Tabla 3.7



Figura 3.8. Fuente de alto voltaje CAEN V6533

Tabla 3.7. Características técnicas de la fuente de alto voltaje V6533

Voltaje de salida	0 - 4 kV (conector tipo SHV)
Polaridad	3 Ch positivos, 3 Ch negativos
Corriente máxima	3 mA
Potencia máxima	9 W
Resolución Vset/Vmon	100 mV
Resolución Iset/Imon	50 nA
Precisión, VMAX hardware	2 % del FSR
Ruido	1kV/500A: 3mV Typical / 5mV Maximum 2kV/1mA: 3mV Typical / 5mV Maximum 3kV/3mA: 10mV Typical / 20mV Maximum 4kV/2mA: 12mV Typical / 20mV Maximum
Rampa de subida/bajada	rango 1-500 V/s, en pasos de 1 V/s
Temperatura, rango de operación	0 - 45 °C
Humedad, rango de operación	0 - 80 %

3.4.3. Unidades Digitalizadoras de Pulsos Nucleares (*digitizers*)

La unidad más importante dentro de la cadena electrónica nuclear de medición es el *digitizer*, el cual está basado en un FPGA (Field Programmable Gate Array) programable. Durante la realización de la totalidad de los experimentos se usaron dos modelos distintos de *digitizers* CAEN: el **V1720**, es una unidad tipo VME 6U, de 8 canales, 12 *bit* de resolución, frecuencia máxima de muestreo 250 *MHz* (ver Fig. 3.9), y el **DT5751**,

es una unidad tipo *desktop*, es decir, una unidad portátil alimentada con +12 Vdc (1,8 A) por medio de un transformador que se conecta directamente a la tensión 120 - 240 VAC. Posee 2 canales, 10 bit de resolución y frecuencia máxima de muestreo 1 GHz (ver Fig. 3.10). En la Tabla 3.8 se presentan las principales características técnicas de ambos *digitizers*.

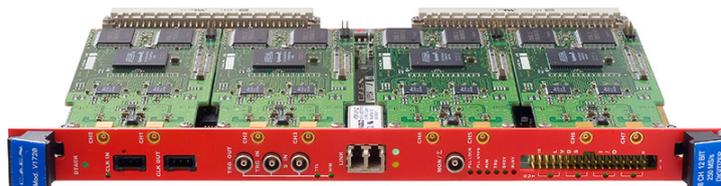


Figura 3.9. *Digitizer* CAEN V1720

Tabla 3.8. Características técnicas de los *digitizers*

<i>Digitizer</i>	V1720	DT5751
Dimensión	Módulo VME 6U	Módulo desktop, 154 mm x 50 mm x 164 mm, 680 g
Entrada analógica	8 Ch (MCX 50 Ohm), 2 Vpp, ancho de banda: 125 MHz	2 Ch (MCX 50 Ohm), 1Vpp, ancho de banda: 500 MHz
Conversión digital	Resolución 12 bit, máx. 250 MHz	Resolución 10 bit, máx. 1GHz
Buffer de memoria	1,25 MS/ch or 10 MS/ch Multi Event Buffer, 1 ÷ 1024 buffers	1,835 MS/ch Multi Event Buffer, 1 ÷ 1024 buffers
Trigger	Trigger individual en cada canal	
Time tag	32 bit - resolución 16 ns - rango 17 s	
Interface	VME64X, 60 MB/s (MBLT64), 100 MB/s (2eVME), 160 MB/s (2eSST)	USB 2.0, hasta 30 MB/s

Por medio de los programas (o *firmwares*) cargados sobre los FPGAs se pueden ejecutar funciones específicas para realizar distintos tipos de análisis a los pulsos, esta técnica es conocida como procesamiento digital de pulsos (*digital pulse processing, DPP*). En este trabajo se implementó un algoritmo para hacer discriminación de partículas por la forma de los pulsos (*pulse shape discrimination analysis, PSD*), el cual permite conocer para cada evento: una etiqueta temporal, la integral parcial y total del pulso (utilizado en conjunto para determinar el parámetro de forma del pulso), y la posibilidad de guardar una parte del pulso digitalizado (para su procesamiento *off-line*).



Figura 3.10. *Digitizer* CAEN DT5751

El principio de funcionamiento de cada canal de un *digitizer* donde se implementa el algoritmo de *PSD* es la siguiente: la señal que entra al *digitizer* es continuamente digitalizada y guardada en un arreglo (*buffer*). Cuando la señal satisface la condición de trigger (ver Fig. 3.11), el algoritmo de análisis regresa sobre el arreglo (de acuerdo al valor del pre-gate) y realiza la integral parcial (Q_{short}) y total (Q_{long}) del pulso (de acuerdo a los valores de la ventana corta y larga). Las integrales, la etiqueta temporal y el número de datos que se desea conservar del pulso son guardados en otro arreglo específico para los datos. Para ver en detalle los parámetros que deben ser configurados al implementar el algoritmo de análisis por forma de pulsos ver Fig. 3.11. Con los valores de las integrales se determina el *parámetro de discriminación, PSD* de cada evento según:

$$PSD = \frac{Q_{long} - Q_{short}}{Q_{long}} \quad (3.3)$$

Es de hacer notar que el parámetro PSD representa la fracción de luz retardada del pulso. Entre eventos correspondientes a neutrones rápidos y gammas, típicamente se observa que los valores del parámetro PSD son mayores para el caso de neutrones rápidos.

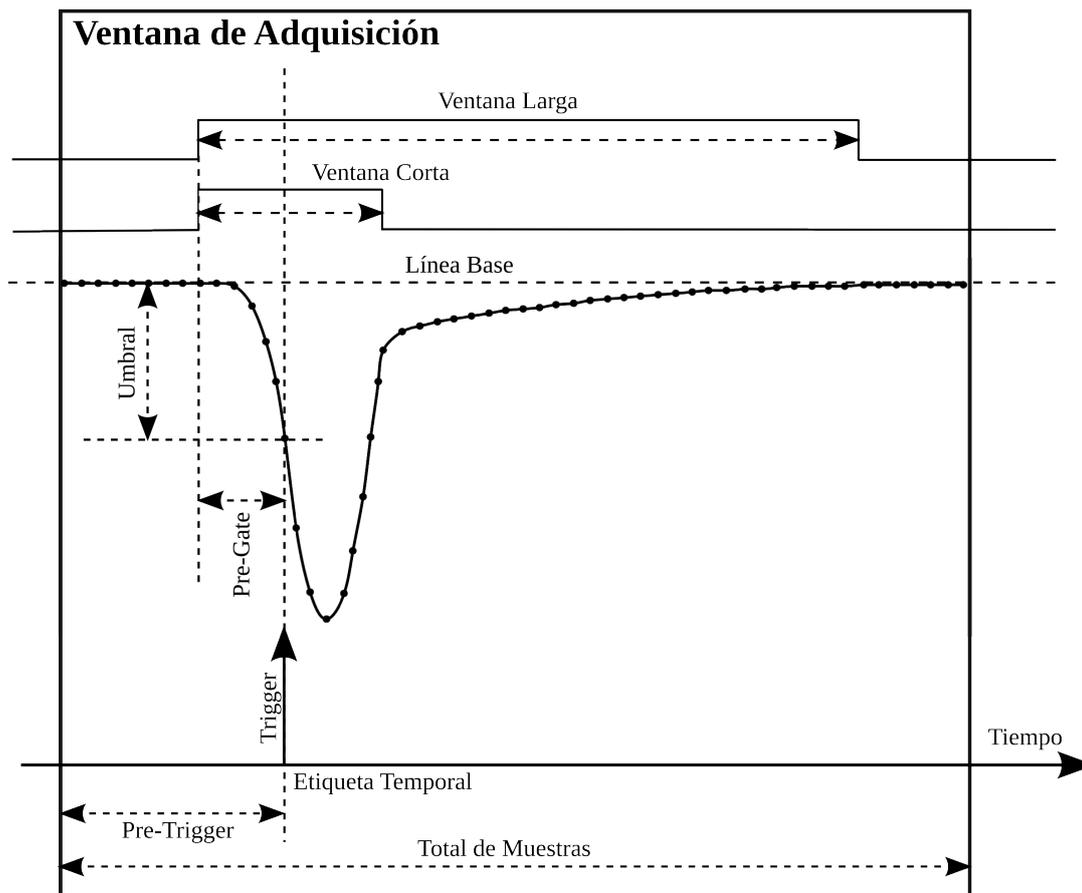


Figura 3.11. Parámetros de adquisición descritos sobre un pulso digitalizado

3.4.4. Puerto USB (*controller*)

La unidad VME CAEN V1718 modelo 6U (ver Fig. 3.12), permite establecer la conexión, con el estándar USB 2.0, de la cadena electrónica nuclear con la computadora, con una velocidad máxima de transferencia de datos de 30 MB/s . La unidad funciona como controlador de todas las unidades que constituyen la cadena electrónica VME cuando se conecta en la primera ranura del VME-minirate. Para cada unidad VME (V6533 y V1720 en nuestro caso) existe una librería la cual contiene un conjunto de instrucciones específicas que son usadas por el controlador V1718 para convertir comandos simples (introducidos en archivo de configuración) en lenguaje VMEbus. La unidad incluye 5 puertos de salida y dos puertos de entrada, todos programables, tipo TTL/NIM, con conectores tipo LEMO 00. El V1718 posee una memoria de 128 kByte la cual permite una actividad fluida mientras se transfieren los datos por el puerto USB 2.0.

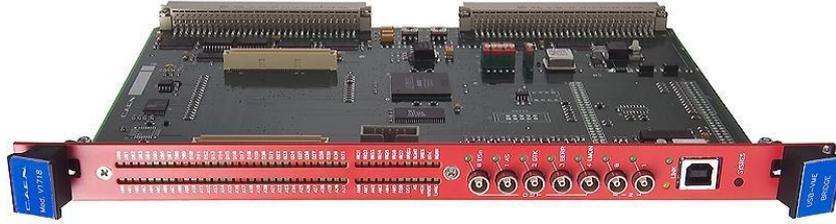


Figura 3.12. Puerto USB CAEN V1718

3.5. Fuentes Radioisotópicas

El conjunto de fuentes radioisotópicas que se usaron en este trabajo para caracterizar la respuesta de los detectores de radiación bajo estudio podemos clasificarlas en: fuentes de radiación gamma (ver características en la Tabla 3.9) y fuentes radioisotópicas neutrón-gamma. Estas últimas fueron indispensables en la determinación de las capacidades de discriminación entre eventos de neutrones y gammas registrados por los centelladores orgánicos bajo estudio.

Las fuentes radioisotópicas neutrón-gamma usadas fueron dos fuentes de ^{252}Cf con tasas de emisión de neutrones aproximadamente iguales a $0,8 \times 10^4 \text{ n/s}$ y $3,7 \times 10^6 \text{ n/s}$ (a principios de 2013). El ^{252}Cf experimenta dos tipos de decaimiento: decaimiento alfa ($BR= 96,91\%$, $T_{1/2} = 2,645 \text{ años}$) y fisión espontánea ($BR= 3,09\%$). Como consecuencia de este último tipo de decaimiento, un número de neutrones y fotones gamma (con multiplicidades $\nu_n = 3,76$ y $\nu_\gamma = 7,80$ [74, 75] respectivamente) son emitidos isotrópicamente.

El espectro en energía de los neutrones de fisión del ^{252}Cf obedece a la distribución de Watt:

$$N_W \left(\frac{E}{T_W} \right) dE = \frac{2A}{\sqrt{4\pi E_W T_W}} e^{-\frac{E}{T_W}} \sinh(\sqrt{BE}) dE \quad (3.4)$$

Donde:

$$A = e^{-\frac{E_w}{T_W}} \text{ y } B = \frac{4E_W}{T_W^2}$$

Para el ^{252}Cf :

$$T_W = (1,175 \pm 0,005) \text{ MeV} \text{ y } E_W = (0,359 \pm 0,009) \text{ MeV}$$

Tabla 3.9. Elenco de fuentes radioisotópicas. Las líneas gamma que se muestran son las más intensas reportadas en la literatura

Fuente	Actividad en la fecha indicada (kBq)	$T_{1/2}$ (años)	Líneas gamma (keV)	Fotones por 100 desintegraciones
^{22}Na	381 (01/12/2008)	2,60	511; 1274,5	182,7; 99,94
^{60}Co	409 (01/04/2009)	5,27	1173,23; 1332,49	99,85; 99,98
^{137}Cs	396 (01/04/2009)	30,05	661,66	84,99
^{241}Am	370 (01/08/2010)	432,6	59,54	35,92

Por otra parte, el espectro de fotones gamma de fisión del ^{252}Cf es un poco más complejo que el espectro de neutrones por lo que en la literatura se encuentran únicamente datos experimentales. En la Fig. 3.13 se muestran los espectros de neutrones y fotones gamma de fisión de una fuente de ^{252}Cf . El espectro de fotones gamma de fisión de la Fig. 3.13 fue medido con un detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ y reportado en [74].

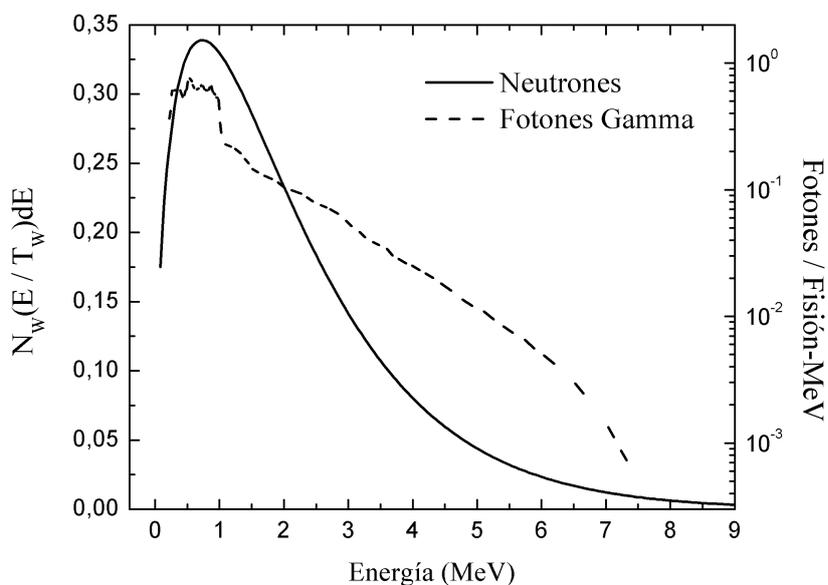


Figura 3.13. Espectro de neutrones y fotones gamma de fisión de una fuente de ^{252}Cf

3.6. Simulación del Transporte de Neutrones y Fotones Gamma por el Método de Monte Carlo

En la actualidad las simulaciones basadas en el método de Monte Carlo son frecuentemente usadas para resolver problemas complejos de física y matemática, particularmente aquellos que envuelven múltiples variables independientes donde los métodos de resolución exactos u otros métodos de cálculo (incluidos los computacionales) son poco eficaces.

El transporte de radiación a través de la materia fue inicialmente abordado sobre la base de la ecuación de transporte de Boltzmann. Sin embargo, este procedimiento deja de tener éxito cuando se aplica a un sistema donde la geometría es finita. A finales de la década de 1950, con ayuda de las computadoras, se desarrollaron las aplicaciones del método Monte Carlo para atacar este problema. En general, este método busca una solución numérica a un problema que modela objetos interactuando con otros objetos o con su ambiente vecino basado en las interacciones objeto-objeto y objeto-ambiente [76]. Fue así como el método de Monte Carlo se perfiló como una gran alternativa para resolver los problemas de transporte de radiación a través de la materia. Simulaciones detalladas, donde las interacciones experimentadas por una partícula se dan en orden secuencial, representan prácticamente una solución exacta de la ecuación de transporte, afectada únicamente por incertidumbres inherentes a la naturaleza estadística de la interacción de la radiación con la materia [76, 77].

En simulaciones de transporte de radiación por el método de Monte Carlo, la historia de una partícula es vista como una secuencia aleatoria de pasos libres interrumpidos por interacciones las cuales causan un cambio en su dirección de movimiento, una pérdida de energía y ocasionalmente, producción de partículas secundarias. Para simular estas historias es necesario conocer los “modos de interacción” de la partícula, esto es, el conjunto de secciones eficaces diferenciales de los mecanismos de interacción relevantes. Por ejemplo, en el caso de fotones gamma con energías entre decenas de keV y algunas unidades de MeV los mecanismos de interacción más importantes son: el Efecto Fotoeléctrico, el Efecto Compton y la Creación de Pares Electrón-Positrón [78].

Las secciones eficaces diferenciales determinan las funciones de distribución de probabilidades de las variables aleatorias que caracterizan una historia. Entre estas variables se tienen: el camino libre medio entre interacciones sucesivas, el tipo de interacción que toma lugar, la energía perdida, la desviación angular en un evento particular, el estado inicial de una partícula secundaria (en caso de que se cree alguna), entre otras. Una vez conocidas las funciones de distribución de probabilidades, las historias aleatorias pueden ser generadas aplicando métodos de muestreo apropiados (directo, por rechazo, combinado, entre otros) [76, 77]. La idea es generar un número suficientemente gran-

de de historias con la finalidad de obtener información cuantitativa y precisa de un experimento determinado. Principalmente se busca reproducir algún aspecto del experimento bajo estudio (para validar el modelo) para luego obtener información adicional de interés.

En particular, en este trabajo se realizaron simulaciones, basadas en el método de Monte Carlo, del transporte de neutrones y fotones gamma a través de la materia. Esto se hizo con la finalidad de estudiar algunas características de interés de los centelladores orgánicos EJ-309, EJ-339A y EJ-301 (eficiencia para neutrones, eficiencia gamma, espectros en emisión de luz correspondientes a neutrones y fotones gamma, entre otros). Para realizar las simulaciones se utilizaron tres códigos ampliamente usados dentro del ámbito de la física nuclear experimental: *GEANT4 9.6* [79, 80], *MCNPX 2.7.0* [81] y *PENELOPE 2008* [77]. Los dos primeros se utilizaron para simular el transporte de neutrones y fotones gamma, mientras que el último se usó sólo para la simulación de fotones gamma. Se evaluó el desempeño de estos tres códigos comparando los resultados simulados con las mediciones experimentales. Esto permitió aportar información acerca de cuál de los códigos es más conveniente en función de las características del problema a estudiar.

El procedimiento general aplicado para realizar las simulaciones por Monte Carlo con cualquiera de los códigos antes mencionados consistió en:

- Construir un modelo geométrico. Esto incluyó definir la geometría y composición (química e incluso isotópica) de cada uno de los cuerpos que componen el ambiente en el cual se desea transportar la radiación. En este trabajo el elemento principal de los modelos geométricos fue la celda que contiene a los centelladores líquidos bajo estudio. En los tres códigos (*GEANT4 9.6*, *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008*) se realizó un modelo de la celda exactamente igual al especificado por la empresa Eljen Technology, Texas, USA (ver Fig. 3.1). En las Fig. 3.14 y 3.15 se presentan una proyección en dos dimensiones y una vista 3D del modelo geométrico del detector utilizado en este trabajo para realizar las simulaciones por Monte Carlo con los tres programas. Es de hacer notar que ni el acople óptico ni el fotomultiplicador fueron incluidos en el modelo de detector debido a que las simulaciones sólo involucraron los procesos de deposición de energía (de neutrones y fotones gamma) en el volumen sensible del detector (centellador).

En la Fig. 3.14 se identificaron cada una de las partes del modelo geométrico en función de su composición. La composición química de la cubierta exterior de la celda y de la burbuja de nitrógeno fueron modelados con 100 % aluminio ($\rho_{Al} = 2,7 \text{ g/cm}^3$) y 100 % nitrógeno ($\rho_N = 1,165 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3$). El pyrex se modeló con *B* (4%), *O* (54%), *Na* (2,81%), *Al* (1,16%), *Si* (37,7%) y *K*

(0, 33%). Y finalmente, la composición de los centelladores se modeló según la información reportada en las Tablas 3.1 (para el EJ-301 y el EJ-309) y 3.2 (para el EJ-339A).

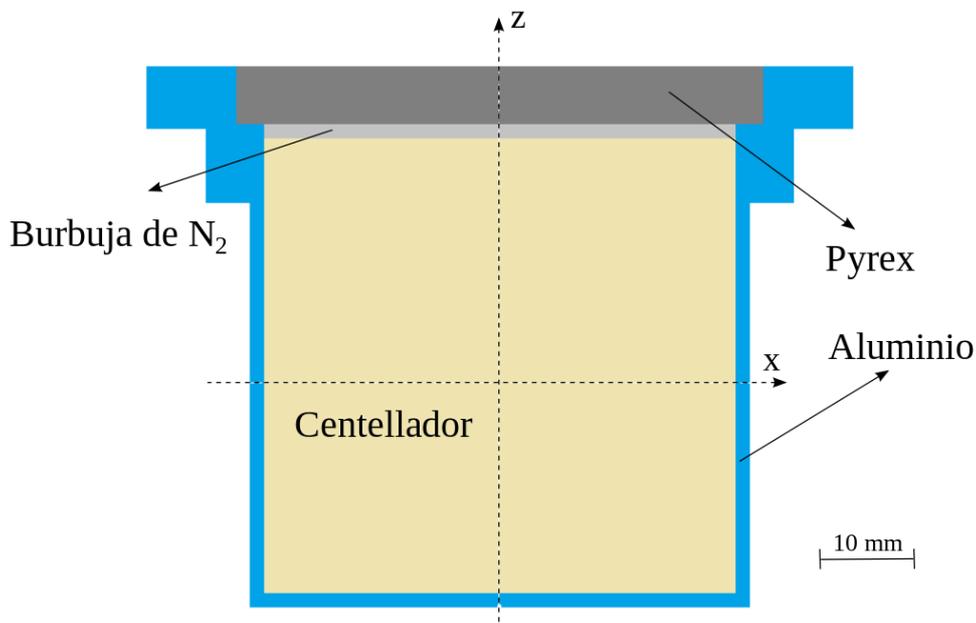


Figura 3.14. Proyección en dos dimensiones del modelo geométrico del detector utilizado para realizar las simulaciones por Monte Carlo

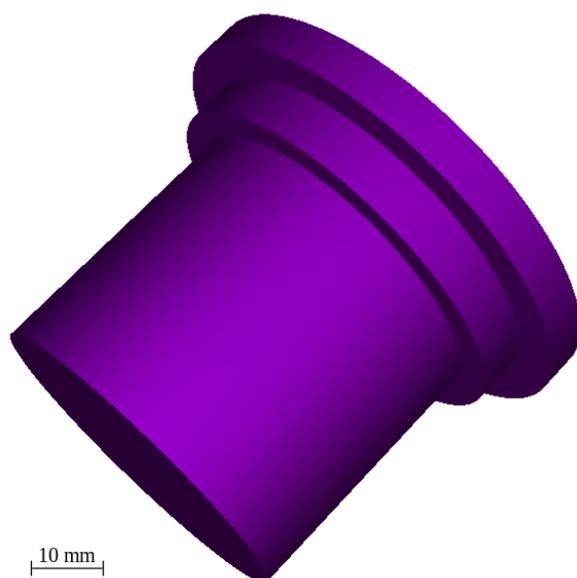


Figura 3.15. Vista 3D del modelo geométrico del detector utilizado para realizar las simulaciones por Monte Carlo

- Describir la fuente de partículas primarias. En este trabajo se simularon fuentes puntuales de neutrones y de fotones gamma por separado. En algunos casos se simularon partículas monoenergéticas (por ejemplo para la determinación de las curvas de eficiencia intrínseca), y en otros se simularon los espectros en energía correspondientes a las fuentes de calibración de ^{252}Cf para el caso de los neutrones (ver ec. 3.4), y ^{22}Na , ^{137}Cs y ^{60}Co para el caso de los fotones gamma, ver sec. 3.5 para detalles de las fuentes.
- Especificar los procesos (y modelos) físicos involucrados en el problema. En el caso de *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008* los modelos físicos son elegidos automáticamente por los códigos, mientras que en *GEANT4 9.6* éstos deben ser especificados por el usuario.
- Especificar la información que se desea obtener de la simulación. En los problemas que involucraron a los centelladores EJ-301 y EJ-309 se simularon los espectros en emisión de luz que resultan de la interacción de las partículas primarias (neutrones o fotones gamma) con el centellador. En el caso de los fotones gamma bastó con construir el histograma de la energía depositada en el centellador por cada fotón para determinar el espectro en emisión de luz correspondiente, esto debido a la relación lineal que existe entre la emisión de luz y la energía depositada por los electrones (los cuales son producidos por la interacción de los fotones gamma con el centellador). Por otra parte, para el caso de los neutrones fue necesario utilizar una función de respuesta para protones (relación entre la energía cinética del protón que recula y la emisión de luz, en *MeVee*, que éste produce) para determinar el espectro en emisión de luz correspondiente. En las secciones 3.6.1 y 3.6.2 se explica en detalle el procedimiento llevado a cabo en *GEANT4 9.6* y en *MCNPX 2.7.0* para determinar los espectros en emisión de luz producidos por neutrones. Finalmente, en el detector EJ-339A se simularon únicamente el número de reacciones de captura neutrónica ($^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$) que ocurrieron en el volumen sensible.

Es preciso mencionar que para construir los espectros en emisión de luz producidos por neutrones se tomaron en consideración sólo las reacciones de dispersión elástica con los átomos de hidrógeno ($^1\text{H}(n, n)^1\text{H}$). Se despreció la contribución de las dispersiones elásticas con los átomos de carbono debido a que la emisión de luz producida por éstas es muy pequeña. También se despreció la contribución de algunas reacciones inelásticas con carbono (por ejemplo: $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$), sin embargo, éstas comienzan a ser relevantes para neutrones con energías cinéticas mayores a 7 *MeV* [82].

3.6.1. GEANT4 9.6

En este trabajo se utilizó la versión 9.6 de *GEANT4*, ésta es una herramienta ampliamente utilizada para la simulación del transporte de radiación a través de la materia, la cual está basada en la tecnología *object-oriented* implementada en el lenguaje de programación C++. *GEANT4* es el resultado de una continua colaboración de físicos e ingenieros a nivel mundial desde 1993. Ésta ofrece al usuario una gran variedad de partículas, procesos físicos, modelos físicos, materiales y herramientas que permiten trabajar con geometrías complejas en un rango de energía que se extiende desde 250 eV hasta algunos TeV [79, 80].

La principal característica de *GEANT4* es la transparencia con la que se utilizan los procesos físicos y los modelos que describen cada uno de éstos. En *GEANT4* los modelos físicos están basados en datos experimentales (tablas), modelos teóricos y parametrizaciones. El usuario debe registrar en su simulación los procesos físicos de interés (y sus modelos correspondientes) en función de las características del problema a estudiar (tipo de partícula que se simula, rango de energías en el que se trabaja, materiales que componen el modelo geométrico, información que se desea obtener de la simulación, entre otras).

En *GEANT4* el modelo geométrico se construye en la clase *G4VUserDetectorConstruction* a partir de los conceptos de volumen *lógico* y volumen *físico*. Un volumen *lógico* representa un elemento de la geometría con una cierta forma, éste puede contener otros volúmenes y además posee ciertos atributos que son independientes de su posición física (composición, comportamiento de volumen sensible, entre otros). Por otra parte, un volumen *físico* representa un volumen lógico espacialmente posicionado dentro de otro volumen (lógico), el cual es denominado volumen “madre”. En este trabajo los volúmenes lógicos se construyeron usando el concepto de *Constructive Solid Geometry (CSG)*, el cual consiste en definir *sólidos* homogéneos con diferentes formas (cubos, paralelepípedos, secciones cilíndricas y esféricas, trapezoides, entre otros) separadamente. Luego, estos volúmenes lógicos se posicionaron adecuadamente (volúmenes físicos) para reproducir exactamente el modelo geométrico bajo estudio, es decir, la celda que contienen los centelladores líquidos, ver Fig. 3.14 y 3.15. Para construir geometrías más complejas *GEANT4* ofrece operaciones Booleanas (uniones, intersecciones y subtracciones) entre sólidos y una subcategoría denominada *Boundary Representations (BREPs)* en la cual los sólidos se definen a partir de sus superficies [79].

G4VuserPrimaryGeneratorAction es la clase donde se organiza la manera en cómo se generan las partículas primarias en *GEANT4*. En ésta se debe invocar una clase concreta (*G4VPrimaryGenerator*) para especificar las características de las partículas a generar (posición, tiempo, energía cinética, distribución angular, entre otros). *GEANT4*

ofrece tres de estas clases concretas: *G4ParticleGun*, *G4GeneralParticleSource* y *G4HEPEvtInterface*. En este trabajo se utilizó la clase *G4GeneralParticleSource* (*GPS*). Esta clase le permite al usuario definir fuentes de partículas primarias bastante complejas de una manera relativamente simple. Existen dos formas de configurar la clase *GPS*: introduciendo líneas de comando (una por una) en el modo interactivo, o construyendo un archivo de entrada (o macro) con todos los comandos necesarios para describir completamente la fuente de partículas primarias (esta última es la forma que se usa en *batch mode*). Las características de la fuente que pueden ser especificadas durante la configuración de la clase *GPS* son: su distribución espacial (puntual, 2D, 3D), su distribución angular (unidireccional, isotrópica, cónica, entre otras), su energía (monoenergética, espectros discretos, espectros continuos) y el número y tipos de partículas a generar en cada evento (en caso de fuentes múltiples).

En la clase *G4UserPhysicsList* se deben definir las partículas y procesos físicos involucrados en el problema bajo estudio. Alternativamente, en este trabajo se utilizaron los modelos físicos incluidos en la librería “QGSP_BERT_HP”. Para el caso de la simulación de neutrones con energías cinéticas entre $0,025\text{ eV}$ y 20 MeV , ésta incluye modelos físicos de alta precisión (*G4NeutronHPElastic*, *G4NeutronHPInelastic*, *G4NeutronHPCapture* y *G4NeutronHPFission*). Las secciones eficaces diferenciales que usan estos modelos (G4NDL4.2) provienen de cifras experimentales reportadas en la base de datos nucleares “ENDF/B-VII” [82]. Estos datos incluyen explícitamente todas las resonancias nucleares.

En *GEANT4* las interacciones electromagnéticas de los leptones, fotones, hadrones e iones son manejadas por un sólo paquete el cual está dividido en categorías. En particular, la categoría “*standard*” controla la interacción de electrones, positrones, fotones y hadrones. Los procesos y modelos físicos que constituyen esta categoría se encuentran registrados en la librería “QGSP_BERT_HP”. Debido a que en este trabajo se simulaban fotones gamma con energías entre cientos de keV y $1,5\text{ MeV}$, los procesos físicos de interés registrados en esta librería son: el Efecto Fotoeléctrico (*G4PhotoElectricEffect*), el Efecto Compton (*G4ComptonScattering*) y la Creación de Pares Electrón-Positrón (*G4GammaConversion*). Los modelos que se implementan en la categoría “*standard*” para cada uno de estos procesos son: *G4PEEffectFluoModel* para el Efecto Fotoeléctrico, *G4KleinNishinaCompton* y *G4KleinNishinaModel* para el Efecto Compton (el segundo toma en cuenta los efectos de las capas atómicas) y *G4BetheHeitlerModel* para la Creación de Pares Electrón-Positrón.

Para obtener los espectros en emisión de luz que resultan de la interacción de las partículas primarias (neutrones o fotones gamma) con el centellador se utilizó una clase denominada “*G4Step*”. Ésta ofrece acceso completo a la información dinámica en cada paso de la trayectoria de la partícula (por ejemplo posición, tiempo, velocidad, energía

cinética, energía depositada, entre otros). En las simulaciones que involucraron fotones gamma, se utilizó esta clase para extraer la energía depositada en el centellador por cada fotón gamma. Al final de cada evento (utilizando las clases *G4UserEventAction* y *G4UserRunAction*) se fue construyendo un histograma con estos datos. Este histograma representa el espectro en emisión de luz correspondiente al haz de fotones gamma incidentes. En las simulaciones de neutrones rápidos, se utilizó también la clase *G4Step* para extraer la energía cinética de los protones que reculan por las dispersiones elásticas de los neutrones con los átomos de hidrógeno que componen el centellador. Luego, en esa misma instancia, se utilizó una función de respuesta para protones (determinada en este trabajo para el centellador EJ-309 y tomada de la literatura para el EJ-301) para transformar esa energía cinética en emisión total de luz (en *MeVee*). Al final de cada evento, este dato fue usado para ir construyendo el espectro en emisión de luz correspondiente.

En las simulaciones que involucraron al centellador EJ-339A simplemente se contó el número de reacciones de captura neutrónica ($^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$) que ocurrieron. En este caso se utilizó la clase *G4Step* para identificar la partícula α que se produce en dicha reacción de captura. El hecho de que esta partícula fuese transportada implica que se llevó a cabo una reacción de captura.

3.6.2. MCNPX 2.7.0

MCNPX 2.7.0 (Monte Carlo N-Particle eXtended) es uno de los códigos más usados en la actualidad para realizar simulaciones del transporte de radiación a través de la materia. Éste forma parte de una serie de códigos que comenzaron a ser desarrollados hace aproximadamente 60 años en *Los Alamos National Laboratory* para estudiar el transporte de radiación en materia utilizando el método de Monte Carlo. Desde 1994 se iniciaron los trabajos para dar origen a *MCNPX*, éste fue concebido como una extensión formal del código MCNP con la finalidad de simular una gran variedad de partículas en un rango amplio de energías [81]. En este trabajo se utilizó la versión 2.7.0 de *MCNPX*, el cual es distribuido por el *Radiation Safety Information Computational Center (RSICC)*.

El procedimiento por medio del cual se realizan las simulaciones en *MCNPX 2.7.0* consiste en describir completamente el problema en un archivo de entrada a través de *cards* (líneas de comandos de máximo 80 caracteres). Esta descripción incluye: el modelo geométrico, la descripción de los materiales y la selección de las secciones eficaces a usar, la posición y las características de la fuente de partículas primarias y la especificación de la información que se desea guardar. También se puede especificar alguna técnica de reducción de varianza para trabajar de una forma más eficiente.

MCNPX 2.7.0 ofrece las herramientas necesarias para construir modelos geométricos tridimensionales con características muy generales. Estos modelos geométricos se realizan a partir de la construcción de celdas (cuerpos homogéneos) las cuales se definen realizando intersecciones, uniones y complementos de regiones limitadas por superficies cuadráticas (planos, cilindros, conos, entre otros). Dichas superficies cuadráticas deben ser previamente descritas indicando el valor de los coeficientes de sus ecuaciones analíticas correspondientes. *MCNPX 2.7.0* también ofrece la posibilidad de usar directamente cuerpos o “macrobodyes” (cubos, paralelepípedos, esferas, entre otros) para construir los modelos geométricos. Estos “macrobodyes” pueden ser combinados, al igual que las superficies cuadráticas, a través de operaciones Booleanas. Los materiales que componen las celdas se definen en otras *cards* especificando su composición química o isotópica (elementos químicos o isótopos, fracciones en peso de cada uno y densidad). En estas *cards* se deben especificar también las secciones eficaces que usará el código para cada elemento o isótopo. El modelo geométrico de la celda que contiene a los centelladores líquidos construido con *MCNPX 2.7.0* se presenta en las Fig. 3.14 y 3.15.

En *MCNPX 2.7.0* se usa la *card* “MODE” para especificar cuáles son las partículas que serán transportadas durante la simulación. Los mecanismos de interacción (y los modelos físicos correspondientes) de dichas partículas son cargados automáticamente por el código. *MCNPX 2.7.0* realiza el transporte de neutrones de manera detallada debido a que todos los mecanismos de interacción relevantes son tomados en consideración (dispersiones elásticas, inelásticas, capturas, entre otros) [83]. Además, desde energías térmicas hasta $\sim 150 \text{ MeV}$, los datos de las secciones eficaces diferenciales que usa este código provienen de tablas experimentales (base de datos nucleares “ENDF/B-VII” [82]). Cabe destacar que estos son los mismos datos que usa *GEANT4 9.6*.

En *MCNPX 2.7.0* el transporte de fotones con energías entre 1 keV y 100 MeV es realizado con un tratamiento físico detallado el cual incluye (además del Efecto Fotoeléctrico, el Efecto Compton y la Creación de Pares Electrón-Positrón) la dispersión coherente (Thomson), los fotones de fluorescencia de rayos X y los efectos de la energía de enlace de los electrones ligados a capas atómicas sobre el Efecto Compton [83].

A través de la *card* “PHYS” es posible modificar algunas características acerca del tratamiento físico en la simulación. Al simular la respuesta para neutrones (espectros en emisión de luz) de los centelladores líquidos estudiados en este trabajo, se modificó la configuración del parámetro *recl*. Este parámetro controla la creación y el transporte de los iones (livianos y pesados) que reculan. Se usó “*recl* = 1” para crear y transportar los iones producidos por la interacción de los neutrones (PHYS:N 6J 1) en el centellador. También, fue necesario editar la *card* “CUT” (CUT:H, # J 0) con la finalidad de reducir (hasta cero) el umbral en energía a partir del cual se transportan dichos iones.

Para definir la fuente de partículas primarias se utilizó la *card* “SDEF” (*General*

Source Definition). Debido a que en este trabajo se simularon sólo fuentes puntuales de neutrones y fotones gamma, la información que se introdujo en la *card* “SDEF” para describir completamente la fuente de partículas primarias en cada simulación fue: la posición de la fuente, el tipo de partícula, la energía inicial y la dirección en la cual se emiten las partículas. La *card* “SDEF” ofrece al usuario la posibilidad de definir distribuciones de probabilidades para, entre otras cosas, definir espectros en energía discretos y continuos, y además, para emitir el haz de partículas primarias en una cierta dirección.

Se utilizó la *card* “F6” para obtener el espectro en emisión de luz producido por la interacción de un haz de fotones gamma con el centellador. Esta *card* permite guardar el histograma de la energía depositada en una cierta región del modelo geométrico por un determinado tipo de partícula. Es preciso recordar que, en los centelladores estudiados en este trabajo, la energía depositada en el volumen sensible por un haz de fotones gamma es directamente proporcional a la emisión de luz que se produce.

MCNPX 2.7.0 no permite al usuario seguir paso a paso el transporte de las partículas, por lo tanto, no se puede obtener información dinámica (posición, velocidad, energía cinética, tiempo, entre otras) de una partícula durante la simulación como en el caso de *GEANT4*. Esto representa un problema para la determinación del espectro en emisión de luz producido por la interacción de un haz de neutrones con el centellador, debido a que para construir éste, se necesita conocer la energía cinética de los protones que reculan. La solución a este problema consistió en utilizar la *card* “PTRAC”, la cual permite al usuario guardar un archivo de salida con cierta información relacionada con los eventos de interés (posición, tipo de interacción, dirección de movimiento, energía, tiempo, entre otros). Estos eventos se seleccionan aplicando filtros a través de las opciones de la *card* “PTRAC”. En este trabajo se salvó la información de todas las partículas (neutrones, protones e iones) que se transportaron en la celda correspondiente al volumen sensible del detector.

Después de realizada cada simulación, se utilizó un programa hecho en *root* (intérprete de C++) para leer completamente el archivo de salida generado por la *card* “PTRAC”. Durante la lectura, el programa reconoce los eventos correspondientes a las dispersiones elásticas de los neutrones (con los átomos de H), por lo que identifica las historias de los protones que reculan. Además, el programa extrae la energía cinética de los protones y calcula la emisión de luz (en *MeVee*) utilizando la función de respuesta para protones correspondiente al centellador usado en la simulación. Con este valor el programa va construyendo un histograma el cual corresponde al espectro en emisión de luz producido por la interacción del haz de neutrones simulado con el centellador.

3.6.3. PENELOPE 2008

El código PENELOPE 2008 (PENetration and Energy LOSS of Positrons and Electrons), es un algoritmo basado en el método de Monte Carlo, diseñado para la simulación del transporte de fotones, electrones y positrones de forma acoplada. El algoritmo está basado en un modelo de dispersión que combina datos generados numéricamente con modelos analíticos de las secciones eficaces diferenciales de los distintos mecanismos de interacción. El rango de energía de los fotones (energía cinética en caso de electrones y positrones) con el cual se puede trabajar con este código va desde 50 eV hasta aproximadamente 1 GeV . El transporte de fotones es simulado por medio de métodos convencionales mientras que el transporte de electrones y positrones es realizado mediante procedimientos combinados [76, 77].

PENELOPE 2008 es un código escrito en lenguaje Fortran. Éste está compuesto principalmente por un paquete denominado *penelope*, en el cual se encuentran subprogramas, rutinas numéricas y rutinas de transporte los cuales se encargan de implementar la teoría concerniente al transporte de fotones, electrones y positrones, es decir, en este paquete se controla la física de la simulación. Los modelos físicos cargados en el paquete *penelope* permiten realizar simulaciones detalladas del transporte acoplado de fotones y electrones a bajas energías (desde keV hasta algunas unidades de MeV) [77].

Existen otros paquetes complementarios que deben ser usados junto con *penelope* para realizar las simulaciones, uno de éstos es el paquete *pengeom* el cual ofrece la posibilidad de construir modelos geométricos bastante generales, combinando cuerpos y módulos (homogéneos) que son generados a partir de las uniones e intersecciones de superficies cuadráticas. El modelo geométrico de la celda que contiene a los centelladores construido con este paquete se presenta en las Fig. 3.14 y 3.15.

PENELOPE 2008 hace uso además de un programa principal para controlar la evolución de la historia de cada partícula. *PENELOPE 2008* trae consigo varios programas principales (*penmain* y *pencyl*), sin embargo, éstos también pueden ser construidos por el usuario de acuerdo a sus necesidades. En este trabajo se utilizó el programa principal *penmain*, el cual es usado para hacer simulaciones con los modelos geométricos construidos con el paquete *pengeom*. Además, *penmain* incluye opciones que permiten al usuario almacenar información de interés como por ejemplo: espectros diferenciales en energía de la energía depositada en determinados cuerpos, flujos de partículas, dosis absorbida, entre otras.

Para realizar simulaciones con *PENELOPE 2008* (utilizando *penmain*) se debe describir completamente el problema en un archivo de entrada, es decir, se deben especificar a través de ciertos comandos las características de la fuente de partículas primarias, el modelo geométrico, los materiales que componen los cuerpos y módulos del modelo

geométrico, y finalmente, la información que se desea extraer de la simulación. Adicionalmente se tienen opciones para implementar métodos de reducción de varianza (interaction forcing), e incluso se tiene la posibilidad de introducir nuevas opciones de interés para el usuario debido a que los paquetes son de código abierto.

Tanto el modelo geométrico como los datos de los materiales se deben ubicar en archivos diferentes al archivo de entrada. La construcción del modelo geométrico se hizo siguiendo el esquema de trabajo del paquete *pengeom* [77], mientras que los archivos correspondientes a los materiales se generaron con el paquete auxiliar *material*. Este paquete ofrece una interfaz que permite generar (a partir de una base de datos) un archivo con las propiedades físicas, las secciones eficaces de interacción y demás características de un determinado material, las cuales son necesarias para transportar fotones, electrones y positrones a través de éste.

PENELOPE 2008 se utilizó para simular la respuesta gamma de algunos de los centelladores orgánicos estudiados en este trabajo (EJ-309 y EJ-339A). Esta información se obtuvo a partir del espectro diferencial en energía de la energía depositada en el volumen sensible del detector, el cual se obtuvo dando el carácter de *energy-deposition detector* al módulo que corresponde al centellador dentro del modelo geométrico. Esta opción es una de las que brinda el programa principal *penmain*.

CAPÍTULO IV

RESULTADOS Y DISCUSIONES

En este capítulo se presenta una descripción detallada de los procedimientos experimentales llevados a cabo en este trabajo de tesis. Es preciso mencionar que todos los experimentos fueron realizados en el Laboratorio de Física Aplicada de la Universidad de los Estudios de Padova, ubicado en los Laboratorios Nacionales de Legnaro (Istituto Nacional de Física Nuclear-Italia). Todo esto dentro del marco del convenio de cotutela firmado entre la Universidad Simón Bolívar y la Universidad de los Estudios de Padova. También se presentan los resultados obtenidos en cada etapa del trabajo y sus respectivas discusiones.

4.1. Comparación entre el Desempeño de los Fotomultiplicadores

En esta sección se presenta un estudio comparativo de la respuesta del centellador EJ-309, en lo que respecta a la detección de fotones gamma y neutrones rápidos, en función del tipo de fotomultiplicador (PMT) que se usó para realizar la lectura de la luz emitida. Específicamente se estudió la resolución en energía y el poder de discriminación n/γ de las distintas configuraciones centellador/fotomultiplicador. El propósito de este estudio es incluir mejoras en el sistema de detección a partir del uso de un fotomultiplicador plano en lugar de un PMT estándar (*linear-focused*). Esto traerá ventajas desde el punto de vista del consumo de energía, el tamaño del detector será más compacto y se tendrá la posibilidad de hacer mediciones con menor incertidumbre en presencia de un campo magnético (de particular interés en el ámbito de la ingeniería de la fusión nuclear). A modo de comparación, se presentan también algunos resultados obtenidos con el centellador EJ-301.

Para realizar los experimentos que formaron parte de este estudio se utilizaron celdas cilíndricas (50,8 mm de diámetro por 50,8 mm de espesor) que contienen centelladores EJ-309 y EJ-301 (4 en total), dos fotomultiplicadores HAMAMATSU H1949-51 (*linear-focused*), dos fotomultiplicadores HAMAMATSU H8500C planos de múltiples ánodos y varias películas de silicona, EJ-560, para realizar los acoples ópticos celda/fotomultiplicador. Para mayores detalles de estos componentes ver cap. III.

Dos de las celdas, una que contiene centellador EJ-309 y otra con EJ-301, fueron

acopladas a dos fotomultiplicadores H8500C. Mientras que otras dos celdas idénticas a las anteriores fueron acopladas a dos PMT's H1949-51. Debido a que las secciones transversales de las ventanas de los fotomultiplicadores H1949-51 y de las celdas que contienen los centelladores son prácticamente iguales el acople óptico entre estos componentes se realizó perfectamente.

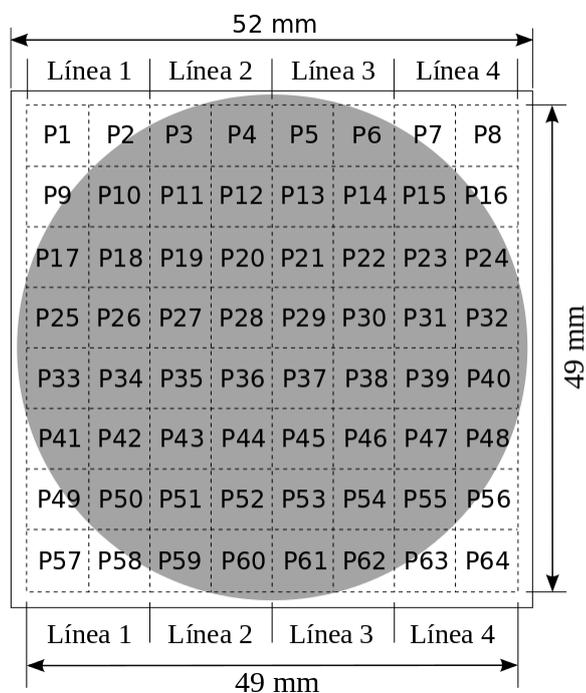


Figura 4.1. Esquema a escala del ánodo del fotomultiplicador H8500C. La superficie sombreada representa la sección transversal de la celda de diámetro $50,8 \text{ mm}$. También se definen los ánodos que constituyen cada una de las 4 líneas de salida

Sin embargo, tal como fue descrito en la sec. 3.3, el fotomultiplicador H8500C tiene 64 ánodos distribuidos en una sección transversal cuadrada ($49 \text{ mm} \times 49 \text{ mm}$), por lo tanto, cuando éste se acopla a una celda cilíndrica de $50,8 \text{ mm}$ de diámetro es imposible aprovechar todos los ánodos del fotomultiplicador. En la Fig. 4.1 se presenta un esquema a escala del ánodo del fotomultiplicador H8500C donde se puede observar la superficie que cubre la celda que contiene el centellador (zona sombreada). Es de hacer notar que los ánodos de las cuatro esquinas (P1, P8, P57 y P64) quedan fuera de uso y que solamente es aprovechada menos de la mitad de la superficie de los ánodos contiguos a éstos. Para estudiar el efecto que esta situación produce sobre la respuesta del sistema ensamblado, se dividió la salida del fotomultiplicador en 4 señales. Cada señal está compuesta por la suma total de corriente que se produce en cada uno de los ánodos que constituye una determinada línea de salida. En la Fig. 4.1 se muestran en detalle los ánodos que constituyen cada una de estas líneas de salida. La línea 1 está conformada por las dos primeras columnas de ánodos, es decir, desde P1 hasta

P58, la línea 2 desde P3 hasta P60, la línea 3 desde P5 hasta P62 y la línea 4 desde P7 hasta P64.

Una vez ensamblados los cuatro detectores (cuatro configuraciones celda/fotomultiplicador) se procedió a realizar mediciones con las fuentes de calibración de ^{22}Na y ^{252}Cf con el propósito de determinar el voltaje de operación óptimo de los fotomultiplicadores y de estudiar el comportamiento de la resolución en energía y del poder de discriminación n/γ de las distintas configuraciones. Se utilizó electrónica de procesamiento digital de pulsos CAEN. La salida de los fotomultiplicadores fue enviada a un *digitizer* V1720 (resolución en voltaje 12 bit, frecuencia de muestreo 250 MHz) en el que se implementó el algoritmo descrito en la sec. 3.4.3 para realizar discriminación n/γ por la forma de los pulsos. Finalmente a través del puerto USB V1718 la información fue enviada hacia la computadora y guardada en un archivo con formato *root*. En la Fig. 4.2 se presenta un esquema del montaje experimental que se usó para realizar las mediciones.

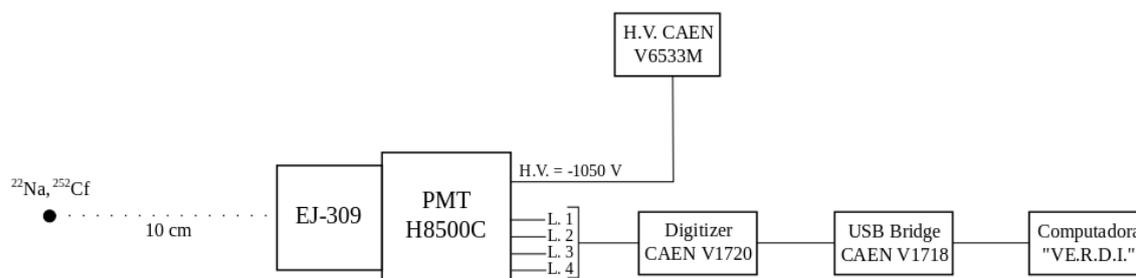


Figura 4.2. Esquema experimental usado para realizar las mediciones. Aunque sólo se presenta la configuración EJ-309/H8500C, el esquema es válido para cualquiera de las otras configuraciones

Con la finalidad de determinar el voltaje de operación óptimo de los fotomultiplicadores H1949-51 acoplados a las celdas que contienen centelladores EJ-309 y EJ-301, se realizaron mediciones del espectro de la fuente de ^{22}Na , de un minuto cada una, en función del voltaje aplicado (desde 1400 V hasta 1700 V en pasos de 100 V). Es de hacer notar que este tipo de fotomultiplicador funciona con voltajes de polaridad negativa. Una vez adquiridos todos los espectros se empleó el procedimiento explicado en la sec. 2.5 para realizar la calibración en energía y determinar los parámetros σ asociados a cada uno de los dos bordes Compton que caracterizan el espectro gamma del ^{22}Na (ver Tabla 3.9). Los resultados de la resolución en energía correspondientes al borde Compton del fotón de 1275 keV se presentan en la Fig. 4.3. L representa la energía (o emisión de luz) del borde Compton del fotón de 1275 keV, el cual es aproximadamente 1062 keV. De la Fig. 4.3 se concluye que a medida que el voltaje aplicado se incremen-

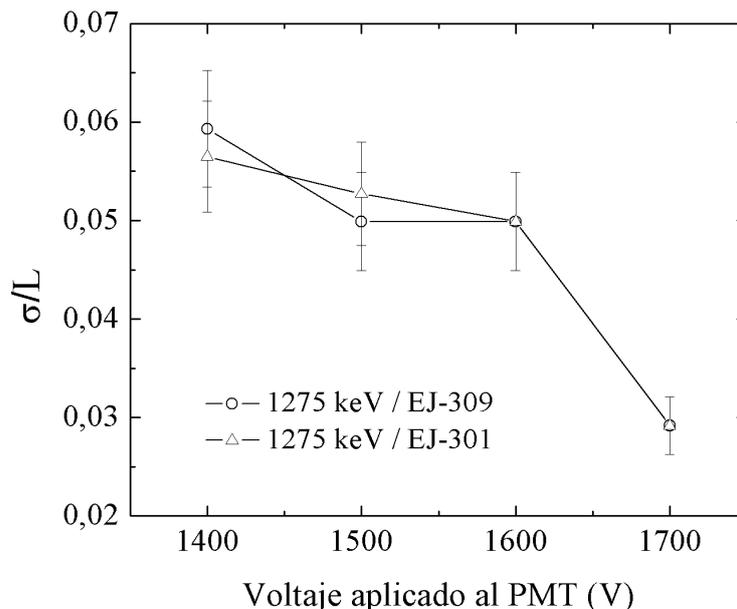


Figura 4.3. Resolución en energía para las configuraciones EJ-309/H1949-51 y EJ-301/H1949-51 en función del voltaje aplicado. La incertidumbre asociada a la determinación de σ es de 10 %

ta la resolución en energía del detector mejora. Sin embargo, por encima de 1600 V buena parte de los pulsos de salida del PMT correspondientes al borde Compton de 1275 keV tienen una amplitud mayor al rango de entrada del *digitizer* (2 Vpp), por lo que se observó un efecto de saturación en el espectro en emisión de luz. Este efecto de saturación se refleja como una aparente mejora en la resolución en energía, pero en realidad ésta se debe a que el borde Compton de 1275 keV posee un corte brusco en la zona de altas energías. Debido a lo explicado anteriormente se determinó que el voltaje de operación óptimo del PMT H1949-51 fue de 1500 V.

Siguiendo un procedimiento similar al mencionado anteriormente se determinó que el voltaje de operación óptimo del fotomultiplicador H8500C es 1050 V (de polaridad negativa). En los detectores asociados al fotomultiplicador H8500C se estudió la resolución en energía y el poder de discriminación n/γ en función del número de líneas de salida consideradas. Se adquirieron datos durante de un minuto con la fuente de ^{22}Na , y seguidamente durante 15 minutos con la fuente de ^{252}Cf (ver Tabla 3.9 para información acerca de las fuentes), en cada uno de los siguientes casos: (i) tomando en cuenta sólo la línea de salida 3, la cual es una de las líneas constituidas por los ánodos centrales, (ii) considerando las dos líneas centrales 2 y 3, (iii) considerando las dos líneas centrales (2 y 3) y una de las laterales (4), y (iv) considerando todas las líneas de salida. En la Fig. 4.4 se presentan los resultados de la resolución en energía (para ambos bordes Compton del espectro de ^{22}Na) en función del número de líneas

de salida consideradas. Tal y como era de esperarse con ambos centelladores, la resolución en energía mejora si se toma en cuenta la mayor cantidad de líneas de salida. Los resultados muestran que no existen grandes diferencias entre considerar 3 o 4 líneas de salida, por lo tanto, se decidió considerarlas todas ya que esto en la práctica no representó ningún inconveniente extra.

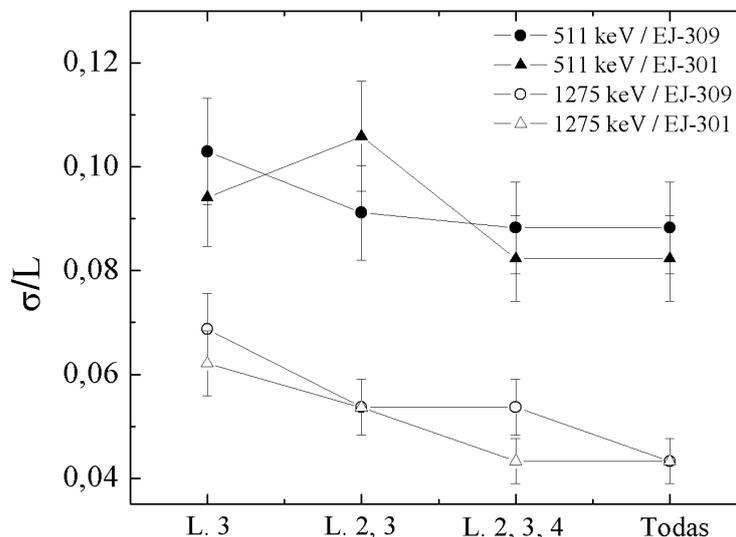


Figura 4.4. Resolución en energía de los detectores EJ-309/H8500C y EJ-301/H8500C en función del número de líneas de salida consideradas. La incertidumbre asociada a la determinación de σ es de 10 %

A fin de ilustrar los resultados discutidos en el párrafo anterior, se presentan en la Fig. 4.5 los espectros de ^{22}Na adquiridos con el detector EJ-309/H8500C tomando en cuenta sólo la línea de salida 3 y considerando todas las líneas. Además se presenta el espectro adquirido con el detector EJ-309/H1949-51. Observando los espectros de la Fig. 4.5 se puede apreciar que los bordes Compton, en el caso de considerar sólo la línea 3 de salida, se ven más suavizados que en el caso de considerar todas las líneas de salida. Esto ocurre debido a que al disminuir el área sensible del cátodo del PMT disminuye la resolución en energía del detector. Del mismo modo se puede observar que la resolución en energía que exhibe el detector EJ-309/H8500C (considerando todas las líneas de salida) es muy similar a la que exhibe el detector EJ-309/H1949-51, esto se debe principalmente a que la eficiencia cuántica de ambos fotomultiplicadores es similar (ver Fig. 3.6).

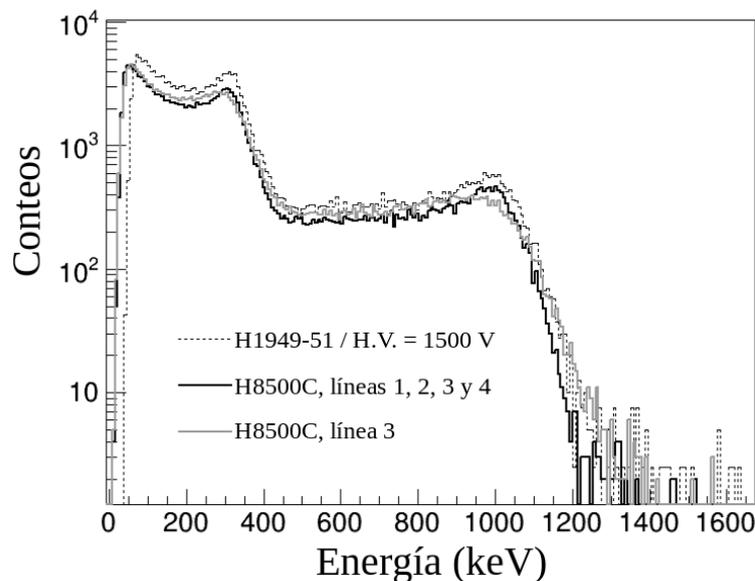


Figura 4.5. Espectros de ^{22}Na adquiridos con el detector EJ-309/H8500C considerando sólo la línea de salida 3 y tomando en cuenta todas las líneas de salida. Además se presenta el espectro adquirido con el detector EJ-309/H1949-51. Este último espectro tuvo un tiempo de adquisición mayor al de los primeros dos

Para estudiar el poder de discriminación n/γ en función del número de líneas de salida consideradas se utilizaron los datos adquiridos con la fuente de ^{252}Cf con los detectores EJ-309/H8500C y EJ-301/H8500C. Con cada conjunto de datos se construyó un histograma bidimensional del parámetro PSD (determinado según la ec. 3.3) en función de la emisión total de luz de cada evento. En la Fig. 4.6a se presenta como ejemplo el histograma bidimensional correspondiente a la adquisición con el detector EJ-309/H8500C tomando en cuenta todas las líneas de salida. Además, se presenta el histograma del parámetro PSD utilizando un umbral para la emisión total de luz (E_{th}) de $0,3 \text{ MeVee}$, ver Fig. 4.6b. En este último se muestran los ajustes gaussianos realizados a las distribuciones correspondientes a fotones gamma y neutrones rápidos. Los parámetros de estos ajustes (centroides y anchos a media altura con sus respectivas incertidumbres) fueron utilizados para determinar la Figura de Mérito (FoM) del detector (ver sec. 2.3).

En la Fig. 4.7 se presentan los resultados de la figura de mérito (definida en la sec. 2.3 por la ec. 2.11) para cada centellador (con $E_{th} = 0,3 \text{ MeVee}$) en función del número de líneas de salida consideradas. Se puede observar la discriminación n/γ es más eficaz cuando se consideran todas las líneas de salida del fotomultiplicador H8500C. Además, se encontró que la capacidad de discriminación n/γ del centellador EJ-301 es ligeramente mayor que la del centellador EJ-309, tal como ha sido reportado en trabajos previos [41].

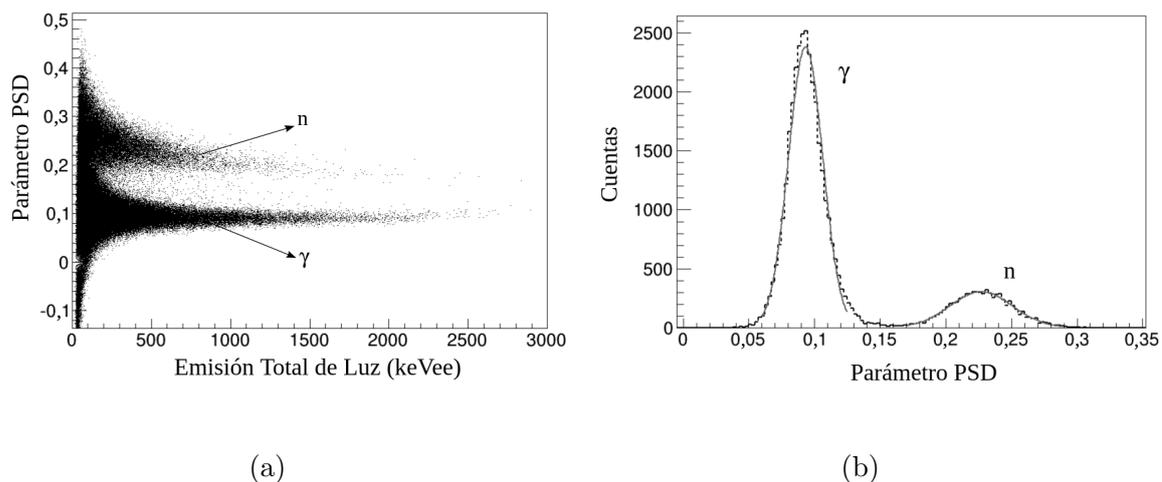


Figura 4.6. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a la medición de una fuente de ^{252}Cf con el detector EJ-309/H8500C tomando en cuenta todas las líneas de salida. (b) Histograma del parámetro PSD utilizando un umbral para la emisión de luz (E_{th}) de $0,3 \text{ MeVee}$. También se muestran los ajustes gaussianos realizados a las distribuciones correspondientes a fotones gamma (γ) y neutrones rápidos (n)

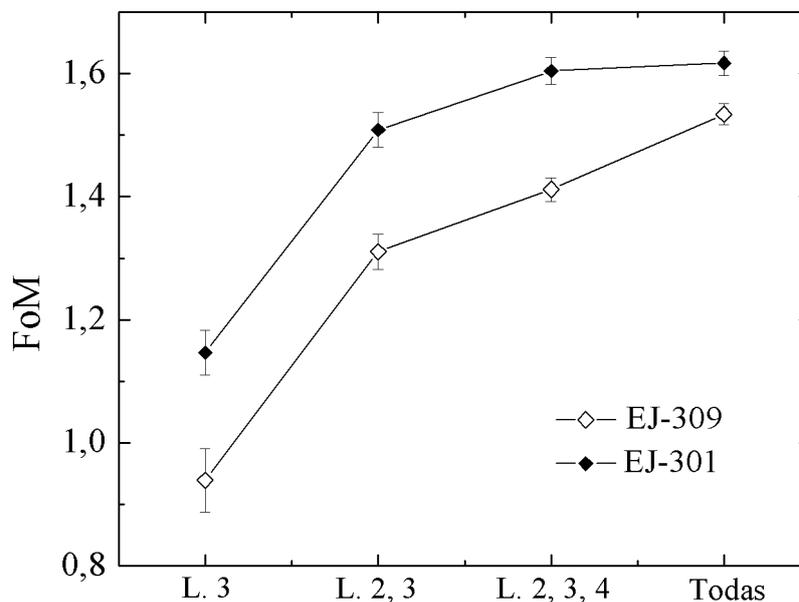


Figura 4.7. Figura de mérito en función del número de líneas de salida consideradas para los detectores EJ-309/H8500C y EJ-301/H8500C. El umbral en emisión de luz usado fue $E_{th} = 0,3 \text{ MeVee}$

4.1.1. Respuesta en una zona con Campo Magnético

Con la finalidad de estudiar la respuesta de los detectores EJ-309/H8500C y EJ-309/H1949-51 en presencia de un campo magnético, se adquirieron un conjunto de espectros con la fuente de calibración de ^{22}Na ubicando los detectores en la cercanía de un electroimán.

El valor del campo magnético en la posición de cada detector fue medido por una sonda Hall (LABORATORIO ELETTRONICO modelo DG4080 con una sonda Hall FW BELL modelo STD 58-0404). En este caso, las salidas de ambos fotomultiplicadores fueron enviadas directamente a dos canales independientes del *digitizer* CAEN DT5751 (10 bits, 1 GHz) en donde se implementó el algoritmo de discriminación por forma de pulsos. La salida del *digitizer* fue enviada a la computadora. Los datos para construir los espectros en energía fueron guardados en archivos con formato *root*.

En las figuras 4.8 y 4.9 se presentan algunos de los espectros medidos para diferentes valores de campo magnético. Es de hacer notar que, a pesar de que el PMT H1949-51 posee una cubierta de mu-metal como blindaje contra campos magnéticos, la ganancia de este fotomultiplicador decrece muy rápido a medida que el campo magnético aumenta. En la Fig. 4.10 se presenta la disminución relativa de la posición del borde Compton asociado al fotón gamma de 1275 keV en función del valor de campo magnético en los detectores considerados en este estudio.

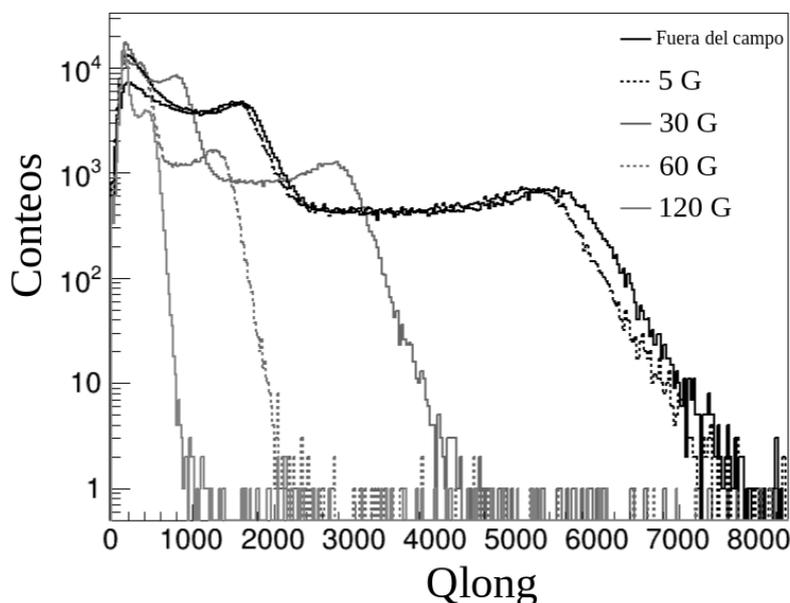


Figura 4.8. Mediciones de los espectros en energía de ^{22}Na con el detector EJ-309/H1949-51 para diferentes valores de campo magnético

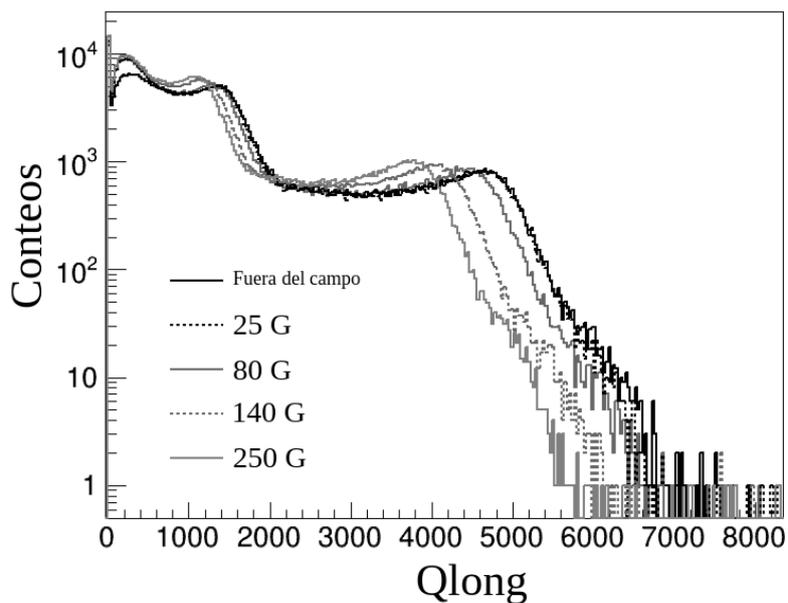


Figura 4.9. Mediciones de los espectros en energía de ^{22}Na con el detector EJ-309/H8500C para diferentes valores de campo magnético

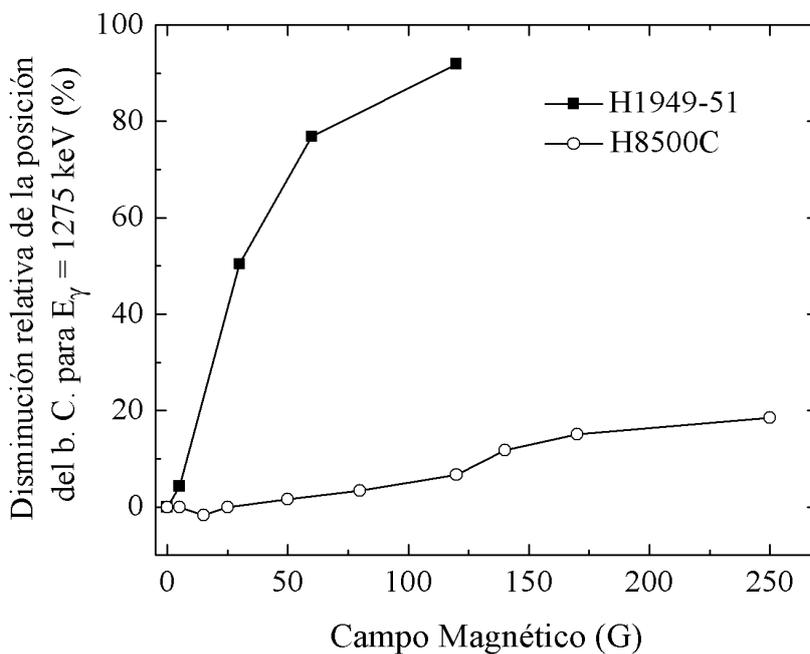


Figura 4.10. Disminución relativa de la posición del borde Compton asociado al fotón gamma de 1275 keV en función del valor de campo magnético en los detectores considerados en este estudio

Así mismo se observa un mayor deterioro de la resolución en energía del detector asociado al PMT H1949-51 a medida que el campo magnético aumenta. Específicamente

se observó una disminución de la resolución en energía (aumento de σ/L) asociada al borde Compton del fotón gamma de 1275 keV de 5 % (con el electroimán apagado) a 11 % (con un campo magnético de 60 G). Por otra parte el deterioro de la resolución en energía del detector asociado al PMT H8500C fue menos severa ya que sólo se observó una disminución del 20 % cuando el campo magnético fue 250 G .

Los resultados anteriormente expuestos están relacionados sin lugar a duda a la distancia que existe entre los dínodos adyacentes en ambos fotomultiplicadores, las cuales son mucho más grandes en el PMT estándar H1949-51 en comparación a las que presenta el fotomultiplicador plano H8500C (12 etapas distribuidas en $\sim 15 \text{ mm}$). Tanto la disminución de la ganancia de los fotomultiplicadores como el deterioro de la resolución en energía de los detectores se deben al desvío de los electrones durante el tiempo de tránsito en la estructura de dínodos. Este fenómeno es mucho menos severo en el caso del PMT plano H8500C.

4.1.2. Resolución Temporal

La resolución temporal de un detector, en mediciones de tiempos de vuelo o mediciones en coincidencia, es un parámetro crítico que debe ser bien conocido para evaluar la incertidumbre del sistema. La principal característica de los centelladores orgánicos es que poseen una respuesta muy rápida en comparación con otros tipos de detectores (semiconductores, gases, entre otros), esto los hace ideales para constituir sistemas que involucren mediciones temporales. En consecuencia, en esta sección se presentan los resultados de las mediciones de la resolución temporal de los detectores EJ-309/H1949-51 y EJ-309/H8500C, con la finalidad de estudiar las diferencias a causa del tipo de fotomultiplicador usado. Para ello se realizó el montaje experimental como el presentado en la Fig. 4.11. Este es un montaje típico para medir coincidencias gamma-gamma.

Además de los detectores a evaluar, se utilizó la fuente de calibración de ^{22}Na y como detector de referencia se usó un centellador plástico EJ-228 de geometría cilíndrica, de 51 mm de diámetro por 51 mm de espesor, acoplado a un fotomultiplicador PHOTONIS XP2020. Los pulsos producidos en ambos detectores fueron adquiridos por dos canales independientes del *digitizer* DT5751. La correlación temporal entre los pulsos coincidentes fue reconstruida usando un *Digital Constant Fraction Discriminator*, *DCFD* [84, 85].

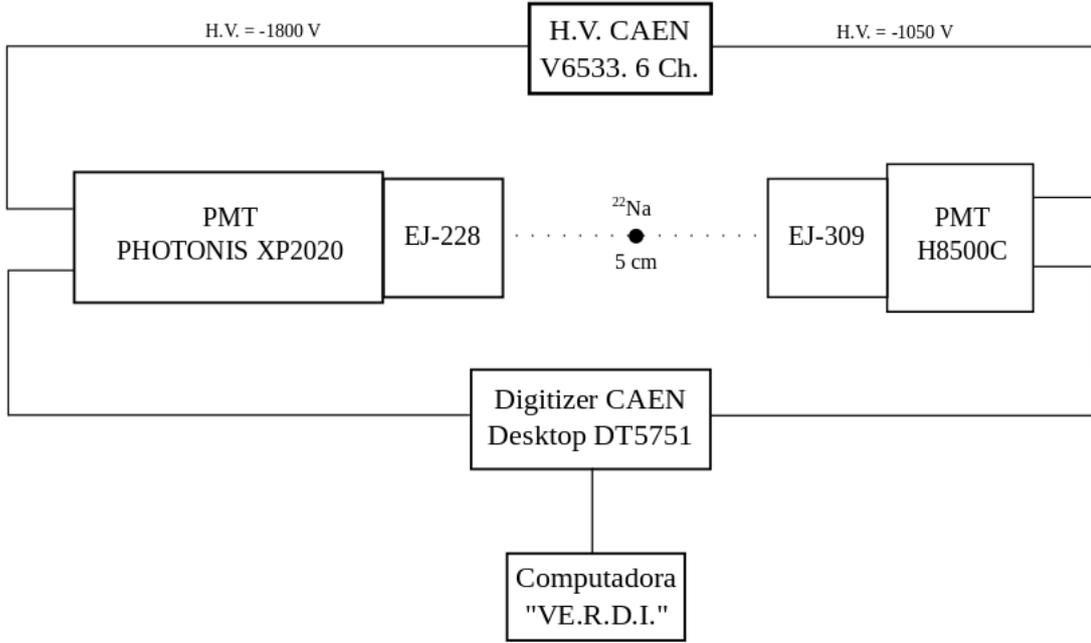


Figura 4.11. Esquema experimental usado para realizar mediciones de coincidencias gamma-gamma con una fuente de ^{22}Na para determinar la resolución temporal de los detectores bajo estudio

Para determinar la resolución temporal de los detectores bajo estudio se procedió de la siguiente manera:

- Se determinó la resolución temporal del detector de referencia (EJ-228). Para hacer esto se hizo un montaje experimental similar al mostrado en la Fig. 4.11 con dos centelladores plásticos EJ-228 idénticos (acoplados a dos PMT's XP2020). La duración de la medición fue de 30 minutos. La resolución temporal del sistema de detectores, σ_t , obedece la siguiente ecuación:

$$\sigma_t^2 = \sigma_{p_1}^2 + \sigma_{p_2}^2 \quad (4.1)$$

donde σ_{p_1} y σ_{p_2} son las resoluciones temporales individuales de cada detector EJ-228. Debido a que los detectores son iguales y a que la electrónica de procesamiento de pulsos es idéntica, se deduce que las resoluciones temporales individuales de cada detector EJ-228 son aproximadamente iguales y que además se pueden determinar a partir de medición de la resolución temporal del sistema.

$$\sigma_{p_1} = \sigma_{p_2} = \sigma_p = \frac{\sqrt{2}}{2} \sigma_t \quad (4.2)$$

En la Fig. 4.12 se presenta el espectro temporal obtenido. En éste se puede observar el pico de coincidencias producido por los fotones de aniquilación de 511 keV emitidos en direcciones opuestas por la fuente de ^{22}Na . En el panel inferior de la misma figura se presentan los espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por cada detector. Como se puede observar sólo se tomaron en consideración eventos con energía mayor que un determinado umbral (100, 150, 200 y 250 keV) y menor que 500 keV . Esto último con la finalidad de eliminar parte de las coincidencias aleatorias que involucran al fotón de 1275 keV . Tal como fue explicado en la sec. 2.6.1, el ancho a media altura (FWHM) del pico de coincidencias representa la resolución temporal del sistema. Por lo tanto, ajustando una función gaussiana al pico de coincidencias se obtuvo el valor para el FWHM.

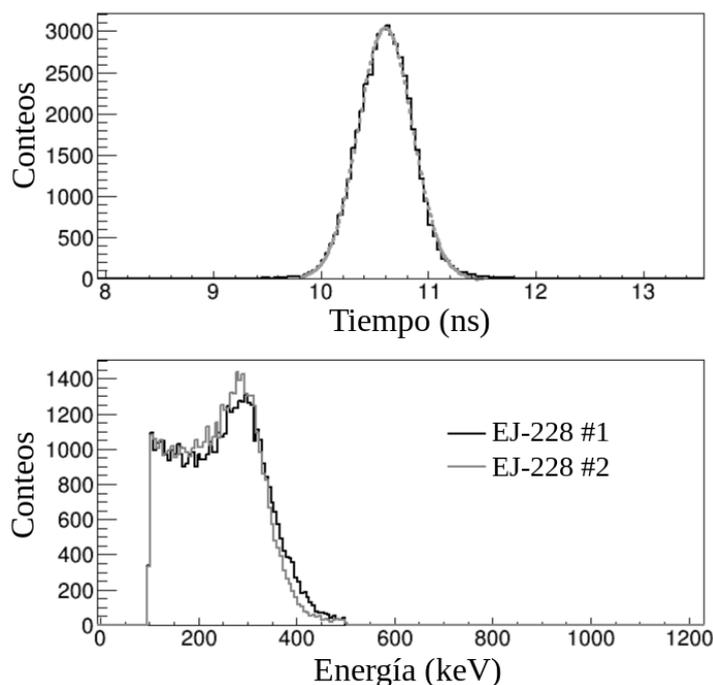


Figura 4.12. (Arriba) Espectro temporal obtenido con los dos detectores plásticos EJ-228. (Abajo) Espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por cada detector ($E_{th} = 100 \text{ keV}$)

- Se seleccionó el detector plástico “EJ-228 # 2” como detector de referencia para las mediciones con los detectores bajo estudio, por ser aquel que exhibió una mejor resolución en energía.

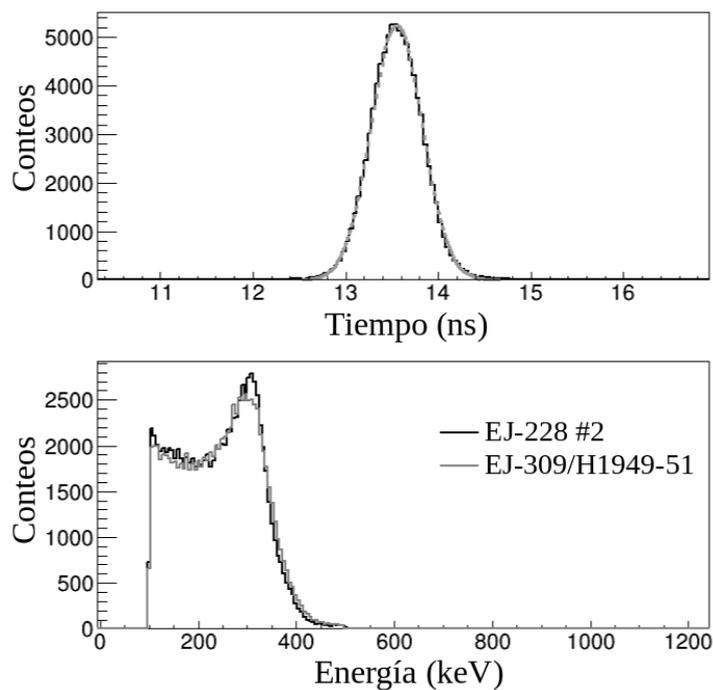


Figura 4.13. Espectro temporal y espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por el sistema “EJ-228 # 2 – EJ-309/H1949-51”. $E_{th} = 100 \text{ keV}$

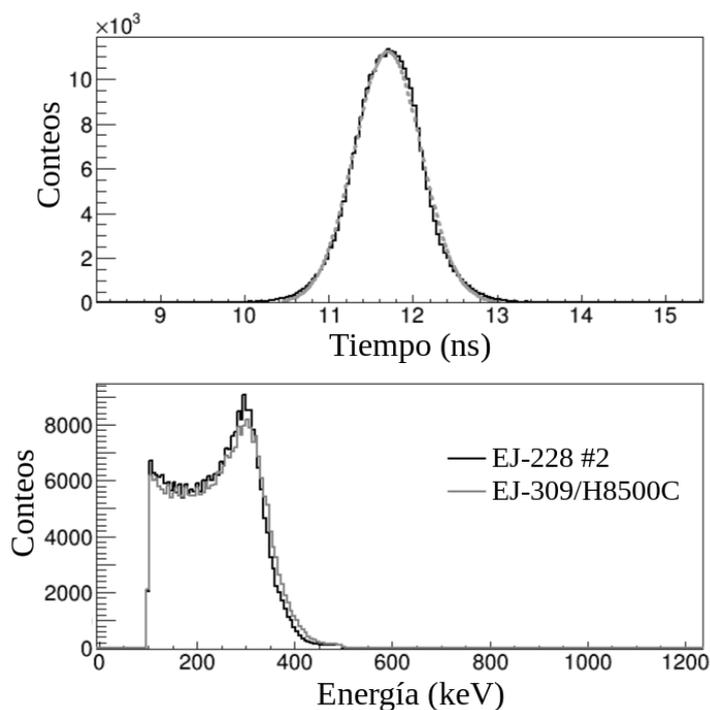


Figura 4.14. Espectro temporal y espectros en energía de los eventos en coincidencia adquiridos por el sistema “EJ-228 # 2 – EJ-309/H8500C”. $E_{th} = 100 \text{ keV}$

- Se determinaron las resoluciones temporales de los sistemas “EJ-228 # 2 – EJ-309/H1949-51” y “EJ-228 # 2 – EJ-309/H8500C” realizando dos mediciones de 60 minutos cada una y haciendo un análisis de los datos similar al expuesto anteriormente para los dos detectores plásticos (ver figuras 4.13 y 4.14). En este caso la resolución temporal del sistema obedece a la siguiente ecuación:

$$\sigma_t^2 = \sigma_p^2 + \sigma^2 \quad (4.3)$$

Tabla 4.1. Valores de resolución temporal de cada uno de los detectores estudiados en función del umbral en energía del DCFD. Las incertidumbres fueron determinadas siguiendo procedimientos de propagación de errores

Umbral en energía del DCFD (keV)	Resolución Temporal EJ-228 (ns) \pm 0,01	Resolución Temporal EJ-309/H1949-51 (ns) \pm 0,01	Resolución Temporal EJ-309/H8500C (ns) \pm 0,01
100	0,43	0,51	0,84
150	0,41	0,46	0,78
200	0,39	0,43	0,75
250	0,39	0,41	0,71

En la ec. 4.3 σ_p representa la resolución temporal del plástico EJ-228 # 2 determinada anteriormente y σ representa la resolución temporal del detector EJ-309/H1949-51 o EJ-309/H8500C según sea el caso. En la Tabla 4.1 se muestran los resultados obtenidos de la resolución temporal de cada detector en función del umbral en energía del DCFD. En la Fig. 4.15 se presentan de manera gráfica los resultados.

Como resultado se obtuvo que la resolución temporal del detector asociado al PMT H1949-51 es mejor que la correspondiente a la del detector asociado al PMT H8500C. Es de hacer notar que si bien la constante de tiempo de sólo uno de los ánodos del PMT H8500C es menor que la del PMT H1949-51, las señales provenientes de los diferentes ánodos del PMT H8500C poseen un cierto retraso variable. La distribución de este retraso con respecto al ánodo P48 ha sido reportada anteriormente [2] (ver Fig. 4.16). En esta distribución se puede apreciar que el valor promedio de este retraso es aproximadamente 0,5 ns, sin embargo, es precisamente el ancho de esta distribución ($FWHM = 0,5 \text{ ns}$) el que contribuye al deterioro de la resolución temporal del PMT H8500C, sobre todo cuando la salida de todos los ánodos es sumada para conformar

una sola señal, como es exactamente nuestro caso.

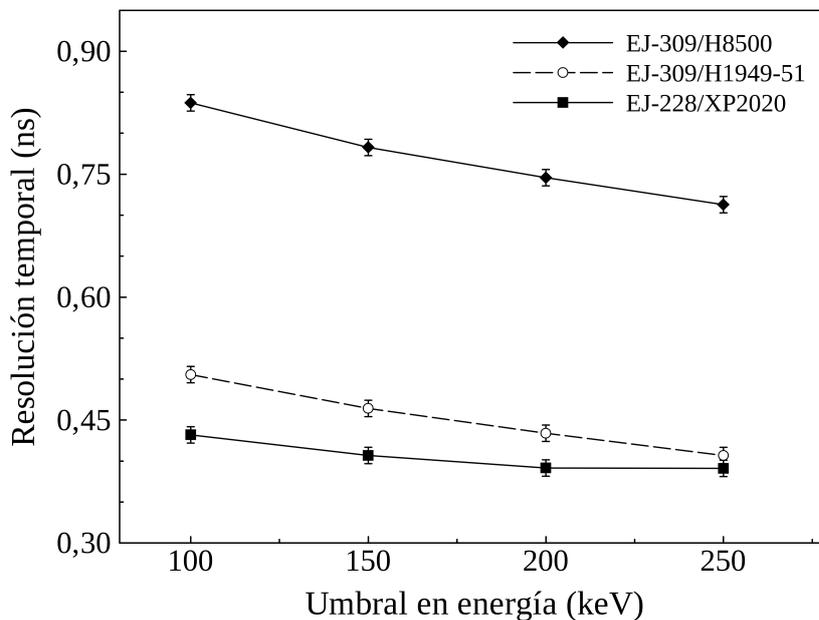


Figura 4.15. Resolución temporal de cada uno de los detectores estudiados en función del umbral en energía del DCFD

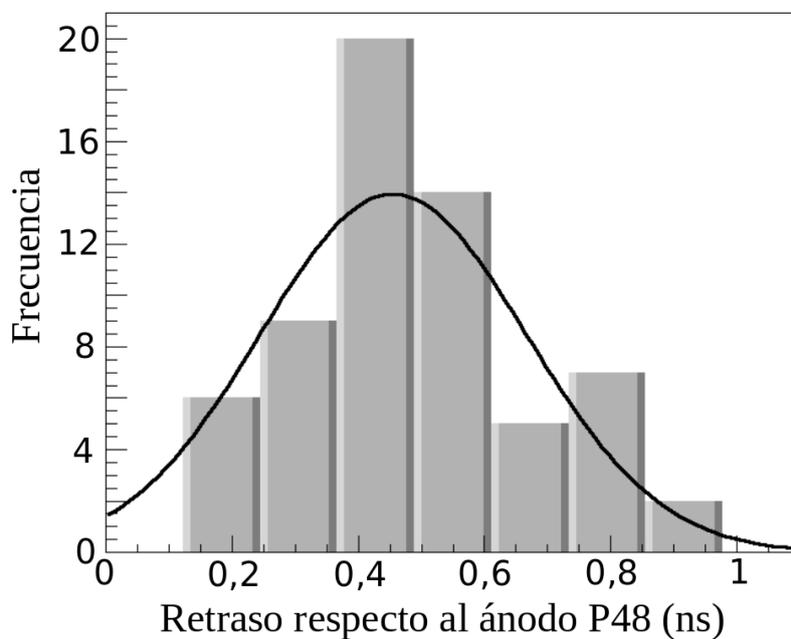


Figura 4.16. Distribución del retraso de las señales provenientes de los ánodos del PMT H8500C respecto al ánodo P48. Datos tomados de [2]

Como comentarios finales de esta sección se puede decir que el detector EJ-309/H8500C ofrece una serie de ventajas sobre el detector EJ-309/H1949-51 que tienen que ver específicamente con un diseño más compacto y liviano, un consumo menor de energía y una mayor resolución en energía. Además, la capacidad del PMT H8500C para trabajar en presencia de campos magnéticos de intensidad media, hace de este detector un instrumento ideal para ser usado dentro del ámbito de la caracterización de plasmas en reactores de fusión. Además, la capacidad de discriminación n/γ de este detector permite su uso en aplicaciones relacionadas con seguridad nacional, por ejemplo, en el desarrollo de sistemas para detectar e identificar fuentes radiactivas en aduanas.

También se encontró que la capacidad de discriminación n/γ de los detectores EJ-309/H8500C y EJ-309/H1949-51 es similar. Y finalmente, la resolución temporal del detector EJ-309/H8500C es menor que la del detector EJ-309/H1949-51, sin embargo, ésta sigue siendo menor que 1 ns , el cual es típicamente el valor máximo a considerar en buena parte de las aplicaciones donde son necesarias mediciones temporales.

4.2. Caracterización del Centellador EJ-309

Con el propósito de hacer un estudio completo del centellador orgánico EJ-309, se presentan en esta sección los resultados obtenidos en la determinación de la función de emisión de luz para protones y la comparación con dos resultados previos reportados en la literatura recientemente. Es de hacer notar que en los centelladores orgánicos la detección de neutrones rápidos está basada fundamentalmente en las dispersiones elásticas de los neutrones con los átomos de hidrógeno que componen el centellador. Los protones que reulan a causa de estas interacciones son los que finalmente producen la emisión de luz. Las energías cinéticas de estos protones dependen de las energías cinéticas de los neutrones incidentes y de los ángulos de dispersión (ver sec. 2.4), por lo tanto, conocer la relación que existe entre la emisión de luz (en *MeVee*) y la energía cinética del protón que la produjo (función de emisión de luz para protones) es un ingrediente esencial para obtener información del espectro de neutrones bajo estudio.

Además de determinar la función de emisión de luz para protones, se midió la eficiencia intrínseca para neutrones del centellador EJ-309. Adicionalmente, utilizando la función de emisión de luz para protones se realizaron dos modelos idénticos del detector, uno con *GEANT4 9.6* y otro con *MCNPX 2.7.0* (códigos usados para el transporte de radiación en materia basados en el método de Monte Carlo, ver sec. 3.6.1 y sec. 3.6.2), con la finalidad de estimar los valores de eficiencia intrínseca para neutrones y de compararlos con las mediciones experimentales. Se estudió el efecto de las diferencias observadas entre las funciones de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 en la estimación de los valores de eficiencia intrínseca para neutrones. Para esto se utilizaron los resultados reportados en la literatura y los obtenidos en este trabajo.

Finalmente, además de usar los modelos construidos con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*, se utilizó un tercer modelo (idéntico a los dos anteriores) realizado con el código PENELOPE 2008 (ver sec. 3.6.3) para estimar los valores de eficiencia intrínseca para fotones gamma del centellador EJ-309. Se presenta la comparación entre los resultados experimentales y los obtenidos por los tres códigos mencionados anteriormente.

4.2.1. Determinación de la Función de Emisión de Luz para Protones

El esquema experimental utilizado para determinar la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 se presenta en la Fig. 4.17. El montaje está compuesto por una fuente de ^{252}Cf ($3,7 \times 10^6$ n/s), colimadores de polietileno, electrónica de procesamiento digital de pulsos y dos detectores, un EJ-228 acoplado a un PMT XP2020 PHOTONIS posicionado muy cerca de la fuente de ^{252}Cf y un EJ-309 acoplado a un PMT H8500C ubicado aproximadamente a 2 metros de la fuente radiactiva. Los pulsos

de salida del EJ-309 fueron enviados a un *constant fraction discriminator* (CFD). La señal de salida del CFD sirvió para especificar la ventana temporal de adquisición del *digitizer* (*trigger*). Además, las señales provenientes de ambos detectores fueron retrasadas convenientemente para que los eventos en coincidencia (neutrones y gammas emitidos en una fisión espontánea) quedaran dentro de la ventana de adquisición. La principal ventaja de adquirir los datos de esta manera es que la mayoría de los eventos guardados son los eventos de interés (coincidencias verdaderas), esto permitió hacer mediciones durante un intervalo de tiempo largo con la finalidad de obtener resultados con una buena estadística.

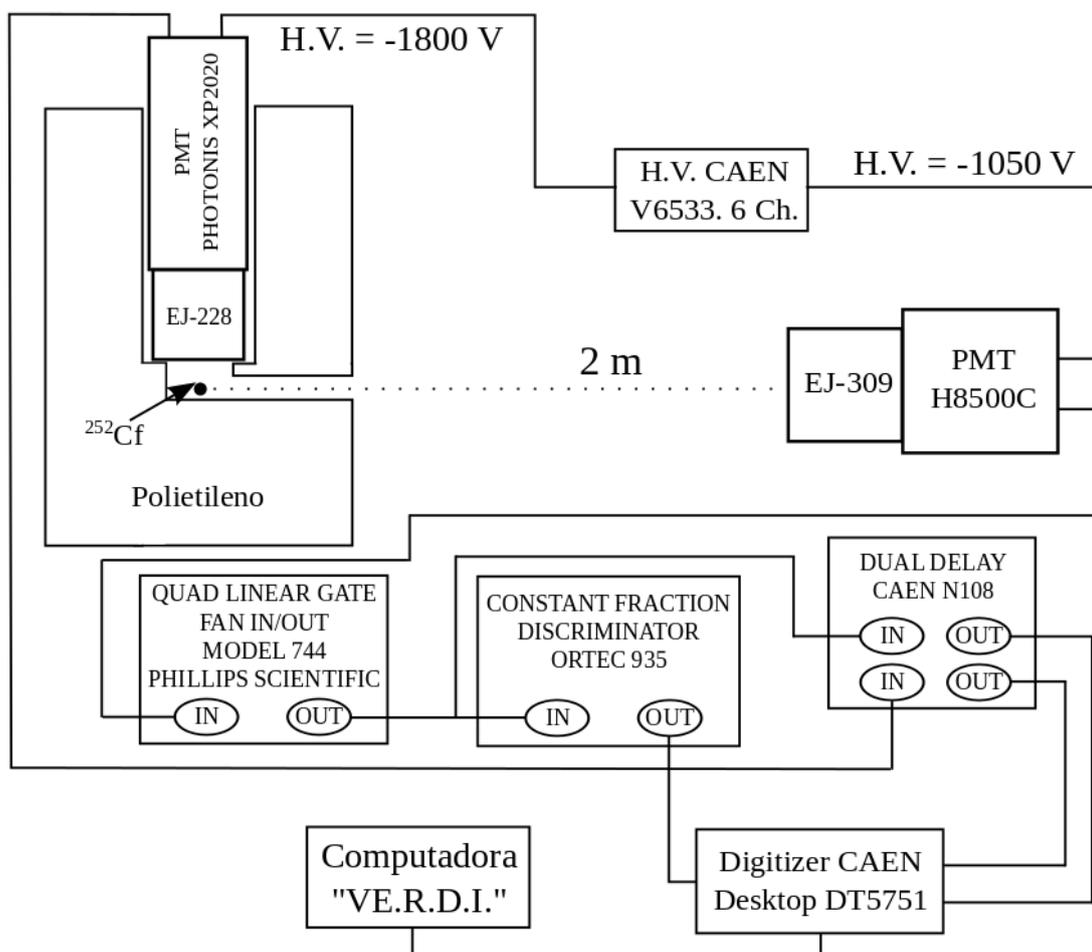


Figura 4.17. Esquema experimental utilizado para determinar la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309

Debido a que para cada pulso guardado se posee su integral total (emisión de total de luz), su integral parcial (necesaria para determinar el parámetro PSD) y su etiqueta temporal, entonces es posible reconstruir el espectro temporal de la totalidad de los eventos en coincidencia. Pero además, implementando el análisis por forma de pulsos en

los datos del detector EJ-309, es posible filtrar dicho espectro seleccionando únicamente aquellas coincidencias asociadas a eventos de neutrones en el detector EJ-309. Esto se hace con la finalidad de obtener un espectro en tiempo de vuelo de neutrones mucho más limpio. En la Fig. 4.18 se muestra el efecto de implementar la discriminación n/γ en el detector EJ-309 sobre el espectro temporal reconstruido.

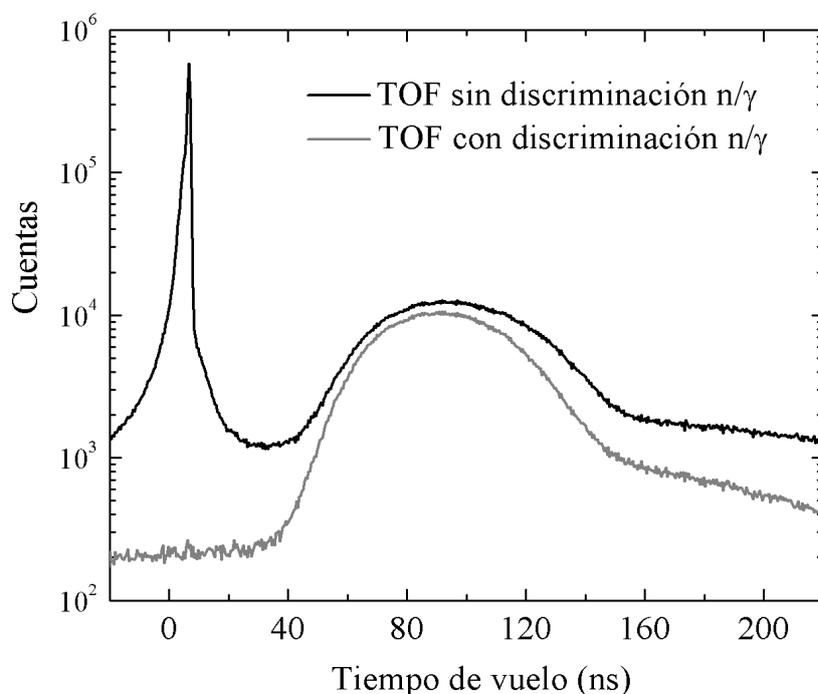


Figura 4.18. Reconstrucción del espectro temporal de la totalidad de eventos en coincidencia. El efecto de implementar la discriminación n/γ en el detector EJ-309 es puesto en evidencia

Para seleccionar los eventos que corresponden en su mayoría a neutrones en el detector EJ-309 se hizo una adquisición de datos con la fuente de calibración de ^{22}Na , luego, se reconstruyó el histograma bidimensional del parámetro PSD en función de la emisión total de luz, y debido a que en este histograma los eventos corresponden únicamente a fotones gamma, se trazó una curva que divide al histograma en dos zonas, una donde se encuentran los eventos gamma (por debajo de la curva) y otra donde están los eventos que corresponden a neutrones (por encima de la curva). En la Fig. 4.19 se presentan los histogramas bidimensionales característicos de ^{22}Na y ^{252}Cf sobre los cuales se observa la curva discriminadora.

Para determinar la función de emisión de luz para protones se usó el método propuesto por Kornilov et al. (2009) [24]. Este método se basa en el hecho de que el histograma de altura de pulsos (o espectro en emisión de luz) característico de un haz de neutrones monoenergéticos corresponde principalmente a la distribución de protones que reculan

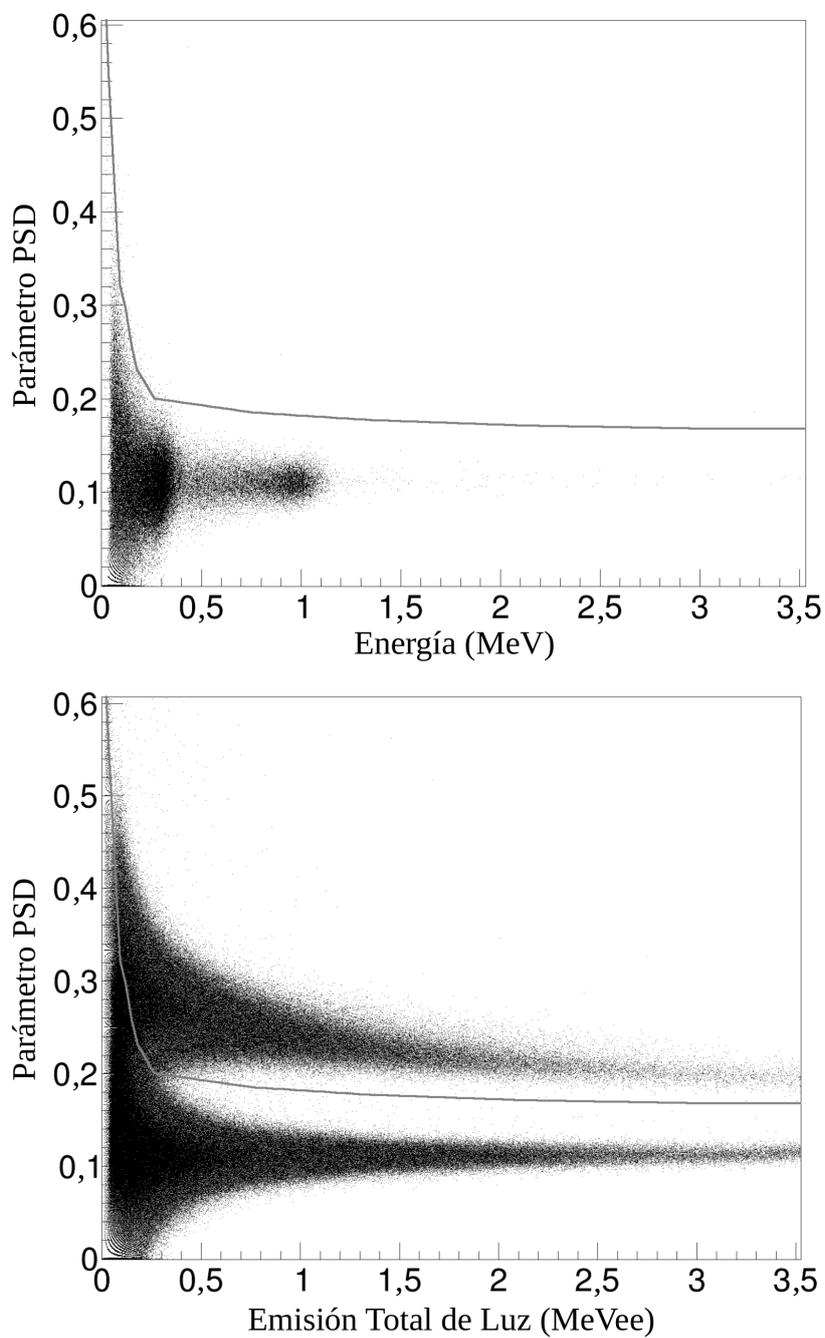


Figura 4.19. Histogramas bidimensionales del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondientes a ^{22}Na (arriba) y ^{252}Cf (abajo). Se presenta también la curva que se usó para la discriminación n/γ . Los datos corresponden a los eventos producidos en el detector EJ-309

como consecuencia de las dispersiones elásticas de los neutrones con los átomos de hidrógeno que componen el centellador. Por lo tanto, la posición del borde superior de este espectro, el cual está ubicado en la zona de pulsos con mayor amplitud, indica la cantidad de luz emitida en eventos donde toda la energía del neutrón incidente ha sido transferida a un protón. Entonces, la función de emisión de luz para protones se obtiene determinando la posición del mencionado borde (en $MeVee$) en un conjunto de espectros en emisión de luz correspondientes a neutrones monoenergéticos. Nótese que la energía del neutrón incidente corresponderá a la energía cinética del protón que recula en este caso.

Para construir los espectros en emisión del luz de neutrones cuasi monoenergéticos se dividió el espectro en tiempo de vuelo que incluye el filtro por discriminación n/γ (Fig. 4.18) en el rango $50 - 200 ns$ en ventanas de $2 ns$. Con los datos correspondientes a cada ventana se construyeron 75 espectros en emisión del luz de neutrones con energías cinéticas entre $0,6$ y $8,2 MeV$. El ancho de $2 ns$ trae como consecuencia que las incertidumbres asociadas a los valores de energía cinética de los neutrones incidentes sean entre 27 y $300 keV$. En la Fig. 4.20 se presentan los espectros en emisión de luz para neutrones de $1,5$; $2,5$; $3,5$; $4,5$; 6 ; y $7 MeV$. A fin de poder analizar cómodamente todos los espectros se utilizó la función `TH1::Smooth()` del programa `root` que sirve para suavizar la tendencia de un histograma [86].

Debido a que la resolución en energía del centellador es finita, el borde superior de los espectros en emisión de luz se suavizan (ver Fig. 4.20), por lo tanto, para poder determinar su posición con exactitud se calculó numéricamente la primera derivada de cada espectro. En la Fig. 4.21 se presenta el espectro en emisión de luz para neutrones de $2,5 (\pm 0,08) MeV$ y su respectiva primera derivada. El mínimo de mayor energía de la primera derivada, es decir, el que se ubica más hacia la derecha, corresponde a eventos donde toda la energía cinética del neutrón se transfirió a un protón en una sola dispersión. Mientras que, el mínimo que se observa muy cerca del anterior es debido a la transferencia total de la energía cinética del neutrón a causa de dispersiones múltiples. Obviamente se está interesado en determinar la posición (en $MeVee$) del mínimo de mayor energía de la primera derivada. Para ello se tomó la parte de esta función (la derivada) que sigue a la derecha de este mínimo, se invirtió y se clonaron los datos hacia la parte izquierda para construir una distribución que se aproxima bastante bien a una gaussiana. Se ajustó una función gaussiana a esta última distribución para determinar de manera exacta su centroide, ver Fig. 4.22. El valor del centroide corresponde exactamente a la posición del mínimo de mayor energía de la primera derivada.

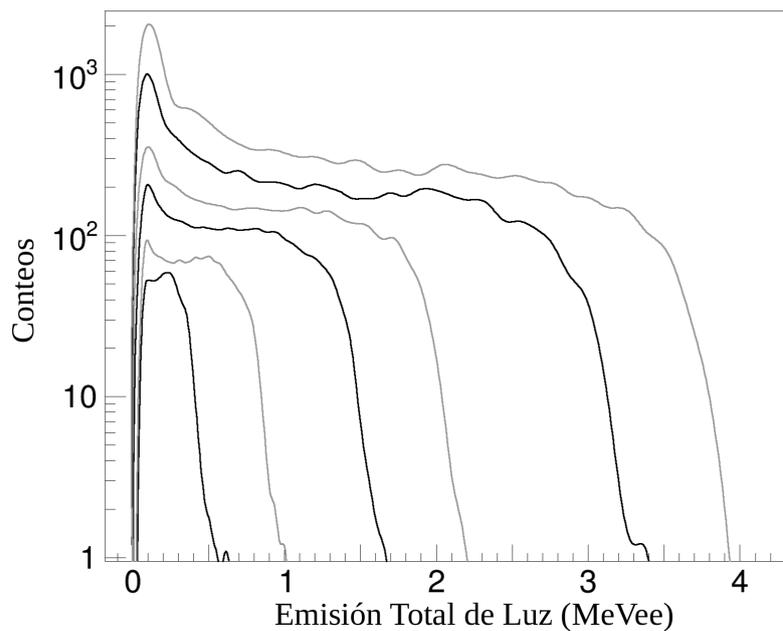


Figura 4.20. Espectros en emisión de luz para neutrones de 1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 6; y 7 MeV . El espectro de mayor altura corresponde a neutrones de 7 MeV , los demás siguen en orden decreciente

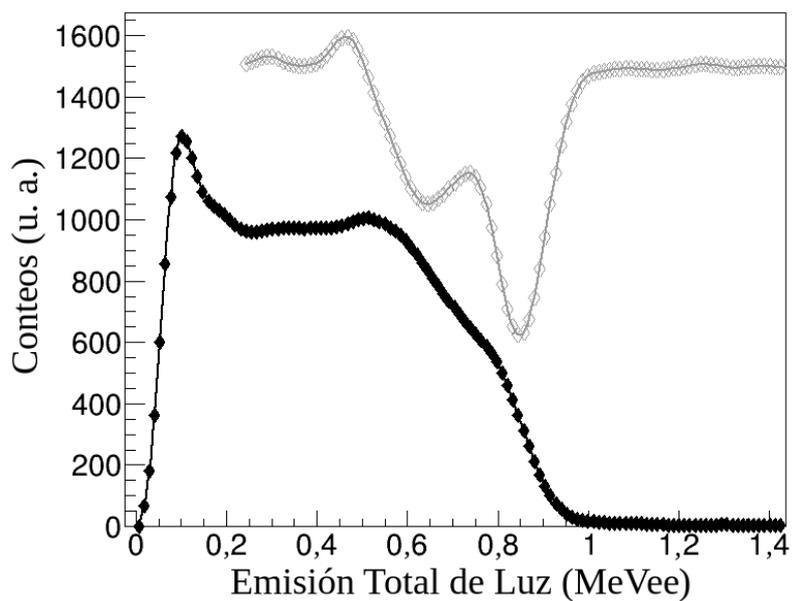


Figura 4.21. Espectro en emisión de luz para neutrones de $2,50 \pm 0,08 MeV$ y su respectiva primera derivada. La escala vertical en la que se representa la derivada es arbitraria

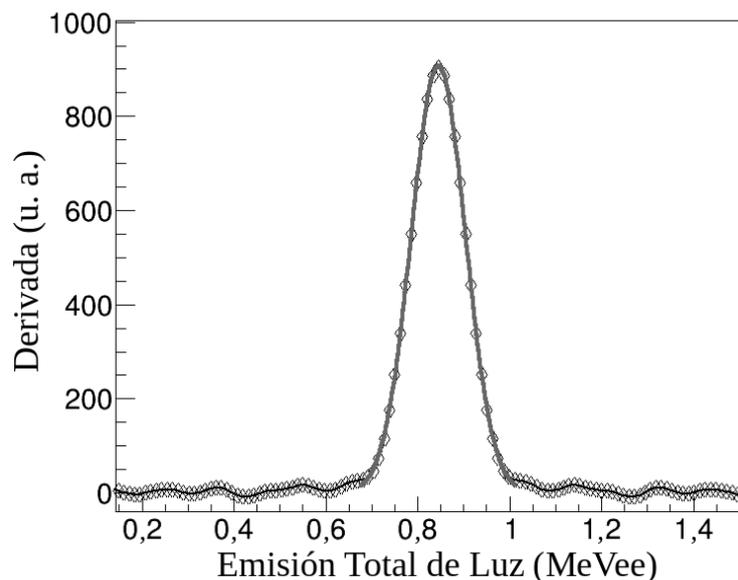


Figura 4.22. Derivada extendida, alrededor de la zona de interés, del espectro en emisión de luz de neutrones de $2,50 \pm 0,08$ MeV. Se muestra el ajuste gaussiano a partir del cual se determinó su centroide

Una vez determinadas las posiciones de los mínimos de mayor energía de las primeras derivadas de los 75 espectros en emisión de luz correspondientes a neutrones cuasi monoenergéticos, se construyó la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 (emisión del luz en *MeVee* en función de la energía cinética del protón que la produce). En la Fig. 4.23 se presentan los resultados experimentales y además se muestra la curva que se ajusta a dichos puntos la cual obedece a la ec. 2.10.

Tabla 4.2. Parámetros de ajuste de la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 obtenida en este trabajo. Se muestran también los correspondientes parámetros de las funciones reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al. (2011). (*) El espesor de este detector es de 51 mm. Los espesores de los demás detectores son iguales a sus diámetros

Autor	Diámetro (mm)	A (<i>MeVee/MeV</i>)	B (<i>MeVee</i>)	C (1/ <i>MeV</i>)	D
Este trabajo	51	$0,62 \pm 0,03$	$1,3 \pm 0,3$	$0,39 \pm 0,08$	$0,97 \pm 0,04$
Ref. [36]	121,7	0,646	1,479	0,393	1
Ref. [37]	127	0,748	2,410	0,298	1
	76	0,817	2,630	0,297	1
	(*)76	1,103	5,155	0,207	1

En la Tabla 4.2 se muestran los parámetros de ajuste de la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 obtenida en este trabajo y los correspondientes parámetros de las funciones reportadas en la literatura hasta la actualidad. Nótese que en la Tabla 4.2 se especifica el diámetro del detector estudiado, todos de geometría cilíndrica. En la Fig. 4.23 se presentan los puntos experimentales obtenidos en este trabajo y su correspondiente ajuste. Además, a modo de comparación, se muestran las curvas reportadas en la literatura recientemente [36,37].

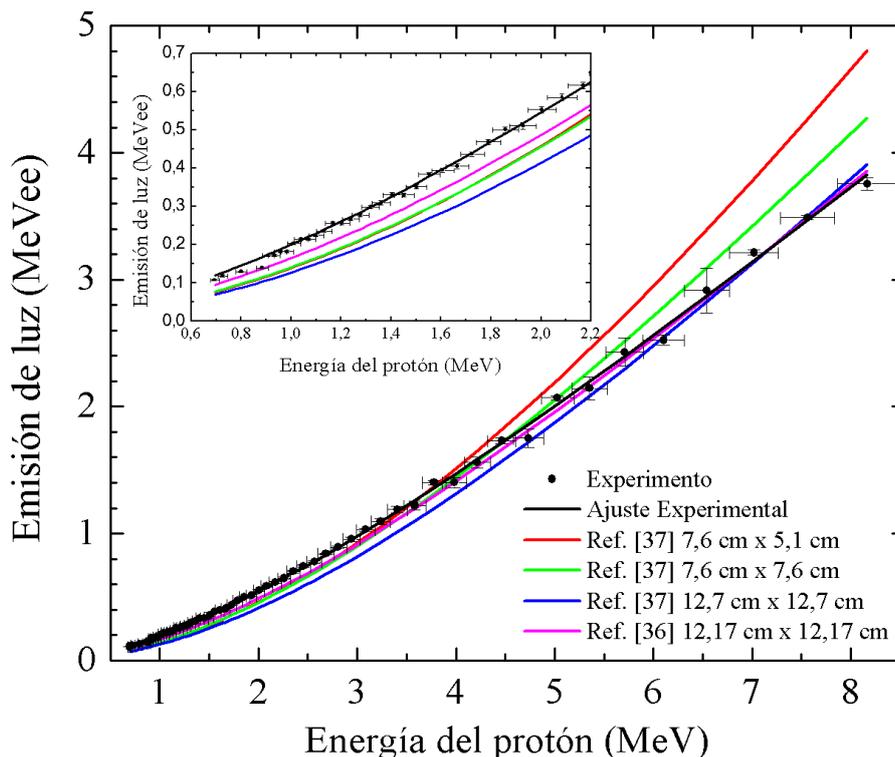


Figura 4.23. Función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309. Se presentan los puntos experimentales, el ajuste a estos puntos y las funciones de emisión de luz reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al. (2011)

Dos características importantes resaltan de los resultados reportados en la literatura: la primera es que existe una clara dependencia entre las funciones de emisión de luz y el tamaño del detector [37], y la segunda es que incluso para detectores de tamaño similar (aproximadamente de $12\text{ cm} \times 12\text{ cm}$) las funciones muestran diferencias notables (hasta 6 MeV). Está claro que la curva que mejor se aproxima a los puntos experimentales obtenidos en este trabajo es la reportada por Takada et al. (2011) [36], en particular para energías mayores a 4 MeV , esto a pesar de las diferencias de tamaño entre ambos detectores. En ese mismo rango de energía se encontraron las mayores discrepancias con los resultados de Enqvist et al. (2013) [37], sobre todo con los reportados para los detectores más pequeños los cuales son más parecidos al utilizado en este trabajo. Es

preciso mencionar que los datos experimentales reportados en [37] se extienden sólo hasta 6 MeV , por lo que en la Fig. 4.23 se presentan extrapolaciones de los mismos. Finalmente, por debajo de 3 MeV también se observan pequeñas diferencias entre los datos obtenidos en este trabajo y los reportados en la literatura (ver la figura incrustada en la Fig. 4.23). En la sección 4.2.2 se muestra el efecto que producen las diferencias entre las funciones de emisión de luz para protones en la modelización por Monte Carlo de la detección de neutrones con el centellador EJ-309.

4.2.2. Eficiencia Intrínseca para Neutrones

Para determinar la eficiencia intrínseca para neutrones del centellador EJ-309 se utilizaron los mismos datos experimentales que se usaron para determinar la función de emisión de luz para protones, es decir, el espectro en tiempo de vuelo de neutrones presentado en la Fig. 4.20. Conociendo la distancia entre la fuente y el detector EJ-309 ($\sim 2 \text{ m}$), denominada longitud de vuelo, es posible obtener la distribución en energía de los neutrones detectados $Y = Y(E)$. Entonces, la eficiencia relativa para neutrones en función de la energía del neutrón incidente se obtiene dividiendo esta distribución $Y = Y(E)$ entre el espectro de neutrones de fisión emitidos por el ^{252}Cf , el cual obedece a una distribución de Watt (ver ec. 3.4 y Fig. 3.13). Sin embargo, para determinar un valor absoluto de la eficiencia para neutrones se requirió usar la modelización por Monte Carlo del detector EJ-309 descrito en el cap. 3.6. A fin de comparar el desempeño de los códigos *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* en la determinación de la eficiencia intrínseca para neutrones se realizaron simulaciones con ambos códigos utilizando el mismo modelo geométrico.

Para validar los modelos basados en el método de Monte Carlo se realizó una medición con el esquema experimental de la Fig. 4.17 en “*single mode*”, es decir, guardando todos los eventos que se producen en ambos detectores. Esta medición se hizo durante una hora. Los eventos registrados en el detector EJ-228 fueron usados para etiquetar los eventos de fisión, por lo que se aplicó un umbral en emisión de luz apropiado ($0,2 \text{ MeVee}$) para descartar eventos provenientes de la desexcitación de estados isoméricos de los productos de fisión. Los eventos de neutrones medidos en coincidencia con los eventos registrados en el detector plástico sirvieron para determinar los valores de eficiencia de conteo total para neutrones emitidos por una fuente de ^{252}Cf en función del umbral en emisión de luz aplicado al detector EJ-309.

Por otra parte se realizaron simulaciones por Monte Carlo de fuentes puntuales monoenergéticas de neutrones ubicadas a 2 m de distancia de la cara del detector EJ-309. Las fuentes se simularon una por una. La energía cinética de los neutrones incidentes se varió entre $0,5 - 8,5 \text{ MeV}$ en pasos de $0,5 \text{ MeV}$. Utilizando la función de

emisión de luz para protones del centellador EJ-309 que se obtuvo en este trabajo (ver Fig. 4.23) se determinaron los espectros en emisión de luz correspondientes a neutrones con una determinada energía cinética. Integrando estos espectros en emisión de luz, por encima de cierto umbral, se obtuvo la eficiencia intrínseca de conteo para neutrones (para una energía determinada).

En la Tabla 4.3 se presentan los resultados experimentales y simulados por Monte Carlo con los modelos hechos en *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*. Los resultados simulados por Monte Carlo fueron obtenidos calculando el promedio ponderado (por factores de peso derivados de la distribución de Watt) de los valores de eficiencia intrínseca de conteo obtenidos para neutrones monenergéticos.

Tabla 4.3. Eficiencia de conteo total para neutrones emitidos por una fuente de ^{252}Cf . Se presentan los resultados experimentales y simulados por Monte Carlo con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*

Umbral en emisión de luz del detector EJ-309 (<i>MeVee</i>)	Eficiencia de conteo experimental (%) $\pm 5\%$	Eficiencia de conteo GEANT4 (%)	Eficiencia de conteo MCNPX (%)
0,1	33,0	34,9	33,1
0,2	22,0	22,8	21,9

Los resultados experimentales y simulados por Monte Carlo de la eficiencia de conteo total del detector EJ-309 para neutrones emitidos por una fuente de ^{252}Cf muestran una excelente correspondencia entre sí, lo cual permitió la validación de ambos modelos. Debido a esto, se procedió a determinar las curvas de eficiencia intrínseca utilizando los resultados de las simulaciones hechas anteriormente con neutrones monoenergéticos. Luego, se normalizaron las curvas de eficiencia relativa en función de la energía del neutrón incidente a las curvas calculadas por Monte Carlo (por mínimos cuadrados). Las curvas de eficiencia intrínseca para neutrones utilizando como umbral en emisión de luz 0, 1; 0, 2; 0, 3 y 0, 4 *MeVee* se presentan en la Fig. 4.24. Se encontró una excelente correspondencia entre los resultados experimentales y simulados por Monte Carlo con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*.

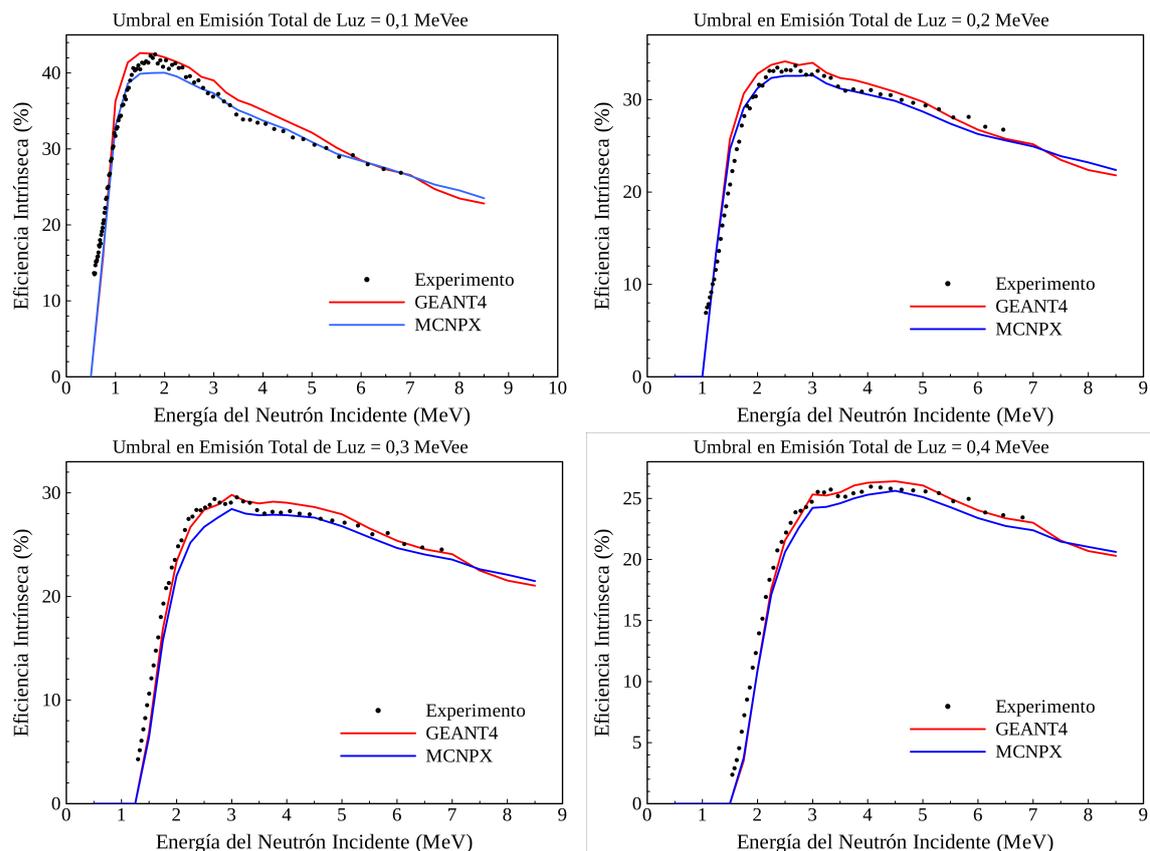


Figura 4.24. Curvas de eficiencia intrínseca para neutrones del detector EJ-309. Se presenta la comparación entre los resultados experimentales y las simulaciones por Monte Carlo realizadas con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*. Los umbrales en emisión de luz de estas curvas son: 0, 1, 0, 2, 0, 3 y 0, 4 *MeVee*

Para entender la importancia de conocer en detalle la función de emisión de luz para protones de un centellador con la finalidad de simular la detección de neutrones, se presenta en la Fig. 4.25 la comparación entre las curvas de eficiencia para neutrones determinadas con las simulaciones hechas con *MCNPX 2.7.0* utilizando tres de las funciones de emisión de luz presentadas en la Fig. 4.23 (el umbral en emisión de luz es 0, 2 *MeVee*), la obtenida en este trabajo y las reportadas por Takada et al. (2011) y Enqvist et al. (2013) para detectores de 12 *cm* x 12 *cm* y 7,6 *cm* x 7,6 *cm* respectivamente. Las pequeñas diferencias entre estas funciones (ver figura incrustada de la Fig. 4.23) producen discrepancias considerables en las curvas de eficiencia.

Con la finalidad de profundizar más en este hecho se presentan en la Fig. 4.26 los espectros en emisión de luz simulados con neutrones de 2, 5 *MeV* utilizando cada una de las funciones de emisión de luz antes mencionadas. El espectro simulado con la función de emisión de luz determinada en este trabajo es más extenso que los demás espectros debido a que las otras funciones reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al.

(2011) predicen una menor emisión de luz para protones con energías entre $0,7 - 3 \text{ MeV}$. Al integrar estos espectros en emisión de luz (por encima de cierto umbral) para determinar los valores de eficiencia para neutrones, es claro que éstos serán subestimados en el caso de utilizar los resultados obtenidos con las funciones de emisión de luz reportadas por Enqvist et al. (2013) y Takada et al. (2011).

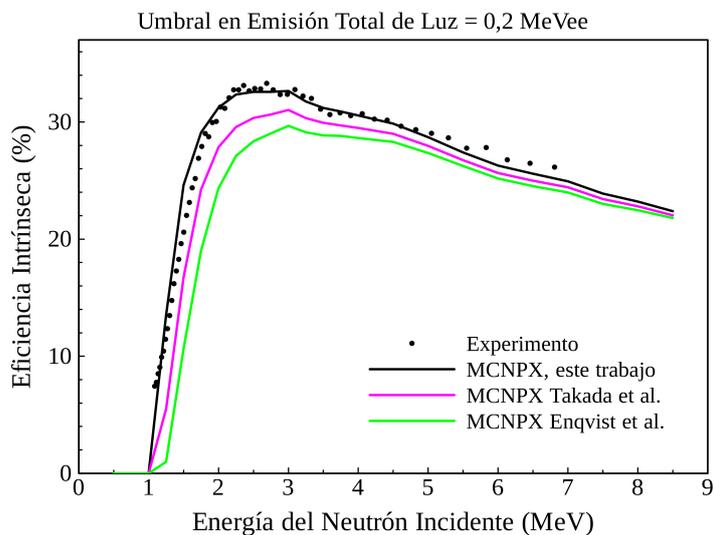


Figura 4.25. Curvas de eficiencia para neutrones determinadas con las simulaciones hechas con *MCNPX 2.7.0* utilizando las funciones de emisión de luz presentadas en la Fig. 4.23. El umbral en emisión de luz es $0,2 \text{ MeVee}$

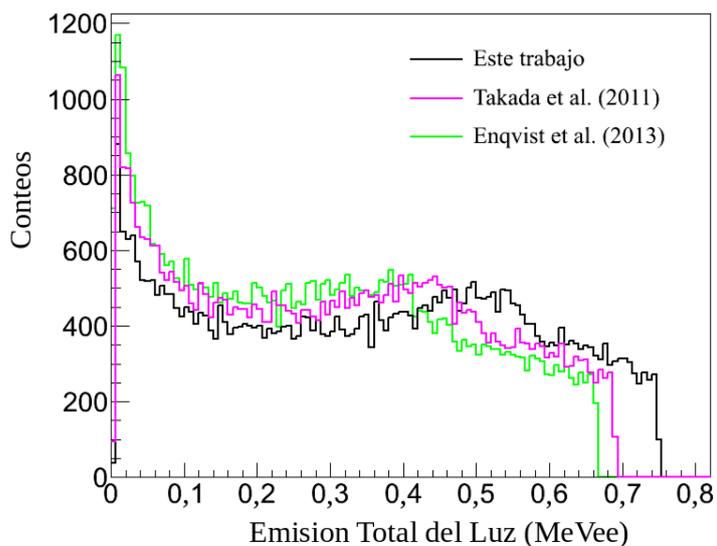


Figura 4.26. Espectros en emisión de luz para neutrones de $2,5 \text{ MeV}$ calculados con las funciones de emisión de luz presentadas en la Fig. 4.23

4.2.3. Eficiencia Intrínseca para Fotones Gamma

El espectro en emisión de luz de un haz de fotones gamma monoenergéticos adquirido por un centellador orgánico es un espectro continuo, el cual corresponde al borde Compton de dicho fotón. Debido al bajo número atómico y a la baja densidad de estos materiales, la probabilidad de que el fotón gamma sea absorbido completamente es muy baja, por lo que a su vez es poco probable observar el pico de absorción máxima, sobre todo si el detector bajo estudio posee un volumen pequeño (como es el caso de este trabajo). Este hecho hace prácticamente imposible el uso de las fuentes de calibración convencionales, las cuales en su mayoría emiten fotones de diferentes energías, y el uso de la metodología estándar (aplicada para centelladores inorgánicos y semiconductores [1]) para la determinación de la curva de eficiencia gamma de estos tipos de detectores. En lugar de eso, las simulaciones por Monte Carlo de fuentes gamma monoenergéticas son la opción más adecuada para resolver este problema.

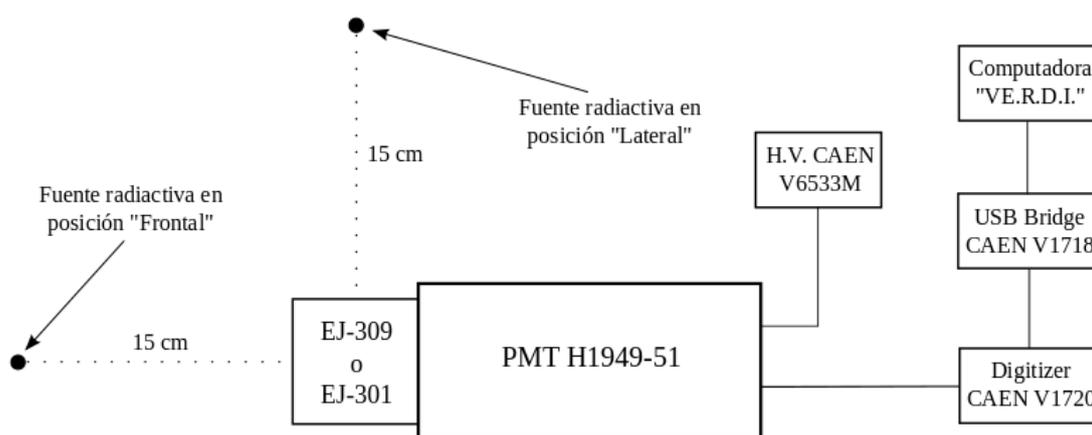


Figura 4.27. Esquema experimental utilizado para medir la eficiencia de conteo total gamma de los centelladores EJ-309 y EJ-301. Se muestran las posiciones "frontal" y "lateral" de la fuente radiactiva con respecto al detector

Para determinar la curva de eficiencia gamma del detector EJ-309 se utilizó el modelo construido con el código *PENELOPE 2008*. Para validar este modelo, se realizaron mediciones y simulaciones por Monte Carlo de la eficiencia de conteo total gamma de los centelladores EJ-309 y EJ-301 para tres fuentes de calibración distintas: ^{137}Cs , ^{22}Na y ^{60}Co . El esquema experimental utilizado se presenta en la Fig. 4.27. Nótese que con cada fuente de calibración se realizaron mediciones en dos posiciones distintas, una frontal al detector y otra lateral al mismo. Esto se hizo con la finalidad de estudiar las posibles diferencias de la eficiencia gamma en función de la posición de la fuente radiactiva. Cada medición tuvo una duración de dos minutos. Los detalles de la electrónica de

procesamiento digital de pulsos se muestran en la Fig. 4.27.

El modelo construido en *PENELOPE 2008* se realizó lo más similar posible al experimento. Los detalles de los modelos de las celdas que contienen a los centelladores se mencionan en la sec. 3.6.3. Las fuentes de calibración fueron simuladas como fuentes puntuales, a una distancia de 15 cm del detector, que emiten fotones gamma con energías y probabilidades según se presentan en la Tabla 3.9. Los fotones fueron simulados únicamente dentro del ángulo sólido subtendido por el detector sobre la posición de la fuente. 10^7 fotones fueron emitidos en cada simulación. En la Tabla 4.4 se presentan los resultados experimentales y simulados con *PENELOPE 2008* de la eficiencia intrínseca (ϵ_{int}) de conteo, para fotones gamma, de los centelladores EJ-309 y EJ-301, utilizando un umbral en energía de 0,2 MeV. Las incertidumbres estadísticas tanto de los resultados experimentales como de las simulaciones por Monte Carlo son menores al 1%.

Tabla 4.4. Eficiencia intrínseca (ϵ_{int}) de conteo para fotones gamma emitidos por ^{137}Cs , ^{22}Na y ^{60}Co de los centelladores EJ-309 y EJ-301 en función de la posición relativa de la fuente radiactiva (frontal o lateral a la celda que contiene el centellador). Se utilizó un umbral en energía de 0,2 MeV

		EJ-309		EJ-301	
Fuente	Geometría	ϵ_{int} Experimental	ϵ_{int} MC	ϵ_{int} Experimental	ϵ_{int} MC
^{137}Cs	Frontal	16,5	16,2	15,0	14,9
	Lateral	16,1	15,4	14,3	14,1
^{22}Na	Frontal	15,1	15,0	14,0	13,7
	Lateral	14,9	14,3	13,4	13,1
^{60}Co	Frontal	17,0	17,2	15,7	15,8
	Lateral	16,8	16,4	15,4	15,1

De los resultados presentados en la Tabla 4.4 se obtienen dos conclusiones importantes. La primera tiene que ver con que experimentalmente se observa que la eficiencia de conteo total para fotones gamma de estos detectores (para cada fuente), con este tamaño y geometría de celda, no cambia sustancialmente ($< 3\%$) en función de la posición a la que se encuentre la fuente, siendo sistemáticamente un poco mayor en el caso en el que la fuente gamma se encuentra en la posición frontal. Este resultado es observado de manera similar con los valores calculados con las simulaciones por Monte Carlo. El hecho de que no cambie de manera importante la eficiencia gamma (con respecto a la posición de la fuente) representa una ventaja en el uso de este tipo de detector en los sistemas de detección de materiales radiactivos en aduanas, puer-

tos, aeropuertos, entre otros. La segunda conclusión importante tiene que ver con la validación del modelo construido con el código *PENELOPE 2008*. En la Tabla 4.4 se puede observar que los resultados experimentales son reproducidos bastante bien (con discrepancias menores al 2%) por el modelo basado en simulaciones por Monte Carlo (utilizando un umbral en energía de $0,2 \text{ MeV}$).

Una vez validado el modelo se realizaron simulaciones para determinar las curvas de eficiencia intrínseca para fotones gamma del detector EJ-309. Para ello se simularon fuentes puntuales de fotones gamma monoenergéticos, con energías entre $0,1 - 1,5 \text{ MeV}$ en pasos de 50 keV , ubicadas a 15 cm de la cara frontal del detector. Cada simulación consistió en 10^7 fotones gamma emitidos dentro del ángulo sólido subtendido por el detector sobre la posición de la fuente. En cada simulación se guardó el histograma de la energía depositada en el volumen sensible del detector. Este histograma se integró (por encima de cierto umbral) para obtener el valor de eficiencia intrínseca de conteo correspondiente a fotones gamma incidentes con una determinada energía.

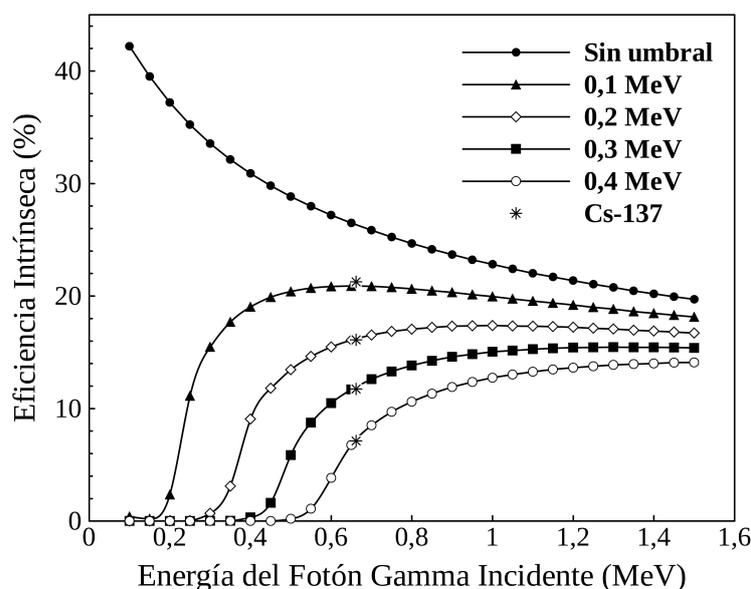


Figura 4.28. Curvas de eficiencia intrínseca para fotones gamma del detector EJ-309 para umbrales en energía iguales a 0 ; $0,1$; $0,2$; $0,3$ y $0,4 \text{ MeV}$. Los puntos experimentales (asteriscos) corresponden a la fuente de ^{137}Cs ($E_\gamma = 0,662 \text{ MeV}$)

En la Fig. 4.28 se presentan las curvas de eficiencia gamma para umbrales en energía iguales a 0 ; $0,1$; $0,2$; $0,3$ y $0,4 \text{ MeV}$. Sobre las curvas mostradas en la Fig. 4.28 se presentan los valores experimentales obtenidos con una fuente de ^{137}Cs ($E_\gamma = 0,662 \text{ MeV}$). Se encontró una buena correspondencia entre los valores experimentales y las curvas calculadas con *PENELOPE 2008* para umbrales en energía mayores que $0,1 \text{ MeV}$.

Ya que para la determinación de la eficiencia para neutrones se construyeron modelos del detector EJ-309 con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*, se aprovechó la oportunidad para comparar entre sí el desempeño de los tres códigos utilizados en este trabajo en el transporte de radiación gamma a través de la materia. Se presenta en la Fig. 4.29 una comparación entre las curvas de eficiencia gamma calculadas con *PENELOPE 2008*, *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* para un umbral en energía de $0,1 \text{ MeV}$. Se encontró que los resultados obtenidos con *GEANT4 9.6* sobrestiman en aproximadamente 20% los valores de eficiencia gamma del detector EJ-309 en el rango de energías entre $0,5$ y 1 MeV . Este rango de energías es particularmente relevante en la detección de fuentes de fisión. En este mismo rango de energías *PENELOPE 2008* y *MCNPX 2.7.0* muestran resultados muy similares entre sí, los cuales a su vez están en correspondencia con los resultados experimentales.

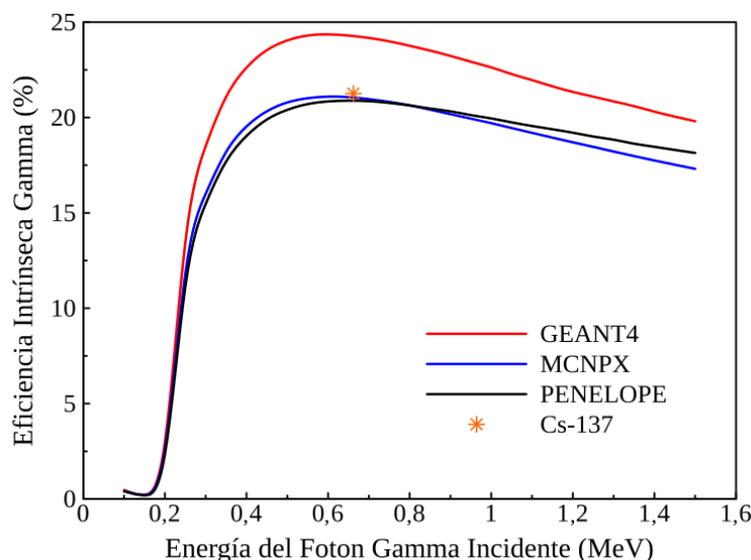


Figura 4.29. Curvas de eficiencia gamma calculadas con *PENELOPE 2008*, *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* para un umbral en energía de $0,1 \text{ MeV}$. El punto experimental corresponde al de la fuente de ^{137}Cs ($E_{\gamma} = 0,662 \text{ MeV}$)

Con la finalidad de profundizar un poco más en las discrepancias de los resultados obtenidos por los distintos códigos, se presenta en la Fig. 4.30 la comparación entre el espectro diferencial en energía de ^{137}Cs medido con el detector EJ-309 y los correspondientes simulados con *PENELOPE 2008*, *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*. Es importante hacer notar que la escala del eje “y” de la Fig. 4.30 es una escala absoluta, son conteos por segundo dividido entre el ancho del bin correspondiente en MeV . Para hacer posible esta comparación fue necesario hacer una corrección en los espectros simulados debido a la resolución en energía del detector. Esto se hizo realizando un suavizado gaussiano, similar al que se explicó en la sec. 2.5, sin embargo, el parámetro

σ de las gaussianas se hizo variar en función de la energía utilizando la expresión [24]:

$$\frac{\sigma}{E} = \sqrt{\alpha^2 + \frac{\beta^2}{E} + \left(\frac{\gamma}{E}\right)^2} \quad (4.4)$$

En la ec. 4.4: $\alpha = 10^{-5}$, $\beta = 3,3 \times 10^{-2} \text{ MeV}^{-1/2}$ y $\gamma = 10^{-5} \text{ MeV}$ se determinaron por el método de los mínimos cuadrados ajustando el espectro simulado con *PENELOPE 2008* al espectro experimental. Los valores de los parámetros no cambian considerablemente si se hubiese usado el espectro simulado con *GEANT4 9.6* o *MCNPX 2.7.0*. De hecho, en la Fig. 4.30 se puede observar que la forma de los tres espectros simulados es muy similar.

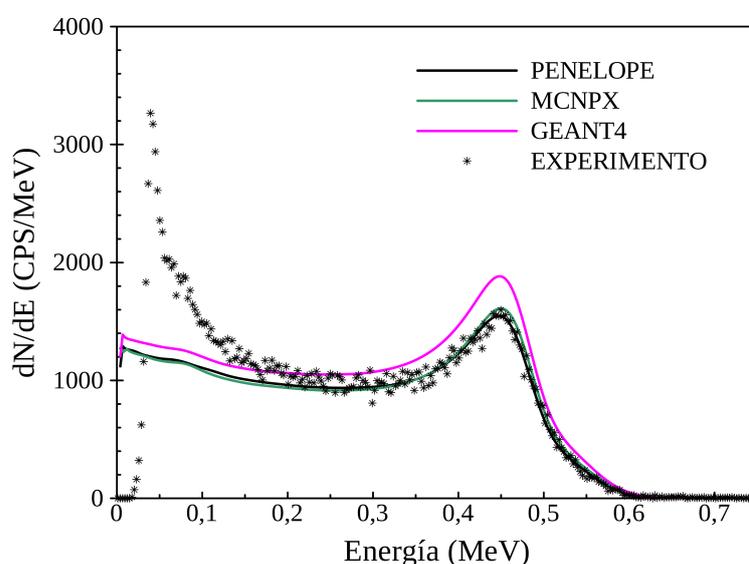


Figura 4.30. Comparación entre el espectro diferencial en energía de ^{137}Cs medido con el detector EJ-309 y los correspondientes simulados con *PENELOPE 2008*, *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0*

De la Fig. 4.30 se obtiene que existe una buena correspondencia entre la forma del espectro experimental y los espectros simulados por encima de $0,2 \text{ MeV}$. Las diferencias a energías bajas son debidas fundamentalmente a la presencia del pico de absorción máxima de las líneas K_{α} ($\sim 32 \text{ keV}$) y K_{β} ($\sim 36 \text{ keV}$) del ^{137}Ba y a los conteos provenientes del ruido electrónico. Ninguno de estos factores fueron tomados en cuenta en las simulaciones. Sin embargo, es claro que el espectro simulado con *GEANT4 9.6* sobrestima sistemáticamente el número de eventos de cada canal en aproximadamente 20% , cosa que no ocurre con los espectros simulados con *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008* los cuales están en absoluta correspondencia con el espectro experimental (por encima de $0,2 \text{ MeV}$). Debido a que la forma del espectro en emisión de luz para una fuente de ^{137}Cs es muy similar al espectro experimental (y a los simulados con los

otros dos códigos), se puede concluir que los modelos físicos registrados en la categoría *standard* del paquete que controla las interacciones electromagnéticas en *GEANT4 9.6* funcionan correctamente. El problema parece estar relacionado más bien con que *GEANT4* sobrestima la probabilidad de interacción de los fotones que inciden sobre el volumen sensible (*interaction forcing*). Por lo tanto, de acuerdo a los resultados obtenidos en este trabajo, se recomienda utilizar *PENELOPE 2008* o *MCNPX 2.7.0* para obtener resultados cuantitativos confiables en problemas en donde esté involucrado el transporte de fotones gamma de baja energía.

4.2.4. Espectrómetro n/γ Portátil

A partir de los resultados obtenidos en las secciones 4.1 y 4.2 se ensambló un prototipo de un espectrómetro de neutrones y fotones gamma portátil. El sistema está compuesto principalmente por un detector EJ-309/H8500C, una única unidad de electrónica nuclear que incluye una fuente de alto voltaje para el PMT y un *digitizer* (12 bit, 250 MHz) para realizar el procesamiento digital de los pulsos nucleares, es decir, para implementar la técnica de discriminación por forma de pulsos. El sistema lo completan unas baterías para la alimentación de la electrónica nuclear y una computadora portátil. La masa total del sistema (incluida la computadora portátil) es aproximadamente $\sim 8,4$ kg y es capaz de operar continuamente durante aproximadamente 2,5 h. En la Fig. 4.31 se presenta una vista real del prototipo.



Figura 4.31. Prototipo de espectrómetro n/γ portátil

Actualmente el prototipo se encuentra bajo pruebas de laboratorio para asegurarse de que cumpla con la normativa relacionada con este tipo de instrumento. Hasta ahora se ha determinado que la eficiencia de detección para gammas y neutrones cumple con

la normativa correspondiente de la IEC [87]. Además, como parte de una tesis de doctorado en física que se está llevando a cabo en la Universidad de los Estudios de Padova, se está desarrollando un programa para identificar fuentes radiactivas basándose únicamente en las características de los espectros gamma adquiridos con este sistema. La capacidad de discriminación n/γ del espectrómetro ofrece la posibilidad de detectar fuentes de neutrones débiles, y además, de obtener información acerca de la energía promedio de los neutrones incidentes. Este sistema puede ser útil tanto en aplicaciones de campo como en ciencias puras y aplicadas. En aplicaciones de campo éste puede ser implementado en el área de la seguridad nacional como un instrumento para la detección e identificación de materiales nucleares y fuentes radiactivas. Y en lo que respecta a las ciencias puras y aplicadas, ya se le ha encontrado utilidad a este sistema dentro del ámbito de la ingeniería de la fusión nuclear como una herramienta para el diagnóstico de un plasma D-D. De hecho, actualmente el sistema ensamblado en este trabajo de tesis se encuentra en operación en el “Consorzio RFX”, Padova-Italia.

Finalmente, es importante mencionar que los resultados presentados en estas dos primeras secciones de resultados (sec. 4.1 y sec. 4.2) han sido presentados en la 25th International Nuclear Physics Conference (Florencia - Italia, 2013) [88], y además, han sido parte fundamental de dos artículos publicados en revistas indexadas en el SCIE [89, 90].

4.3. Caracterización del Centellador Plástico EJ-299-33

La mayoría de los centelladores líquidos usados para la detección de neutrones rápidos y fotones gamma por medio de la técnica de discriminación por forma de pulsos poseen alta toxicidad y bajo punto de ignición. Estos aspectos desfavorables han traído como consecuencia que, hasta la actualidad, este tipo de detectores se usen mayormente en laboratorios de investigación donde las medidas de seguridad necesarias se han implementado con relativa facilidad. Por otra parte, en aplicaciones de campo, por ejemplo en el ámbito de la seguridad nacional, el uso de los centelladores líquidos ha sido muy reducido.

En la búsqueda de una nueva generación de detectores de neutrones que puedan sustituir a los detectores de ^3He en aplicaciones de seguridad nacional, ha surgido la posibilidad de usar detectores plásticos con capacidades de discriminación n/γ . Desde el punto de vista mecánico, el hecho de que estos centelladores sean de estado sólido representa una ventaja más para su uso respecto a los centelladores líquidos. En esta sección se presentan los resultados de la caracterización de un detector que está compuesto por el primer centellador plástico comercial, EJ-299-33, con capacidades de discriminación n/γ . Específicamente se presentan las mediciones de la resolución en energía, la resolución temporal y la capacidad de discriminación n/γ de este centellador plástico. Además, se presenta una comparación de estos resultados con los resultados obtenidos para los centelladores líquidos anteriormente estudiados en este trabajo (EJ-301 y EJ-309).

Para la realización de estas mediciones se utilizó un prototipo del centellador plástico EJ-299-33 facilitado por la empresa *Eljen Technology, Texas, USA*. Este prototipo tiene una geometría cilíndrica, de 51 mm de diámetro por 51 mm de espesor, igual que la de las celdas que contienen todos los centelladores líquidos estudiados en este trabajo. Para ensamblar el detector, se acopló un fotomultiplicador HAMAMATSU H1949-51 al centellador EJ-299-33 utilizando una película de silicona (EJ-560). En este caso el PMT fue aperado a 1600 V.

4.3.1. Resolución en Energía

Para determinar la resolución en energía del centellador plástico EJ-299-33 se trabajó con un esquema experimental similar al mostrado en la Fig. 4.32. Se hizo una medición, durante 10 minutos, con la fuente de calibración de ^{22}Na adquiriendo los eventos registrados por ambos detectores (EJ-299-33 y EJ-301) en dos canales independientes del *digitizer* (*Ch0* y *Ch2* respectivamente). El detector EJ-301 se utilizó como detector de comparación para evaluar el desempeño del centellador plástico EJ-299-33.

Los pulsos de salida de los detectores fueron procesados digitalmente por una cadena electrónica CAEN tipo VME, compuesta principalmente por el *digitizer* V1720 (12 bit, 250 MHz), ver Fig. 4.32.

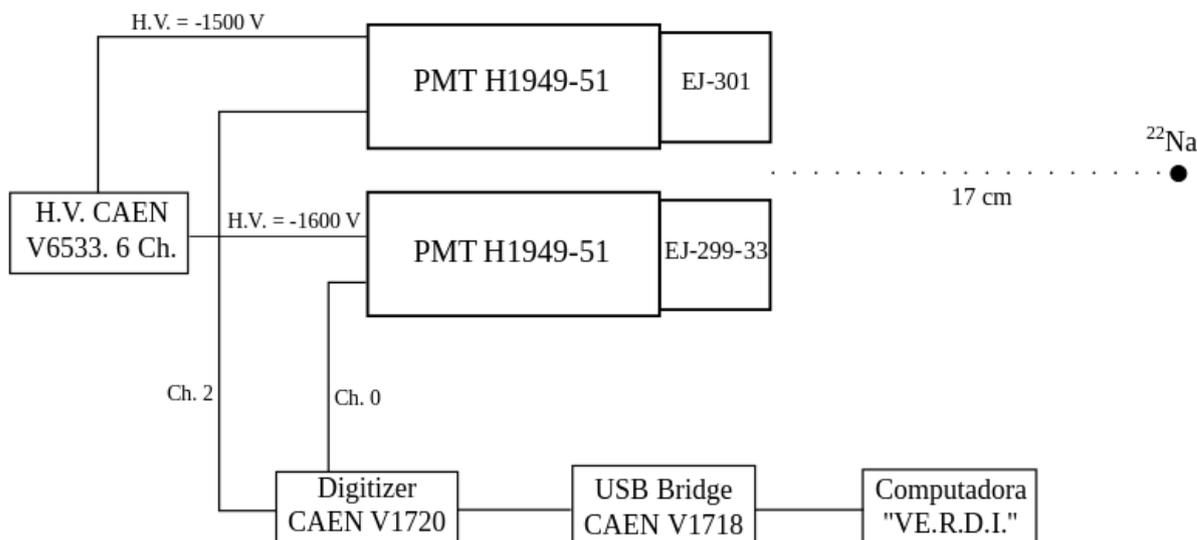


Figura 4.32. Esquema experimental usado para evaluar la resolución en energía y la capacidad de discriminación n/γ del centellador EJ-299-33

En la Fig 4.33 se presentan los espectros en energía de la fuente de ^{22}Na adquiridos con los detectores EJ-301 y EJ-299-33. En esta figura se observan claramente los dos bordes Compton asociados a los fotones gammas de 0,511 y 1,275 MeV emitidos por la fuente. Ya que el tiempo de medida con ambos detectores fue el mismo, se observa que la eficiencia gamma intrínseca del centellador EJ-299-33 es mayor que la del EJ-301. Esto era de esperarse ya que la composición química de ambos materiales es similar pero, la densidad del centellador EJ-229-33 ($1,08 \text{ g/cm}^3$) es 23% mayor que la del EJ-301 ($0,874 \text{ g/cm}^3$).

La resolución en energía del detector EJ-299-33 asociada a cada borde Compton (σ/L) del espectro en energía de ^{22}Na se determinó utilizando el procedimiento explicado en la sec. 2.5. Para el borde Compton asociado al fotón gamma de 0,511 MeV se obtuvo un $\sigma_1/L_1 = (10,0 \pm 0,8) \%$, mientras que para el borde Compton asociado al fotón gamma de 1,275 MeV se obtuvo un $\sigma_2/L_2 = (6,4 \pm 0,5) \%$. Estos valores demuestran que la resolución en energía exhibida por el centellador plástico EJ-299-33 es ligeramente menor que la de los centelladores líquidos EJ-301 y EJ-309 (ver Tabla 4.5). Sin embargo, ésta es prácticamente igual (dentro del rango de incertidumbre) que la del otro centellador plástico utilizado en este trabajo (EJ-228). Debido a que la eficiencia de centelleo del centellador EJ-228 es mayor que la del EJ-299-33 era de esperarse que

el primero exhibiera una mejor resolución en energía que el segundo, sin embargo, esto no fue lo que se observó. La explicación tiene que ver con que el centellador EJ-228 se acopló a un PMT XP2020, el cual posee una corriente de fuga ($10 - 100 \text{ nA}$) mayor que la del PMT H1949-51 ($50 - 400 \text{ nA}$). Es importante mencionar que las eficiencias cuánticas de ambos fotomultiplicadores son similares (en el rango de interés), ver Fig. 3.6.

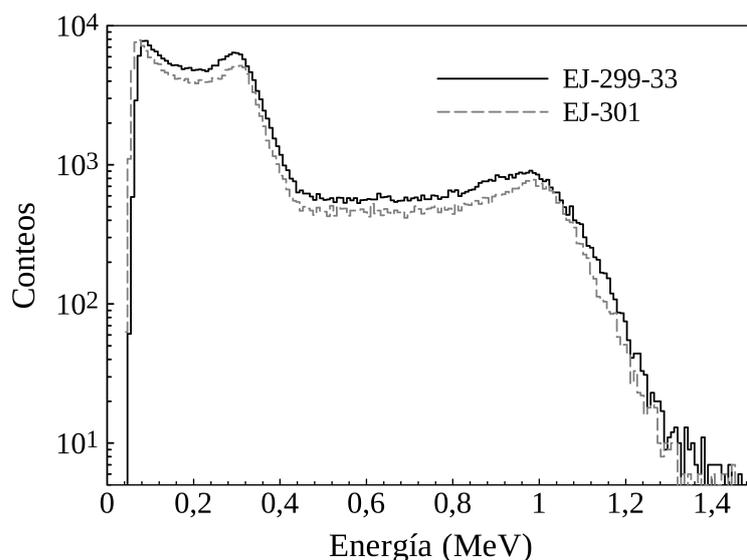


Figura 4.33. Espectros en energía adquiridos con los detectores EJ-299-33 y EJ-301 de una fuente de ^{22}Na

4.3.2. Discriminación n/γ

Utilizando el mismo esquema experimental referido en la sección anterior (Fig. 4.32), se realizó una medición durante 30 minutos con la fuente de calibración de ^{252}Cf , con la finalidad de comparar la capacidad de discriminación n/γ del centellador plástico EJ-299-33 con la del centellador líquido EJ-301. Se escogió el centellador EJ-301 para comparar ya que éste es el detector comercial estándar usado en este tipo de aplicaciones.

La discriminación por forma de pulsos en el detector EJ-299-33 se implementó a través del procesamiento digital de los pulsos en el *digitizer* V1720. La optimización de los parámetros de adquisición del *digitizer* (ver Fig. 3.11) fue realizada empíricamente maximizando el valor de la figura de mérito calculada para un umbral en emisión total del luz de $0,3 \text{ MeVee}$ (ver sec. 2.3). Se encontró que los valores óptimos para las ventanas de integración corta y larga son 68 y 280 ns respectivamente. Cabe destacar que estos valores son iguales a los valores usados con los detectores EJ-309 y EJ-301.

En la Fig. 4.34 se presentan los gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondientes a las mediciones realizadas con el detector EJ-299-33 (Fig. 4.34a) y con el detector EJ-301 (Fig. 4.34b). Ciertamente, se observa que con el detector EJ-299-33 se puede discriminar entre eventos de neutrones rápidos y fotones gamma, sin embargo, es evidente que su capacidad de discriminación es menor que la del detector EJ-301.

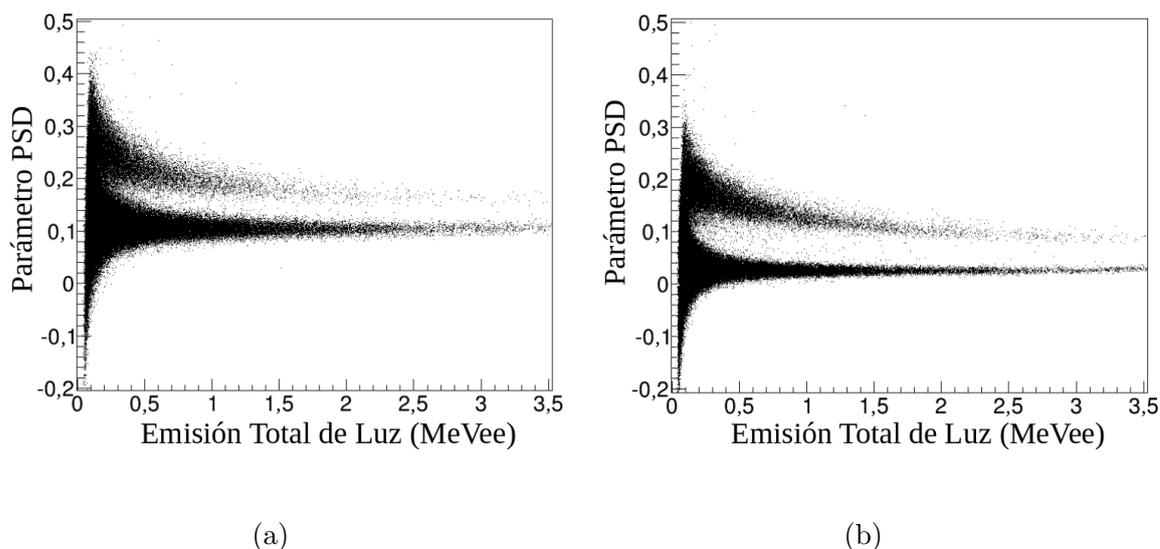


Figura 4.34. Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una fuente ^{252}Cf con adquisiciones hechas con los detectores EJ-299-33 (a) y EJ-301 (b)

Para visualizar un poco más en detalle las diferencias entre los detectores EJ-299-33 y EJ-301, se presentan como ejemplo en la Fig. 4.35 dos pulsos promedio, de cada uno de los detectores mencionados anteriormente, correspondientes a eventos de neutrones rápidos y fotones gamma. Estos pulsos han sido generados promediando un conjunto de eventos (neutrones y gammas por separado) que se encuentran en un mismo rango de emisión total de luz (energía en el caso de los fotones gamma) en ambos detectores. De la Fig. 4.35 es claro que la fracción de luz retardada (en los eventos que corresponden a neutrones rápidos) es menor en el caso del detector EJ-299-33, esto trae como consecuencia que la capacidad de discriminación n/γ del detector EJ-299-33 sea menor que la del EJ-301.

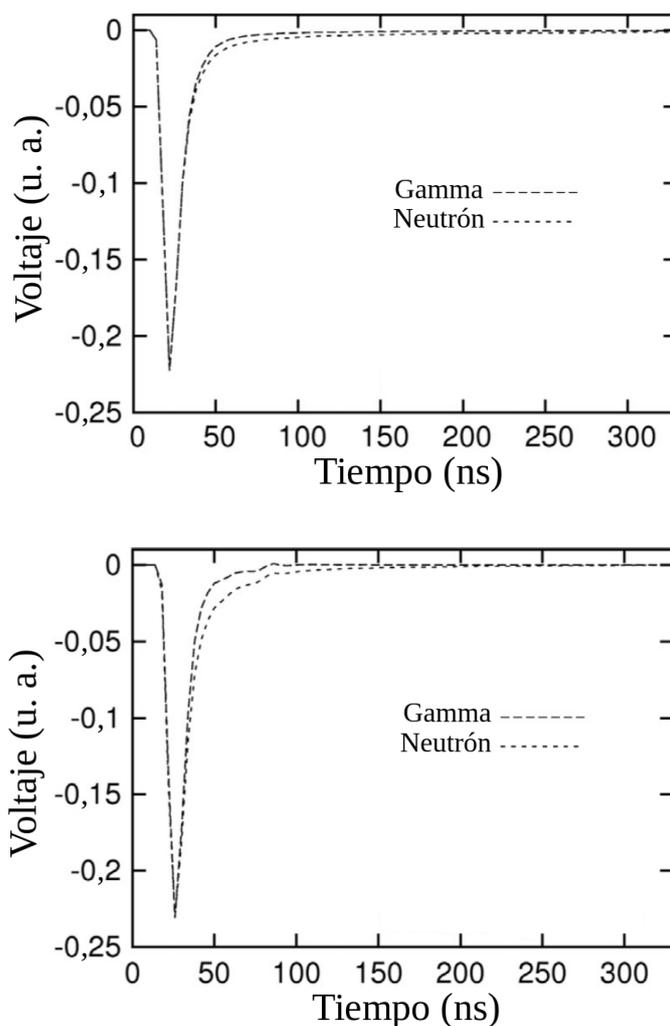


Figura 4.35. Pulsos promedio correspondientes a eventos de neutrones rápidos y fotones gamma en los detectores EJ-299-33 (arriba) y EJ-301 (abajo)

Para evaluar de una manera más cuantitativa la capacidad de discriminación n/γ del detector EJ-299-33 se tomaron los datos adquiridos con la fuente de ^{252}Cf y se construyeron las distribuciones del parámetro PSD con diferentes valores de umbral en emisión total de luz (desde 0,1 hasta 1 MeVee). Luego, se ajustaron funciones gaussianas a las distribuciones correspondientes a neutrones rápidos y fotones gamma, y finalmente, se usaron las ec. 2.11 y 2.12 para determinar el valor de la figura de mérito en cada caso. En la Fig. 4.36 se muestra como ejemplo la distribución del parámetro PSD correspondiente a un umbral en emisión total de luz de 0,3 MeVee . También se muestran los ajustes gaussianos.

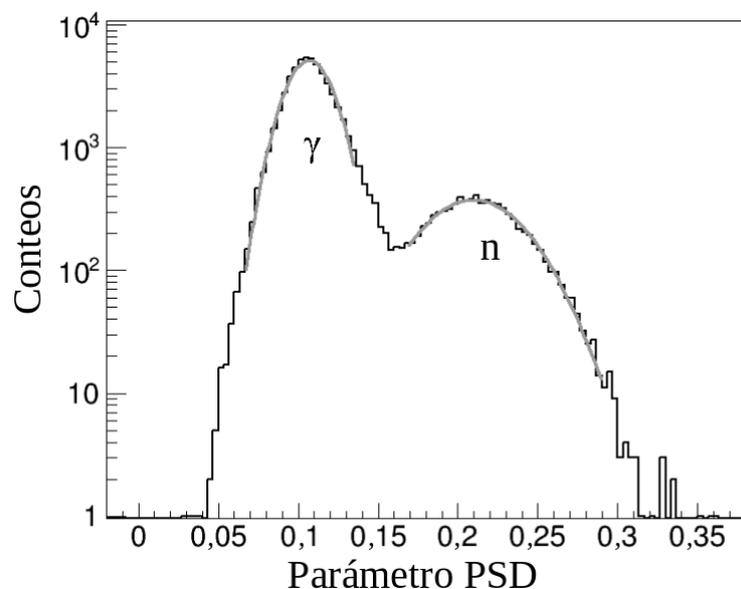


Figura 4.36. Distribución del parámetro PSD de los eventos adquiridos con el detector EJ-299-33 con una fuente de ^{252}Cf . Esta figura corresponde a un umbral en emisión total de luz de $0,3 \text{ MeVee}$

En la Fig. 4.41 se presentan los resultados de la figura de mérito en función del umbral en emisión total de luz del detector EJ-299-33. En esta figura se observa claramente que los valores de la figura de mérito que exhibe el detector EJ-299-33 son mucho menores que los correspondientes a los centelladores líquidos EJ-301 y EJ-309. De hecho, no es sino para umbrales en emisión de luz entre $0,2$ y $0,4 \text{ MeVee}$ que la figura de mérito del detector EJ-299-33 está entre $0,8$ y $1,0$ respectivamente (el cual es un valor aceptable). Es importante mencionar que un umbral en emisión total de luz de $0,2$ a $0,4 \text{ MeVee}$ implica una reducción en la estadística de conteo de 50 a 75% cuando se realiza una medición con una fuente de ^{252}Cf .

4.3.3. Resolución Temporal

Para realizar las mediciones de resolución temporal del centellador plástico EJ-299-33 se utilizó un esquema experimental similar al de la Fig. 4.11. En este caso se utilizó un sistema compuesto por el detector de referencia (EJ-228/XP2020) y el detector EJ-299-33/H1949-51, para medir los eventos gamma emitidos en coincidencia por una fuente de ^{22}Na (dos fotones de $0,511 \text{ MeV}$ producto de la aniquilación del positrón). El detector de referencia utilizado en esta medición fue el mismo que se escogió en la sec. 4.1.2, es decir, aquel que se denominó “EJ-228 # 2”.

Los pulsos de salida de los detectores fueron adquiridos por el *digitizer* tipo “desktop”

DT5751 (10 bit, 1 GHz). Luego, se hizo una reconstrucción del espectro temporal de coincidencias utilizando un *Digital Constant Fraction Discriminator*, DCFD. En la Fig. 4.37 se presenta como ejemplo el espectro temporal obtenido con el sistema de detectores EJ-228/EJ-299-33 utilizando un umbral en energía en el DCFD igual a 0,15 MeV.

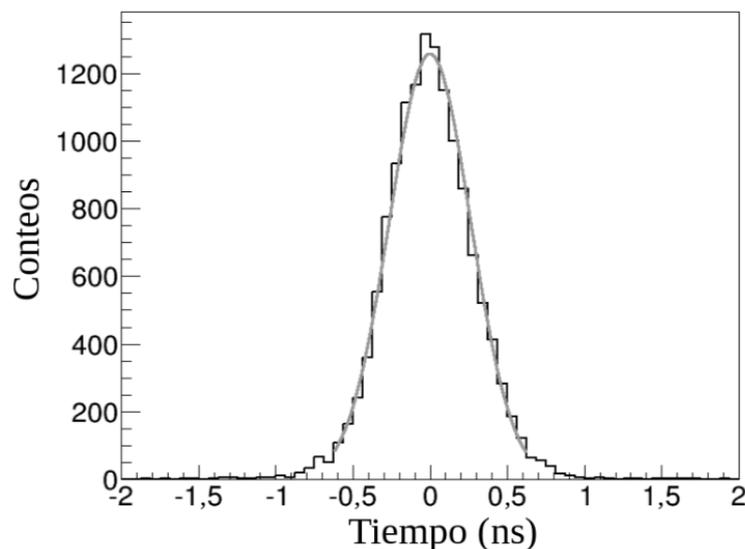


Figura 4.37. Espectro temporal obtenido con el sistema de detectores EJ-228/EJ-299-33 usando un umbral en energía igual a 0,15 MeV. Se presenta además su ajuste gaussiano

El valor de resolución temporal del detector EJ-299-33/H1949-51 fue determinado a partir de la ec. 4.3. Es preciso resaltar que la resolución temporal del sistema corresponde al ancho a media altura del pico de coincidencias que se observa en el espectro temporal (Fig. 4.37). Además, la contribución del detector “EJ-228 # 2” a la resolución temporal del sistema fue medida ya anteriormente, ver Tabla 4.1. La resolución temporal del detector EJ-299-33/H1949-51 resultó ser 0,44 ns, para un umbral en energía en el DCFD igual a 0,15 MeV. Éste es un valor muy similar al que se obtuvo para los detectores EJ-301/H1949-51 y EJ-309/H1949-51. Esto puede ser explicado a partir de la Fig. 4.38, en la cual se muestra una comparación entre los pulsos promedios de salida de los detectores EJ-228, EJ-299-33, EJ-309 y EJ-301. Para generar estos pulsos se tomaron los espectros en energía de ^{22}Na adquiridos con cada detector y se calcularon los pulsos promedios a partir de los eventos registrados en una ventana en energía de $(0,30 \pm 0,01)$ MeV. Esta energía corresponde a la energía del borde Compton de los fotones gamma de 0,511 MeV emitidos por la aniquilación del positrón producido en el decaimiento del ^{22}Na . Los pulsos de la Fig. 4.38 fueron normalizados con la finalidad de hacer coincidir sus mínimos, de esta manera se pueden observar claramente las

diferencias entre sus formas. Es claro que los tiempos de subida y de decaimiento del pulso de salida del detector EJ-228 son menores que los de los demás detectores, es por esto que la resolución temporal que exhibe este detector es mejor que la de los otros (ver Tabla 4.5). También, se puede observar que el tiempo de subida del centellador plástico EJ-299-33 es similar al de los centelladores líquidos (EJ-309 y EJ-301), es por ello que la resolución temporal de estos tres detectores es muy parecida. Finalmente, se puede apreciar que el tiempo de decaimiento de la componente rápida del centellador EJ-299-33 es muy similar a la de los centelladores líquidos (EJ-309 y EJ-301), por lo que se puede decir que éste es ~ 4 ns. Además, se observa que la fracción de luz retardada del centellador EJ-299-33 es más importante que en los otros centelladores.

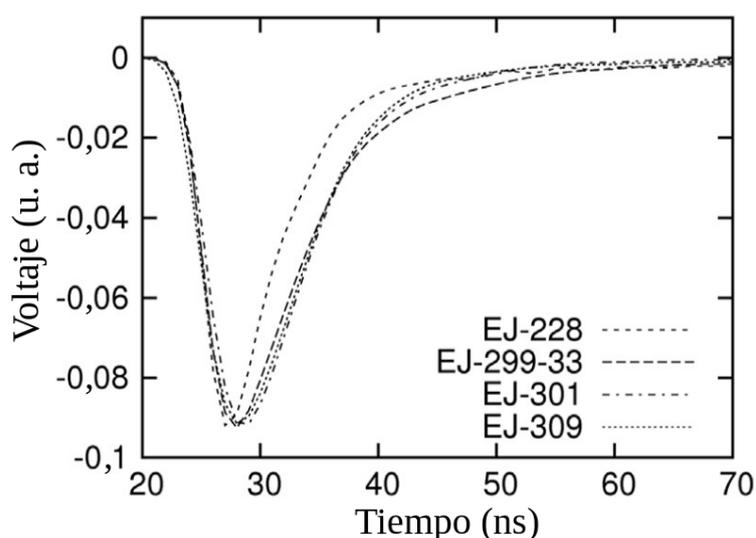


Figura 4.38. Pulsos promedios de salida de los detectores EJ-228, EJ-299-33, EJ-309 y EJ-301. Corresponden a eventos gamma registrados en una ventana en energía de $(0, 30 \pm 0, 01)$ MeV

En la Tabla 4.5 se presenta un resumen de los valores de resolución en energía y resolución temporal de los centelladores estudiados hasta el momento. Dentro del marco de este trabajo, la comparación que más interesa es entre los centelladores líquidos (EJ-301 y EJ-309) y el centellador plástico EJ-299-33 debido a que son los que poseen capacidades de discriminación n/γ . Es de hacer notar que los valores de resolución temporal reportados en la Tabla 4.5 están asociados a un umbral en energía en el DCFD igual a $0, 15$ MeV. Fundamentalmente se observó que la resolución en energía y la resolución temporal del detector EJ-299-33 son muy similares a las de los detectores EJ-309 y EJ-301. Mientras que la capacidad de discriminación n/γ del detector plástico EJ-299-33 es mucho menor que la de los detectores líquidos bajo estudio, esto se evidencia mucho más en la zona de bajas energías. Sin embargo, por su características generales,

el detector EJ-299-33 puede ser usado en aplicaciones donde se requieran detectores con áreas y/o volúmenes grandes. Por ejemplo, éste puede ser usado en mediciones de tiempos de vuelo de neutrones, donde su limitación de discriminación n/γ a bajas energías no representa ningún inconveniente. También, el EJ-299-33 puede ser usado como detector de fotones gamma y neutrones rápidos en aplicaciones de seguridad nacional, por ejemplo, como sustituto de los detectores plásticos de PVT, *polyvinyl toluene*, los cuales actualmente constituyen gran parte de los sistemas de monitoreo de radiación en aduanas. Sin embargo, estos detectores son usados principalmente para la detección de fotones gamma ya que éstos no poseen capacidad de discriminación n/γ . Con el uso de un detector EJ-299-33 se tendría la capacidad de detectar no sólo fuentes gamma sino también de neutrones.

Tabla 4.5. Resumen de los valores de resolución en energía y resolución temporal de los centelladores estudiados. Los valores de resolución temporal están asociados a un umbral en energía en el DCFD igual a 0,15 MeV

Centellador	PMT	Eficiencia de centelleo (fotones/MeV)	σ/L (%)	Resolución Temporal (ns) \pm 0,01
EJ-299-33	H1949-51	8600	$10,0 \pm 0,8$	0,44
EJ-301		12000	$8,0 \pm 0,5$	0,43
EJ-309		11500	$8,0 \pm 0,5$	0,46
EJ-228	XP2020	10200	$11,0 \pm 0,8$	0,41

Es importante mencionar que los resultados presentados en esta sección han constituido parte fundamental de un artículo publicado en una revista indexada en el SCIE [91].

4.4. Caracterización del Centellador EJ-339A

Dentro del marco del desarrollo de los sistemas de detección de materiales radiactivos, específicamente de aquellos destinados al ámbito de la seguridad nacional, existe un interés especial en los detectores de neutrones de amplio espectro en energía, es decir, aquellos que tienen la capacidad de detectar desde neutrones de baja energía (térmicos) hasta neutrones rápidos (por ejemplo neutrones de fisión). Hasta ahora los detectores que mejor cumplen con esta característica son los centelladores líquidos cargados con ^{10}B , los cuales, además de poseer propiedades de discriminación n/γ similares a otros centelladores líquidos (tales como el EJ-301, EJ-309, entre otros), responden a la presencia de neutrones de baja energía por medio de la emisión de luz que producen los productos de la reacción de captura neutrónica del ^{10}B (ver 3.1).

La detección simultánea de neutrones de baja energía y neutrones rápidos puede ser tomada como un indicador de la presencia de una fuente de neutrones blindada. Además, a partir de la relación entre las tasas de conteos de ambos grupos de neutrones se puede obtener información acerca de la capacidad de moderación del material usado como blindaje.

En esta sección se presentan los resultados obtenidos del estudio realizado al detector EJ-339A, el cual es uno de los centelladores líquidos cargados con ^{10}B disponibles actualmente en el mercado. Específicamente este detector posee 4,6 % en peso de ^{10}B , ver sec. 3.1. El propósito de este estudio ha sido verificar la capacidad de este centellador para detectar neutrones distribuidos en un espectro energético amplio utilizando la técnica de discriminación por forma de pulsos. También, se presenta una comparación entre los resultados obtenidos en este trabajo y algunos estudios publicados recientemente acerca de la respuesta para neutrones de baja energía que exhiben estos detectores [3, 51].

Para finalizar, se construyó un modelo del esquema experimental con *GEANT4* 9.6. De las mediciones experimentales y las simulaciones por Monte Carlo se obtuvo una relación muy interesante entre el número de capturas neutrónicas registradas en el detector EJ-339A, el número de neutrones rápidos (con $E > 0,1 \text{ MeVee}$) registrados en un detector EJ-301 y el espesor del blindaje de polietileno de una fuente de ^{252}Cf . Esta relación puede ser usada para extraer información acerca del espesor del blindaje de una fuente de neutrones. En este caso, el blindaje debe estar compuesto por un material hidrogenado (por ejemplo: polietileno).

4.4.1. Discriminación n/γ

Para estudiar la capacidad de discriminación entre neutrones de fisión y fotones gamma del detector EJ-339A se utilizó una celda cilíndrica, de 51 *mm* de diámetro por 51 *mm* de espesor, la cual contenía el mencionado centellador. A esta celda se acopló un fotomultiplicador HAMAMATSU H1949-51 con ayuda de una película de silicona (EJ-560). Se realizaron mediciones con las fuentes de ^{241}Am y ^{22}Na durante 5 minutos para hacer la calibración en energía del sistema y durante una hora con la fuente débil de ^{252}Cf (~ 8000 *n/s*) para determinar la capacidad de discriminación n/γ del sistema. Las fuentes se ubicaron a 20 *cm* de la cara del detector. Se utilizó la electrónica de procesamiento digital de pulsos CAEN tipo VME. Los pulsos de salida del fotomultiplicador fueron enviados directamente al *digitizer* CAEN V1720 (250 *MHz*, 12 *bit*) donde se implementó el algoritmo de discriminación por forma de pulsos descrito en la sec. 3.4.3. Se encontró que los valores óptimos para las ventanas de integración de los pulsos fueron de 56 y 280 *ns* con un *pre-gate* de 40 *ns* (ver Fig. 3.11). Los datos fueron enviados a la computadora a través del puerto USB CAEN V1718, donde fueron guardados en archivos con formato *root*.

En las Fig. 4.39a y 4.39b se presentan los gráficos del parámetro PSD (determinado en tiempo real según la ec. 3.3 por el algoritmo discriminación por forma de pulsos) en función de la emisión total de luz para las fuentes de ^{241}Am y ^{252}Cf respectivamente. La curva gris que se muestra en ambos gráficos define la frontera entre la región que corresponde a eventos gamma (ubicada por debajo de la curva) y la que corresponde a eventos de neutrones de fisión (por encima de la curva). Esta curva se construyó sobre el gráfico obtenido para la fuente de ^{241}Am y se verificó sobre el gráfico que corresponde a la fuente de ^{22}Na debido a que en ambos casos sólo aparecen eventos de fotones gamma. Específicamente en la Fig. 4.39a se observan los eventos de absorción máxima del fotón gamma de 59,5 *keV*, mientras que a energías más bajas se observan principalmente los eventos Compton de esta misma línea gamma. Los eventos que aparecen a energías más altas (> 80 *keV*) corresponden fundamentalmente a la radiación gamma de fondo.

De la Fig. 4.39b se obtiene que la discriminación entre neutrones de fisión y fotones gamma es clara aproximadamente desde 0,2 *MeVee* en adelante, sin embargo, los eventos que producen una emisión de luz menor a este valor son clasificados según sus posiciones dentro del gráfico de acuerdo a las regiones definidas por la curva de discriminación (curva gris en las Fig. 4.39a y 4.39b).

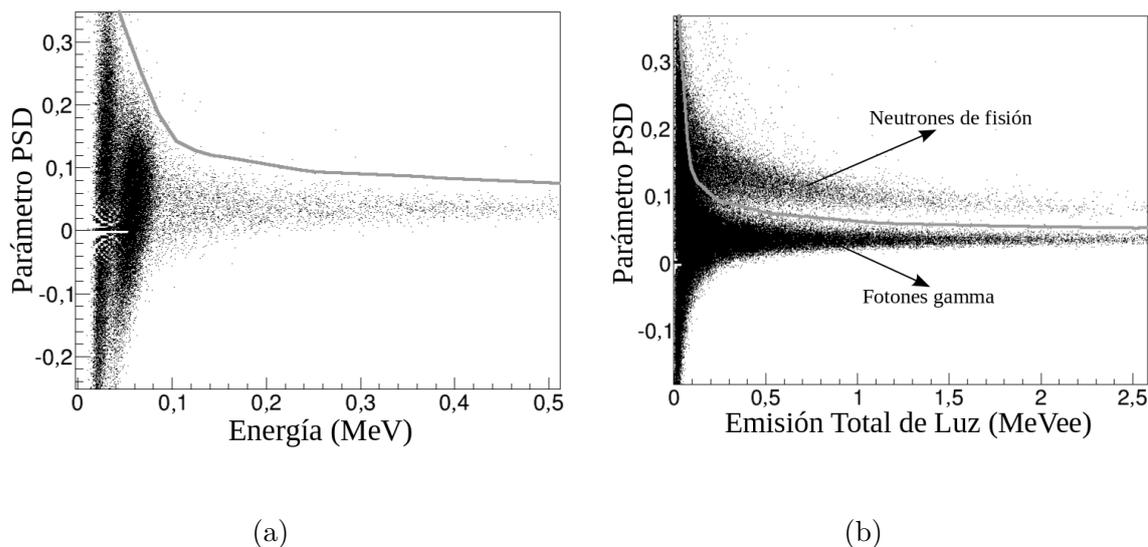


Figura 4.39. Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a mediciones hechas con el detector EJ-339A con las fuentes de ^{241}Am (a) y ^{252}Cf (b). La curva gris que se muestra en ambos gráficos define la frontera entre la región que corresponde a eventos gamma (ubicada por debajo de la curva) y la que corresponde a eventos de neutrones de fisión (por encima de la curva)

Con la finalidad de hacer una comparación cuantitativa entre la capacidad de discriminación n/γ del centellador EJ-339A y la de los centelladores estudiados previamente en este trabajo (EJ-301 y EJ-309) se calcularon los valores de la figura de mérito del detector EJ-339A utilizando umbrales en emisión de luz entre 0,1 y 1 *MeVee* con los datos adquiridos con la fuente de ^{252}Cf . Para hacer esto, se construyeron las distribuciones del parámetro PSD correspondientes a un umbral en emisión de luz determinado y se ajustaron funciones gaussianas a las distribuciones de neutrones rápidos y fotones gamma en cada caso (ver Fig. 4.40). Los valores de la figura de mérito se obtuvieron utilizando la ec. 2.11. En la Fig. 4.41 se presentan los resultados obtenidos para el detector EJ-339A, y a modo de comparación se muestran los valores que corresponden a los detectores EJ-301, EJ-309 y EJ-299-33. Es importante mencionar en este punto que la función de emisión de luz para protones depende del tipo de centellador e incluso, en algunos casos, depende también del tamaño de la celda [37]. Por lo tanto, los valores de la figura de mérito reportados para un determinado umbral en emisión de luz no corresponden a un mismo umbral en energía en los diferentes centelladores. Sin embargo, se evidencia que los valores de la figura de mérito del detector EJ-339A son menores que los correspondientes a los otros dos centelladores líquidos (EJ-301 y EJ-309). Aún así, la capacidad de discriminación n/γ del detector EJ-339A parece ser aceptable para diversas aplicaciones ya que se obtuvieron valores de figura de mérito superiores a 1,2 para umbrales en emisión de luz mayores que 0,2 *MeVee*.

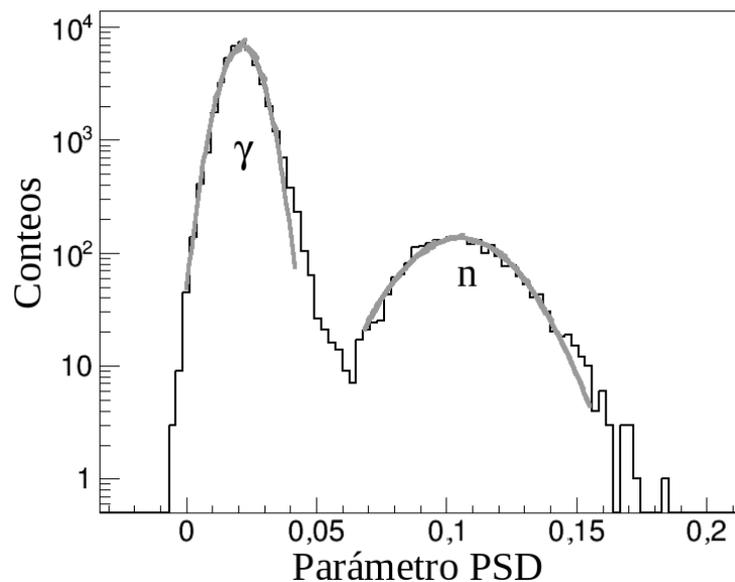


Figura 4.40. Distribución del parámetro PSD de los eventos adquiridos con el detector EJ-339A con una fuente de ^{252}Cf . El umbral en emisión total de luz es de $0,3 \text{ MeVee}$

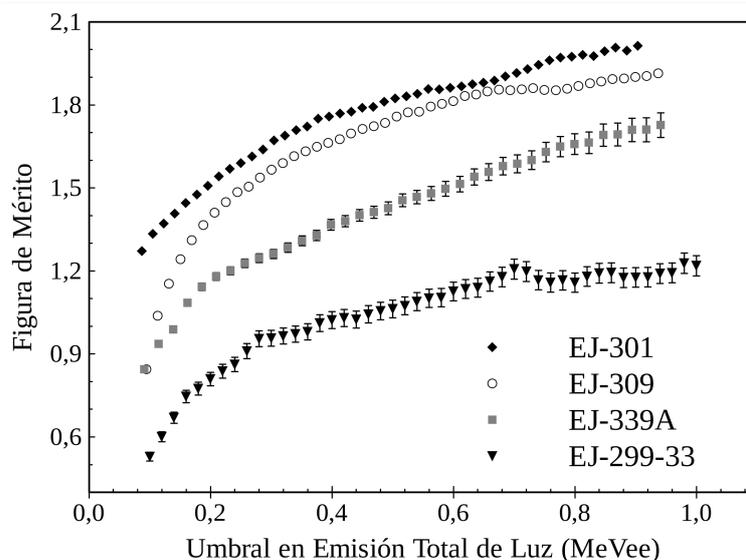


Figura 4.41. Gráfico de la figura de mérito de los detectores EJ-301, EJ-309, EJ-299-33 y EJ-339A en función del umbral en emisión total de luz. Las barras de errores que no se aprecian son comparables con el tamaño de los íconos

4.4.2. Detección de Neutrones Térmicos

Para estudiar de una manera más eficaz y eficiente la detección de neutrones de baja energía (o neutrones térmicos) con el centellador EJ-339A se colocó un número variado

de bloques de polietileno (de 20 *cm* de largo por 10 *cm* de ancho por 2 *cm* de espesor) entre la fuente de ^{252}Cf y el detector, de manera similar a como se muestra en la Fig. 4.50. Esto se hizo con la finalidad de incrementar el flujo de neutrones térmicos en la vecindad del detector.

En la sec. 3.1 se mencionó que en el 94% de los casos los productos de la reacción de captura neutrónica del ^{10}B son: una partícula α (1,47 *MeV*), un ion de ^7Li (0,87 *MeV*) y un fotón gamma de 0,478 *MeV* (producto de la desexcitación del ^7Li). Este último se observa en coincidencia con la partícula α debido a que la desexcitación del ^7Li se produce en $\sim 10^{-13}$ s. La emisión total de luz en un evento de captura neutrónica es debida casi por completo a la partícula α debido al efecto de *quenching* que sufre la contribución del ion de ^7Li [51,92] y a la alta probabilidad de escape del fotón gamma.

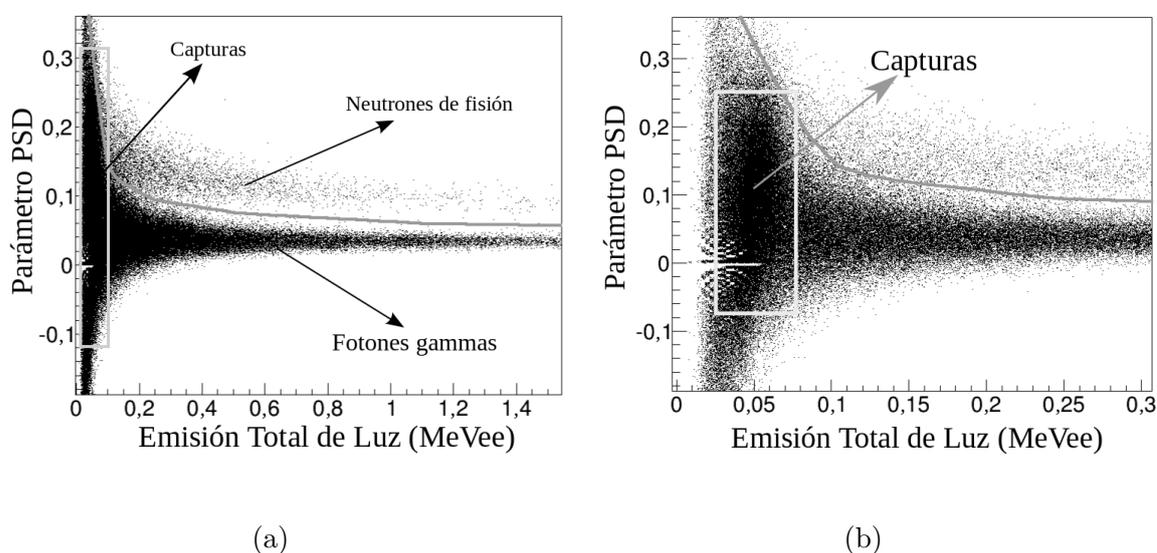


Figura 4.42. (a) Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una medición hecha con el detector EJ-339A de la fuente de ^{252}Cf blindada con 6 *cm* de polietileno. Los fotones gamma son principalmente los emitidos por la fuente de ^{252}Cf . (b) Acercamiento del gráfico (a) entre 0 y 0,3 *MeVee*

En la Fig. 4.42 se presenta el gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a la fuente de ^{252}Cf blindada con 6 *cm* de polietileno. En la Fig. 4.42a se observa claramente la discriminación entre los neutrones de fisión y los fotones gamma. Cabe destacar que estos fotones gammas son principalmente los emitidos por la fuente de ^{252}Cf , ya que los emitidos en la reacción de captura neutrónica del ^{10}B , además de ser menores en cantidad, tienen una alta probabilidad de escape. En la Fig. 4.42b se muestra un acercamiento de la región entre 0 y 0,3 *MeVee* en la cual se observan los eventos correspondientes a las capturas de neutrones de baja energía

en aproximadamente $0,05 \text{ MeVee}$. Este resultado está en absoluta correspondencia con algunos resultados reportados en la literatura [42, 51, 93–95]. Según éstos, el efecto de *quenching* para iones pesados es tan fuerte que la emisión de luz producida por la partícula α de $1,47 \text{ MeV}$ está entre 50 y 60 keVee . En otro trabajo reciente [92], en el cual se midieron las funciones de emisión de luz para electrones, protones y partículas α de diferentes centelladores líquidos, se reportó que la relación entre la emisión de luz de un electrón y una partícula α , con energías cinéticas de $1,5 \text{ MeV}$, está entre $0,04$ y $0,05$ dependiendo del tipo de centellador. Esto significa que una partícula α emitida en una reacción de captura neutrónica del ^{10}B producirá una cantidad de luz entre 60 y 75 keVee . Sin embargo, tal como fue reportado por [51], el efecto de *quenching* en este tipo de detectores depende tanto del tipo de centellador como de la concentración de ^{10}B .

El efecto que producen los eventos de captura neutrónica en el espectro en emisión de luz se muestra en la Fig. 4.43. En esta figura se presentan los espectros en emisión de luz (entre 0 y $0,1 \text{ MeVee}$) correspondientes a: ^{241}Am , ^{252}Cf sin blindaje de ningún tipo y ^{252}Cf blindado con 6 cm de polietileno. Es claro que los eventos asociados a las reacciones de captura del ^{10}B producen una emisión de luz ligeramente menor que la línea gamma del ^{241}Am ($59,54 \text{ keV}$). Este resultado es muy importante debido a que uno de los problemas que pudiese presentarse al momento de usar estos detectores en sistemas de detección e identificación de materiales radiactivos es la interferencia de la línea gamma del ^{241}Am con la emisión de luz correspondiente a los eventos de neutrones térmicos. Sin embargo, tal como se muestra en la Fig. 4.43, la forma de los espectros en emisión de luz en estos dos casos es claramente distinta. El espectro del ^{241}Am presenta una distribución bimodal debido a los fotones de $26,34 \text{ keV}$ ($2,31\%$), $33,19 \text{ keV}$ ($0,12\%$) y $59,54 \text{ keV}$ ($35,92\%$) que emite dicha fuente. El hecho de que el pico de menor energía tenga un área comparable con el de $59,54 \text{ keV}$ es un reflejo de que la eficiencia gamma de este tipo de detector crece rápidamente a medida que la energía del fotón gamma disminuye (por ejemplo, ver Fig. 4.28), además es posible que en el pico de menor energía se encuentren eventos que corresponden a la suma de un evento de absorción máxima del fotón de $26,34 \text{ keV}$ con un Compton del gamma de mayor energía. Por otra parte, el espectro correspondiente a la fuente de ^{252}Cf blindada con 6 cm de polietileno presenta una distribución con un sólo máximo en aproximadamente 50 keVee . Es de hacer notar que el espectro en emisión de luz de la fuente de ^{252}Cf (sin blindaje) muestra un comportamiento poco singular (en el rango presentado) el cual puede ser diferenciado fácilmente de los dos casos anteriores.

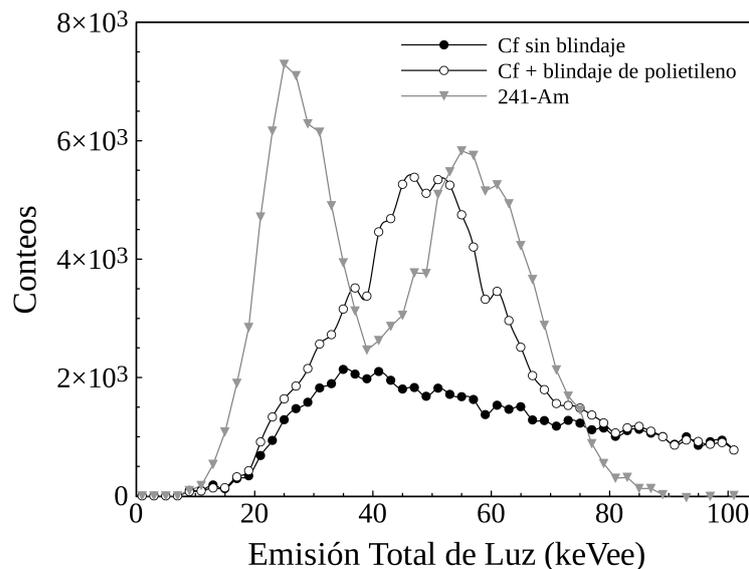


Figura 4.43. Espectros en emisión de luz (hasta $0,1 \text{ MeVee}$) adquiridos con el detector EJ-339A correspondientes a: ^{241}Am , ^{252}Cf sin blindaje de ningún tipo y ^{252}Cf blindado con 6 cm de polietileno

Según lo expuesto en la sec. 2.2, a paridad de emisión total del luz, la fracción de luz retardada que constituye la señal producida por una partícula α debería ser mayor que la correspondiente producida por un protón, es decir, los eventos de captura neutrónica del ^{10}B deberían estar ubicados en la Fig. 4.42 por encima de la región donde se encuentran los eventos de neutrones de fisión. En lugar de esto, en la Fig. 4.42b se observan que los eventos de capturas neutrónicas están distribuidos entre las regiones de neutrones de fisión y fotones gamma ($-0,1 < \text{PSD} < 0,3$). Este resultado ha sido encontrado también por otros autores, [51], que incluso estudiaron la respuesta de varios centelladores líquidos cargados con diferentes concentraciones de ^{10}B . Sin embargo, recientemente se publicó un estudio realizado a un centellador líquido BC-523A [3,96] donde se identificaron los eventos de capturas neutrónicas en una zona que está por encima de la región en la que se encuentran los eventos de neutrones rápidos en el gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz. Este tipo de centellador está cargado con $4,4\%$ de ^{10}B , sin embargo, es un equivalente comercial al EJ-339A. Los resultados reportados por Flaska et al. (2009) están en claro desacuerdo con los reportados por Swiderski et al. (2010) [51] y con los encontrados en este trabajo de tesis.

Para profundizar un poco más en lo mencionado anteriormente, en la Fig. 4.44 se presentan los resultados reportados por Flaska et al. (2009) [3]. En esta figura se identifican como eventos de captura neutrónica aquellos que se encuentran por encima de la región de neutrones rápidos. En ese trabajo, [3], se hicieron las mediciones utilizando

una celda cilíndrica de 5" de diámetro por 5" de espesor, la cual contenía centellador BC-523A, una fuente *Pu-Be* de 1 Ci y un *digitizer* CAEN V1720 (250 MHz) para el procesamiento digital de los pulsos. El montaje experimental consistió en colocar el detector a 30 cm de la fuente de *Pu-Be*. Además se interpuso un bloque de plomo de 5 cm de espesor entre la fuente y el detector para incrementar de manera relativa el número de neutrones medidos. El método utilizado para realizar la discriminación de partículas por forma de pulsos se basó en la doble integración de los pulsos, tal como se utilizó en este trabajo de tesis.

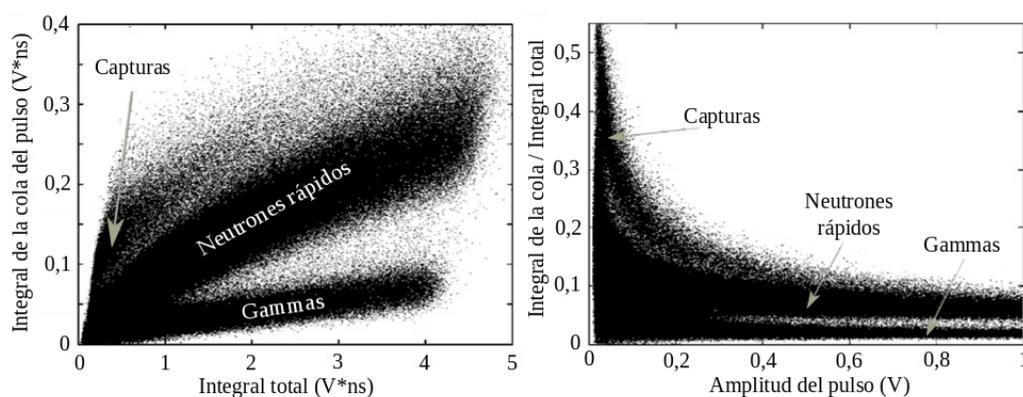


Figura 4.44. Figura tomada de Flaska et al. (2009) [3]. (a) Fracción de luz retardada (integral de la cola del pulso) en función de la emisión total de luz (integral total de cada pulso), y (b) relación entre la fracción de luz retardada y la emisión total de luz en función de la amplitud de cada pulso

Para comparar los resultados obtenidos en este trabajo con los reportados por Flaska et al. (2009), se hizo una adquisición de datos con el detector EJ-339A y la fuente de ^{252}Cf . El procesamiento digital de los pulsos se realizó con la electrónica CAEN tipo VME, específicamente se usó el *digitizer* V1720 (al igual que en [3]). La distancia entre la fuente y el detector fue de aproximadamente 10 cm y, para intentar reproducir los resultados obtenidos por Flaska et al. (2009), en este caso también se interpuso un bloque de plomo de 5 cm de espesor entre la fuente y el detector. En la Fig. 4.45a se presenta el gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz y en la Fig. 4.45c se presentan los mismos datos, pero esta vez de la forma como fueron presentados en Flaska et al. (2009), es decir, graficando la fracción de luz retardada en función de la emisión total de luz de cada evento. En estos dos gráficos es posible observar los eventos que son identificados en Flaska et al. (2009) como capturas neutrónicas, sin embargo, el algoritmo utilizado por el *digitizer* que se usó en este trabajo tiene la capacidad de identificar los eventos que corresponden al apilamiento de pulsos. Básicamente el

algoritmo hace una búsqueda de múltiples mínimos dentro de la ventana temporal de adquisición [41]. Entonces, si este tipo de filtro (rechazo de pulsos apilados) es aplicado a los datos presentados en las Fig. 4.45a y 4.45c el resultado es el que se presenta en las Fig. 4.45b y 4.45d.

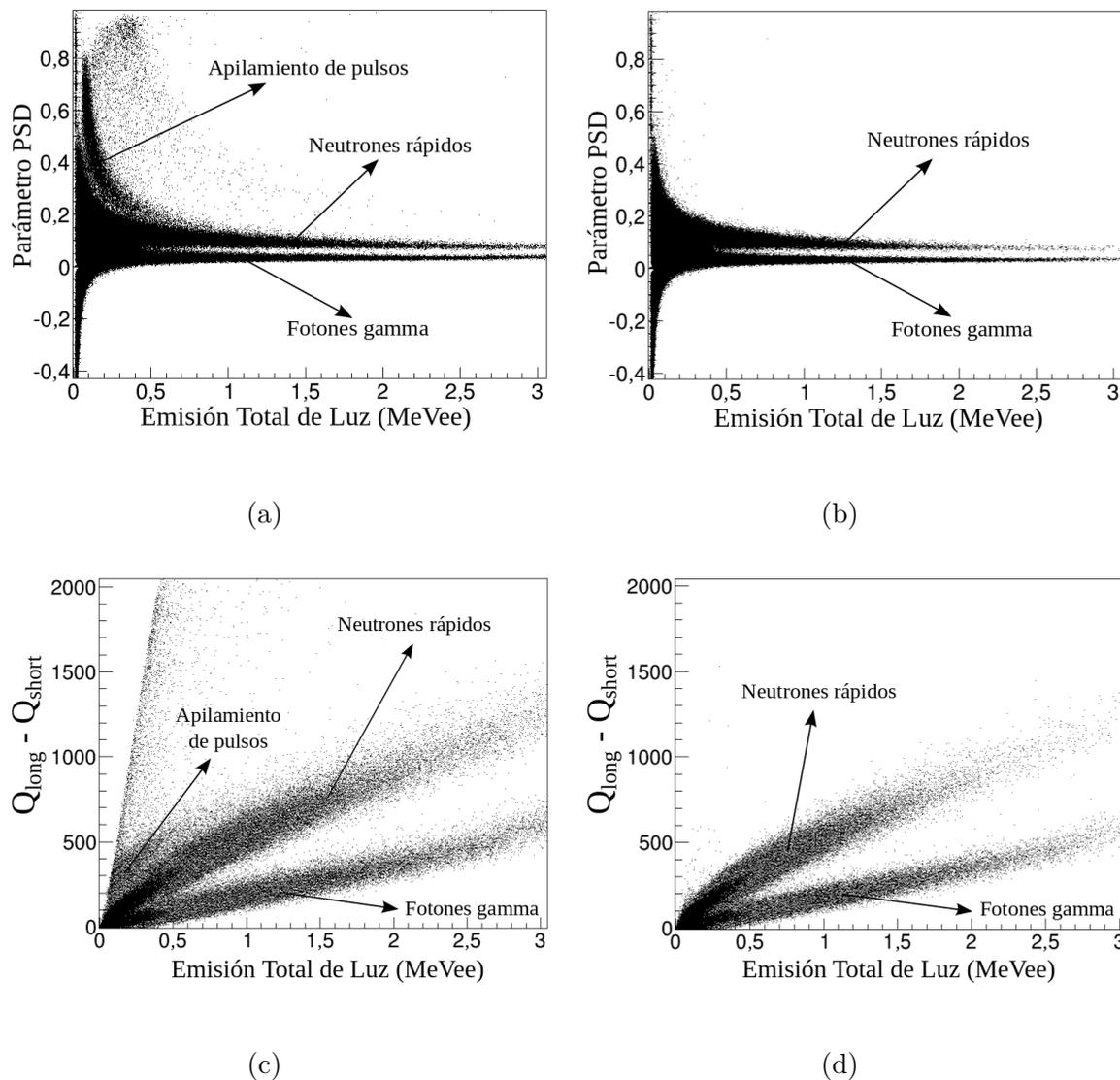


Figura 4.45. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz correspondiente a una medición con alta tasa de conteo en el detector EJ-339A usando una fuente de ^{252}Cf . (c) Fracción de luz retardada en función de la emisión total de luz de los mismos datos de (a). (b) y (d) son las mismas graficas (a) y (c) aplicando el filtro por apilamiento de pulsos en el *digitizer*

Los resultados mostrados anteriormente indican que los eventos identificados como capturas neutrónicas por Flaska et al. (2009) corresponden en realidad al apilamiento de pulsos debido a las altas tasas de conteo en el detector. De hecho, en la Fig. 4.46, se representa uno de estos eventos (seleccionado aleatoriamente), en el cual se observa

la presencia de dos mínimos dentro de la ventana de observación, es decir, este evento en particular corresponde al apilamiento de dos pulsos.

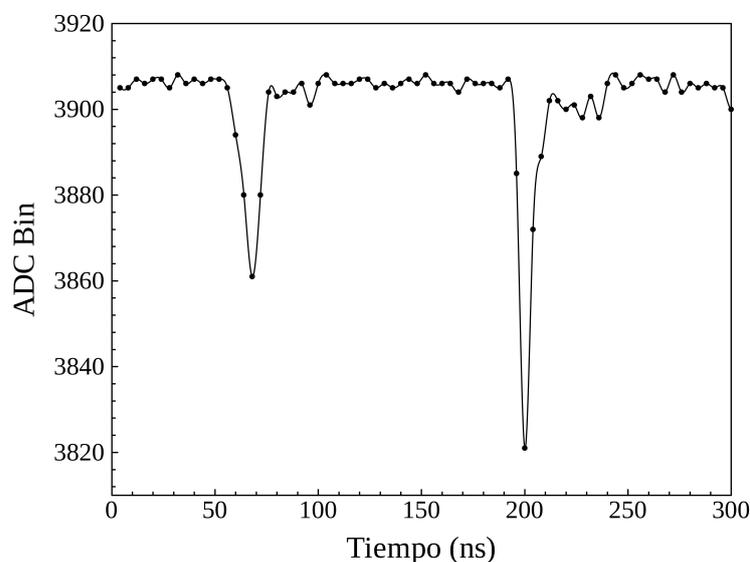


Figura 4.46. Evento correspondiente a la región acotada por un valor del parámetro PSD mayor que 0,5 y una emisión total de luz entre 0,075 y 0,1 $MeVee$ en el gráfico de la Fig. 4.45a

4.4.3. Eventos “capture-gated”

Para aclarar aún más el tema de la respuesta del detector EJ-339A ante la presencia de neutrones de baja energía, se realizó una medición durante una hora con la fuente de ^{252}Cf más intensa ($\sim 10^6$ n/s). Para esta medición el detector EJ-339A se ubicó muy cerca de la fuente (~ 10 cm). Además, se colocó un bloque de plomo de 5 cm de espesor entre la fuente y el detector para disminuir un poco la tasa de conteo de fotones gamma y minimizar el apilamiento de pulsos. El análisis de estos datos consistió en extraer los eventos de captura denominados “capture gated”. Estos eventos se caracterizan por el hecho de que los neutrones que son capturados también son termalizados dentro del volumen sensible del detector, por lo tanto, en la salida del fotomultiplicador se observa un primer pulso correspondiente a la interacción del neutrón de fisión seguido (después de cierto intervalo de tiempo) del evento de captura neutrónica.

En la Fig. 4.47a se presenta el gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz de los eventos “capture gated”. Tal como se mostró en la Fig. 4.42b, los eventos de captura que están constituidos únicamente por la emisión de luz producida por la partícula α se ubican principalmente en la región acotada por valores del parámetro PSD entre $-0,1$ y $0,3$ a un valor promedio de emisión de luz de $0,05$ $Me-$

Vee. En este caso, para $E > 0,08 \text{ MeVee}$, se observan los eventos en coincidencia de la partícula α con el fotón gamma de $0,478 \text{ MeV}$, los cuales se ubican con mayor precisión en la región correspondiente a fotones gamma a medida que la deposición en energía por parte del fotón es mayor.

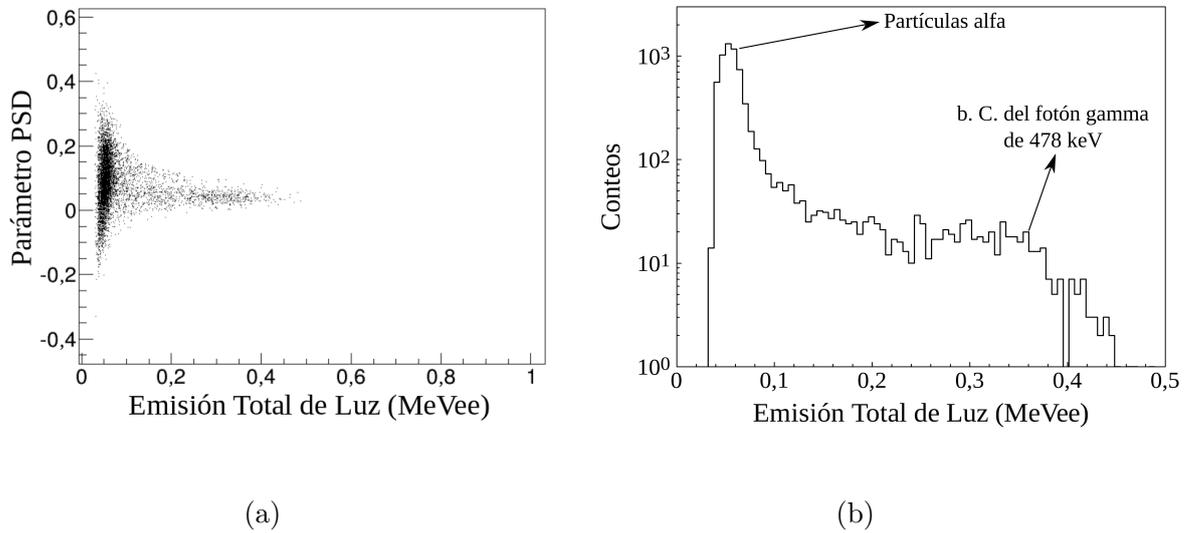


Figura 4.47. (a) Parámetro PSD en función de la emisión total de luz de los eventos “capture gated” adquiridos con el detector EJ-339A. (b) Espectro en emisión de luz de estos eventos

En la Fig. 4.47b se muestra el espectro en emisión de luz de estos eventos (proyección de la Fig. 4.47a sobre el eje de las abscisas). En este gráfico es posible identificar claramente los eventos debidos a la emisión de luz producida por las partículas α ($\sim 0,05 \text{ MeVee}$), además se observa la distribución Compton del fotón gamma de $0,478 \text{ MeV}$ la cual está desplazada un poco hacia la derecha del espectro debido a que el fotón siempre se detecta en coincidencia con la partícula alfa.

De los resultados presentados en la Fig. 4.47b se determinó la probabilidad de detectar en coincidencia la partícula α con el fotón gamma. Para este análisis se consideró que los eventos en coincidencia $\alpha - \gamma$ producen una emisión de luz mayor que $0,087 \text{ MeVee}$. Además, se supuso que la totalidad de eventos que se encuentran entre $0,03$ y $0,087 \text{ MeVee}$ constituyen todos los eventos de captura que ocurrieron en el detector. Teniendo en cuenta que sólo en el 94% de las capturas se emitió el fotón gamma entonces la probabilidad de detectar en coincidencia la partícula α con el fotón gamma ($P_{\alpha-\gamma}$) es:

$$P_{\alpha-\gamma} = \left(\frac{N_{>87}}{0,94N_{[30-87]}} \right) \times 100\% \quad (4.5)$$

Donde $N_{>87}$ es el número total de eventos con una emisión de luz mayor que $0,087$

$MeVee$ y $N_{[30-87]}$ es el número total de eventos entre 0,03 y 0,087 $MeVee$. El resultado obtenido para $P_{\alpha-\gamma}$ fue $(20 \pm 3) \%$.

Para estimar la probabilidad de escape de un fotón gamma de 0,478 MeV , que se genera aleatoriamente en cualquier posición del volumen activo del detector EJ-339A, se construyó un modelo de este detector con el código *PENELOPE 2008* (ver sec. 3.6). En total se simularon 10^7 fotones emitidos en direcciones aleatorias y se determinó el número de fotones que depositaron parte de su energía ($E > 0$) en el volumen activo del detector. La probabilidad de escape del fotón gamma de 0,478 MeV estimada resultó ser de 17%. La incertidumbre estadística asociada a este cálculo es menor al 1%. Este valor estimado está en correspondencia con el valor experimental obtenido para $P_{\alpha-\gamma}$.

Otro parámetro importante que se determinó en este estudio fue el tiempo característico de captura neutrónica del detector EJ-339A. Para hacer esto se construyó la distribución temporal de los eventos “*capture gated*”, es decir, la distribución del intervalo de tiempo que transcurre entre el instante de ocurrencia del pulso correspondiente a la termalización del neutrón y el instante de ocurrencia del pulso de captura (ver Fig. 4.48). La distribución de probabilidad para la captura de un neutrón térmico luego de un cierto instante de tiempo t es [49]:

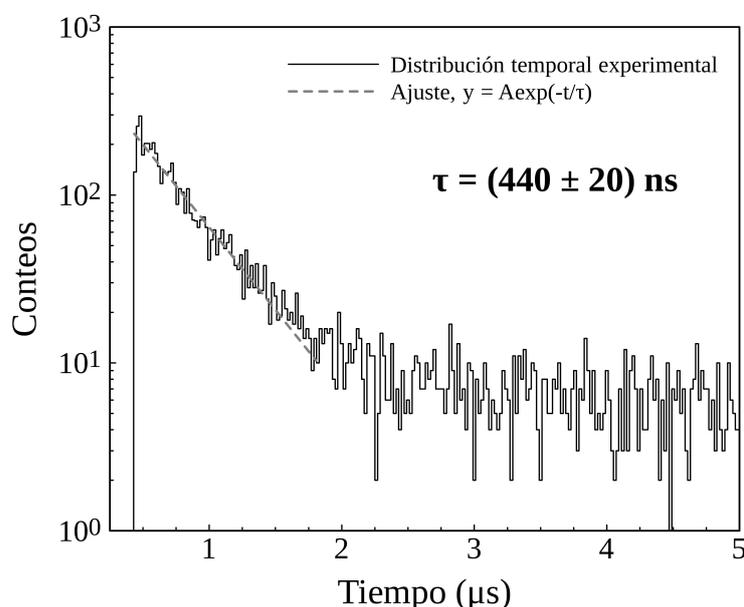


Figura 4.48. Distribución temporal de los eventos “*capture gated*” medidos con el detector EJ-339A utilizando una fuente de ^{252}Cf

$$P(t) = Ae^{-t/\tau} \quad (4.6)$$

Donde el parámetro “ τ ” es el tiempo de captura característico del detector. En este caso, éste depende principalmente de la concentración de ^{10}B en el detector [49]. A la distribución temporal se le ajustó una función exponencial (ver Fig. 4.48). De los parámetros del ajuste se determinó que el tiempo de captura característico del detector EJ-339A es (440 ± 20) ns. Este resultado está en excelente acuerdo con los valores reportados en [44, 95].

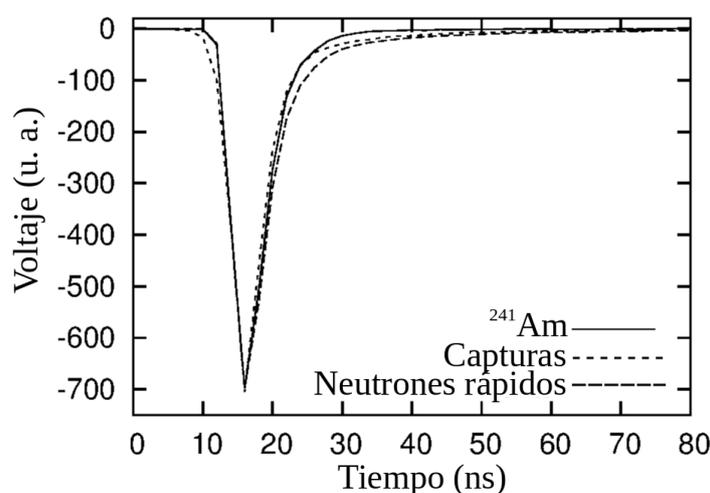


Figura 4.49. Pulsos (promedio) de salida del detector EJ-339A correspondientes a: la línea gamma de 59,54 keV del ^{241}Am , neutrones de fisión emitidos por ^{252}Cf y eventos “capture gated”

Finalmente en la Fig. 4.49 se presenta una comparación entre la forma de los pulsos promediados correspondientes a tres tipos de evento de interés: a) fotones gamma pertenecientes a la línea gamma de 59,54 keV del ^{241}Am , b) neutrones de fisión que producen una emisión de luz entre 0,4 y 0,5 MeVee y c) eventos “capture gated” correspondientes únicamente a la detección de la partícula α . Para cada tipo de evento la forma del pulso digitalizado fue promediado y normalizado de tal manera que los mínimos coincidieran. Tal como se ha observado en los resultados presentados anteriormente la fracción de luz retardada (parámetro PSD) de los eventos que corresponden a neutrones de fisión es claramente mayor que la de los eventos gamma. Sin embargo, los eventos asociados a las capturas de neutrones térmicos muestran una fracción de luz retardada mayor que la de los eventos gamma y menor que la de los neutrones de fisión, esto se debe principalmente al efecto de *quenching* que sufren las moléculas del

centellador que interactúan con las partículas α producidas en la reacción de captura del ^{10}B [44]. Era de esperarse que los eventos de captura se observaran por encima de la región de neutrones rápidos en los gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz, sin embargo, el efecto de *quenching* causa que estos eventos se ubiquen entre las regiones de neutrones rápidos y fotones gamma tal como ha sido encontrado en este trabajo y reportado en trabajos previos [44, 51].

4.4.4. Efectos de Blindar una Fuente de ^{252}Cf con Polietileno

En esta sección del trabajo se estudió un escenario en el cual una fuente de ^{252}Cf se encuentra blindada con un material hidrogenado (polietileno), sin la presencia de ningún material reflector de neutrones. Se estudiaron los efectos de este tipo de blindaje sobre el espectro de neutrones emitido por la fuente. Además, a partir de la relación entre los eventos de captura medidos en el detector EJ-339A y los eventos de neutrones rápidos adquiridos por un detector EJ-301, se encontró un criterio para dar información acerca del espesor de polietileno del blindaje.

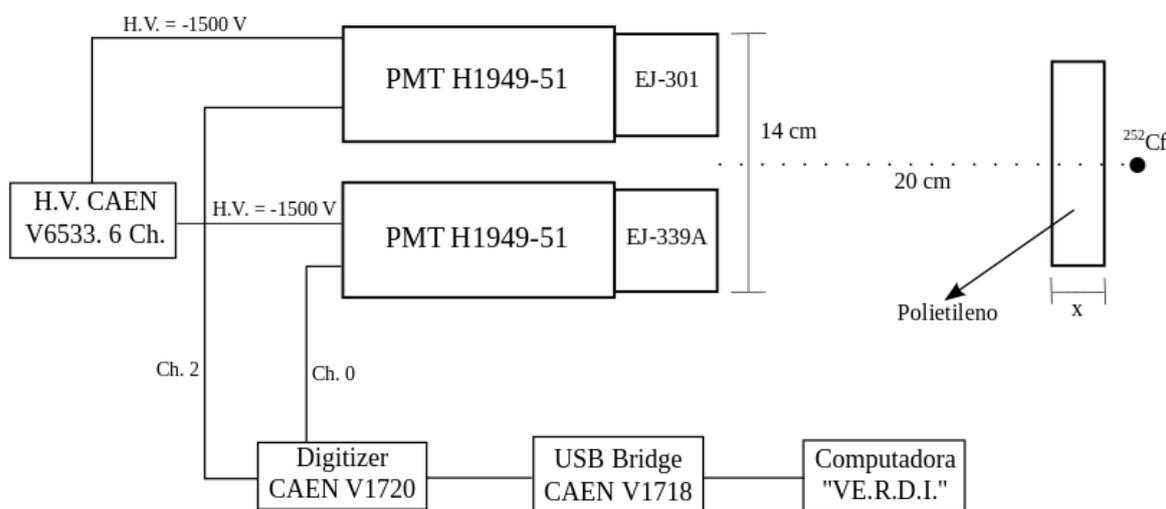


Figura 4.50. Esquema experimental utilizado para estudiar la respuesta de los detectores EJ-339A y EJ-301 en presencia de una fuente de ^{252}Cf blindada con polietileno

En la Fig. 4.50 se presenta el montaje experimental que se utilizó para realizar las mediciones. Se utilizaron dos celdas cilíndricas (de 51 mm de diámetro por 51 mm de espesor) que contenían los centelladores EJ-301 y EJ-339A. Estas celdas se acoplaron a dos fotomultiplicadores HAMAMATSU H1949-51 idénticos. Los detectores fueron ubicados a 20 cm de la fuente de calibración de ^{252}Cf (~ 8000 n/s). Para el procesamiento digital de los pulsos se utilizó una cadena electrónica CAEN tipo VME,

según se muestra en la Fig. 4.50. Se colocó un número variado de bloques de polietileno entre la fuente y los detectores con la finalidad de hacer mediciones con distintos espesores de polietileno (desde 0 hasta 18 *cm* en pasos de 2 *cm*). Cada medición tuvo una duración de una hora.

Para extraer la mayor cantidad de información de los datos adquiridos por ambos detectores se construyó un modelo del experimento con *GEANT4 9.6*. Se reprodujo casi en su totalidad la geometría del esquema experimental, esto incluye la geometría de cada celda y la del blindaje de polietileno. En el modelo se introdujo la composición química y densidad de cada centellador tal como se presentó en las Tablas 3.1 y 3.2. La fuente de ^{252}Cf fue simulada como una fuente de neutrones puntual e isotrópica con un espectro en energía igual a la distribución de Watt presentada en la ec. 3.4. En el detector EJ-301 se simuló el espectro en emisión de luz de los neutrones rápidos. Para hacer esto se utilizó la función de emisión de luz para protones reportada por Kornilov et al. (2009) [24] para un detector BC-501A, el cual es un centellador líquido equivalente al EJ-301. Por otra parte, en el detector EJ-339A se simuló únicamente el número de capturas neutrónicas por cada neutrón emitido por la fuente debido a que no se conoce su función de emisión de luz para protones. Se realizaron simulaciones haciendo variar el espesor del blindaje de polietileno desde 0 hasta 24 *cm* en pasos de 2 *cm*. Cada simulación consistió en 10^9 neutrones.

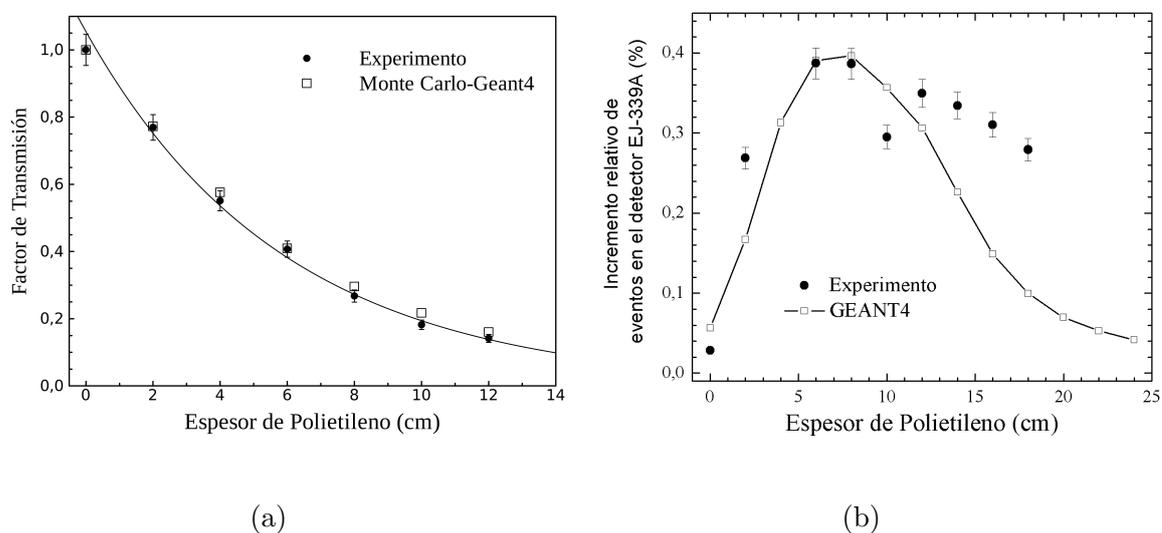


Figura 4.51. (a) Factor de transmisión de los neutrones de fisión e (b) incremento relativo de eventos (en la región gamma) adquiridos por el detector EJ-339A con $E < 0,1 \text{ MeVee}$ (número de capturas en el caso de la simulación por Monte Carlo) en función del espesor de polietileno

En la Fig. 4.51a se presenta el factor de transmisión ($I(x)/I_0$) de los neutrones

de fisión en función del espesor “ x ” de polietileno. Los valores experimentales fueron determinados con los eventos de neutrones rápidos registrados en el detector EJ-301 con $E > 0,1 \text{ MeVee}$. Estos resultados fueron comparados con los valores obtenidos con las simulaciones por Monte Carlo obteniéndose una excelente correspondencia entre ambos. En el apéndice A se presentan los gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para las fuentes de ^{241}Am , ^{22}Na y ^{252}Cf obtenidos con los eventos registrados en el detector EJ-301. En la figura A.1 se muestra la curva que define la frontera entre las regiones de eventos de neutrones rápidos y fotones gamma (curva gris). Esta curva fue construida con los gráficos correspondientes a las fuentes gamma, de manera similar a como se hizo con el detector EJ-339A.

Para estimar experimentalmente la cantidad de capturas que ocurrieron en el detector EJ-339A se tomaron los eventos registrados en ambos detectores en la región de eventos gamma con $E < 0,1 \text{ MeVee}$. Luego, se hizo la sustracción entre los eventos que fueron adquiridos por el detector EJ-339A y los correspondientes del detector EJ-301. El error que se comete haciendo esta estimación es pequeño debido a que la composición y la densidad de estos detectores no difieren considerablemente, además, los fotomultiplicadores y la electrónica de procesamiento de pulsos es idéntica para ambos. Si esta estimación se normaliza al número de eventos registrados en el detector EJ-301 se obtiene el incremento relativo de eventos registrados por el detector EJ-339A (con emisión de luz $< 0,1 \text{ MeVee}$). Al mismo tiempo que se mide una disminución en la cantidad de eventos de neutrones rápidos debido al incremento en el espesor de polietileno, se observa que el incremento relativo de eventos en el detector EJ-339A (debido principalmente a las capturas neutrónicas) crece rápidamente hasta 40% para un espesor de polietileno entre 6 – 8 cm (ver Fig. 4.51b). Para espesores más grandes el número de capturas en el detector disminuye debido a que existe una mayor probabilidad de que los neutrones de fisión, luego de ser termalizados, sean capturados por los núcleos de los átomos que componen el blindaje (principalmente el ^1H , $\sigma_{cap}(E = 0,025\text{eV}) \simeq 0,33\text{b}$).

Los resultados de las simulaciones por Monte Carlo que se presentan en la Fig. 4.51b corresponden al número de capturas registradas en el detector EJ-339A en función del espesor de polietileno. Estos valores han sido normalizados a los datos experimentales para poder hacer una comparación entre ambos. Los resultados muestran una buena correspondencia hasta un espesor de polietileno de aproximadamente 8 cm. De allí en adelante la tendencia en ambos conjuntos de datos es decreciente, sin embargo, los datos experimentales exhiben valores superiores a los estimados con *GEANT4*. Esto seguramente se debe a la incerteza con la que se determinó experimentalmente el número de capturas neutrónicas. Es preciso recordar que este número se obtuvo restando los eventos adquiridos por el detector EJ-339A (eventos pertenecientes a la región gamma y con $E < 0,1 \text{ MeVee}$) menos los correspondientes del detector EJ-301. Debido a las

diferencias en composición química y densidad entre estos detectores, es probable que se haya sobrestimado el número de capturas debido a que los eventos gamma registrados en el detector EJ-339A son un poco más que los registrados por el detector EJ-301 ($\rho_{339} = 0,92 \text{ g/cm}^3$ y $\rho_{301} = 0,874 \text{ g/cm}^3$). El efecto se hace evidente cuando la fuente está blindada con más de 8 cm de polietileno, ya que en esta situación el número de fotones gamma de baja energía ($< 0,1 \text{ MeV}$) que inciden sobre el detector es mayor que en los casos con menos (o sin) blindaje.

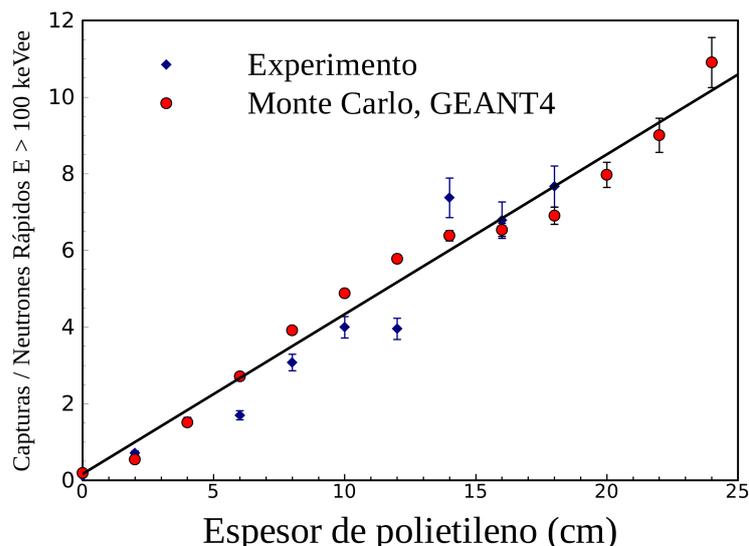


Figura 4.52. Resultados experimentales y simulaciones por Monte Carlo (*GEANT4 9.6*) de la relación entre el número de capturas neutrónicas registradas en el detector EJ-339A y el número de neutrones rápidos (con $E > 0,1 \text{ MeVee}$) medidos por el detector EJ-301, en función del espesor de polietileno con el que se blindaje la fuente de ^{252}Cf

Para finalizar, en la Fig. 4.52 se presentan los resultados experimentales y simulados con *GEANT 4 9.6* de la relación entre el incremento relativo de eventos en el detector EJ-339A (número de capturas en el caso de las simulaciones) y el número de neutrones rápidos que produjeron una emisión de luz mayor a $0,1 \text{ MeVee}$ en el detector EJ-301 en función del espesor de polietileno. Es interesante observar cómo la combinación de los efectos estudiados anteriormente sobre la transmisión de neutrones rápidos y sobre el número de capturas en el detector EJ-339A resulta en un incremento casi lineal de esta relación en función del espesor del blindaje. Este resultado puede ser usado como un criterio para extraer información acerca del espesor de un blindaje (de una fuente de neutrones) que esté compuesto por algún material hidrogenado.

Es importante mencionar que de los resultados presentados en esta sección (sec. 4.4) surgió una participación en el 10th Latin American Symposium on Nuclear Physics and

Applications (Montevideo - Uruguay, 2013) [97], y además, se realizó una publicación que ha sido aceptada recientemente [98].

4.5. Detector de Neutrones Térmicos, EJ-420

En las secciones anteriores se evaluó satisfactoriamente el uso de diversos centelladores orgánicos (líquidos y plásticos) con capacidades de discriminación n/γ para la detección e identificación de materiales radiactivos. Sin embargo, se encontró que resulta conveniente contar con un detector de neutrones térmicos en el caso de presentarse un escenario en el cual una fuente de neutrones se encuentre blindada con un material hidrogenado (por ejemplo polietileno), ver sec. 4.4.4. Es por ello que en esta sección se presentan los resultados preliminares de la respuesta del centellador inorgánico EJ-420 en la detección de neutrones térmicos.

El EJ-420 es un detector de neutrones térmicos ideal para ser usado en sistemas de monitoreo de radiación debido a su diseño compacto (disco de 51 mm de diámetro por 6,4 mm) y a su alta eficiencia. Este detector emplea un compuesto de ${}^6\text{Li}$ enriquecido al 95 % disperso en una matriz de sulfuro de zinc activado con plata, $\text{ZnS}(\text{Ag})$ (ver sec. 3.2.2 para más detalles).

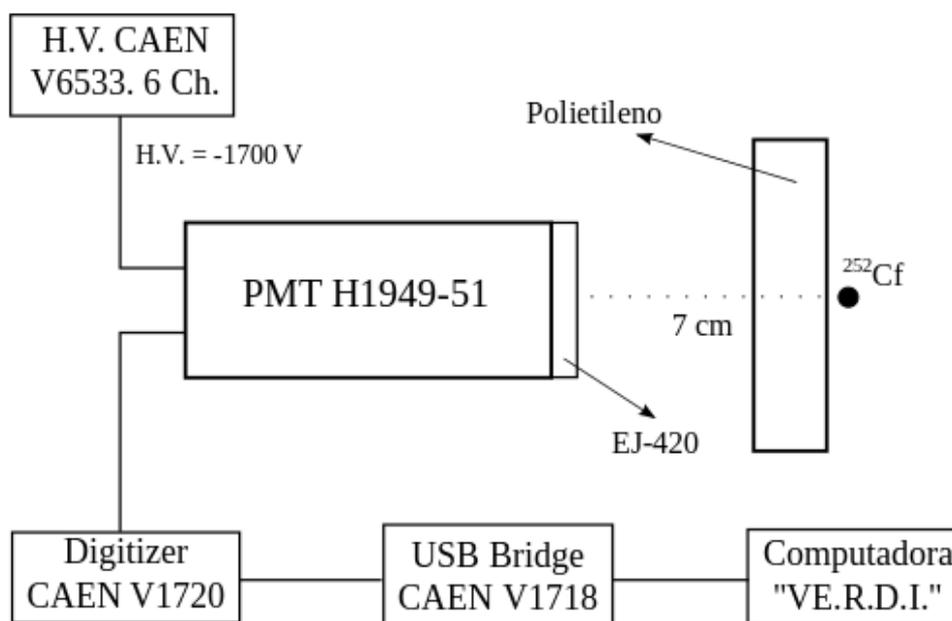


Figura 4.53. Esquema experimental utilizado para evaluar la respuesta del centellador EJ-420 en la detección de neutrones térmicos

Se procedió a ensamblar el detector acoplando el centellador EJ-420, con una película

de silicona EJ-560, a un fotomultiplicador HAMAMATSU H1949-51. Luego, se realizaron mediciones durante 15 minutos con la fuente de calibración de ^{252}Cf con un montaje experimental como el que se muestra en la Fig. 4.53. Se ubicó un bloque de polietileno de 20 cm de alto por 10 cm de ancho y espesor variable (0 – 6 cm) entre la fuente y el detector. La fuente se posicionó a 7 cm de la cara del detector.

Se utilizó la electrónica CAEN tipo VME, compuesta principalmente por el *digitizer* V1720 (250 MHz, 12 bit), para hacer el procesamiento digital de los pulsos. Se implementó el algoritmo de discriminación por forma de pulsos basado en la doble integración de los mismos para rechazar los eventos producidos por interacciones de fotones gamma con el detector. Estos fotones gamma provienen principalmente de la fuente de ^{252}Cf y del fondo gamma del laboratorio. Debido a que el tiempo promedio de decaimiento de la molécula de ZnS(Ag) es mucho más largo que el de los centelladores orgánicos antes estudiados, se procedió a optimizar los parámetros de adquisición del *digitizer*. Para hacer esto, se hizo una medición en la cual se guardaron todos los pulsos digitalizados. Cada pulso fue digitalizado en una ventana temporal de 800 ns. Utilizando el programa *root*, se hizo un análisis de estos pulsos haciendo variar los valores de las ventanas de integración corta y larga con la finalidad de encontrar los valores óptimos para discriminar de una manera eficaz los eventos correspondientes a capturas neutrónicas de los eventos gamma. En la Fig. 4.54 se presenta como ejemplo un pulso correspondiente a un evento de captura neutrónica.

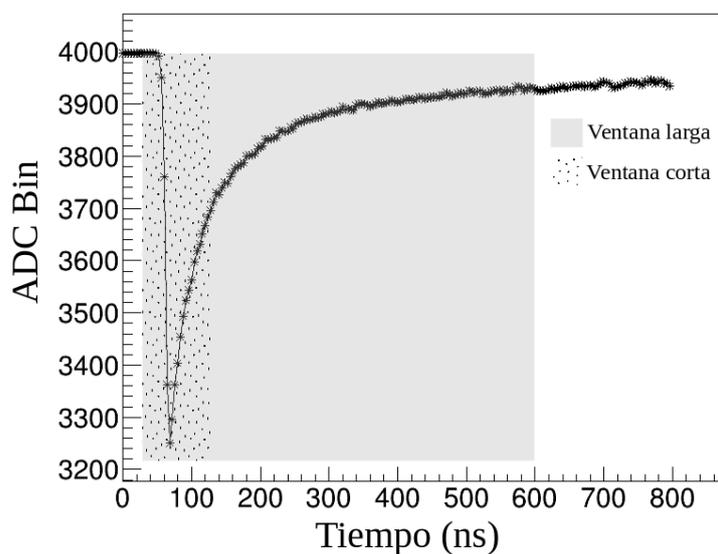


Figura 4.54. Pulso de salida del detector EJ-420 correspondiente a un evento de captura neutrónica. Se muestran las ventanas de integración óptimas para la implementación del algoritmo de discriminación por forma de pulsos

Sobre el pulso presentado en la Fig. 4.54 se muestran las ventanas de integración óptimas, la corta (área con puntos) mide 128 ns y la larga (área sombreada con gris) mide 600 ns . El parámetro PSD de cada evento se determina igual que siempre, es decir, con la ec. 3.3. Donde Q_{short} y Q_{long} son los valores de las integrales de cada pulso entre los límites que definen las ventanas de integración corta y larga respectivamente.

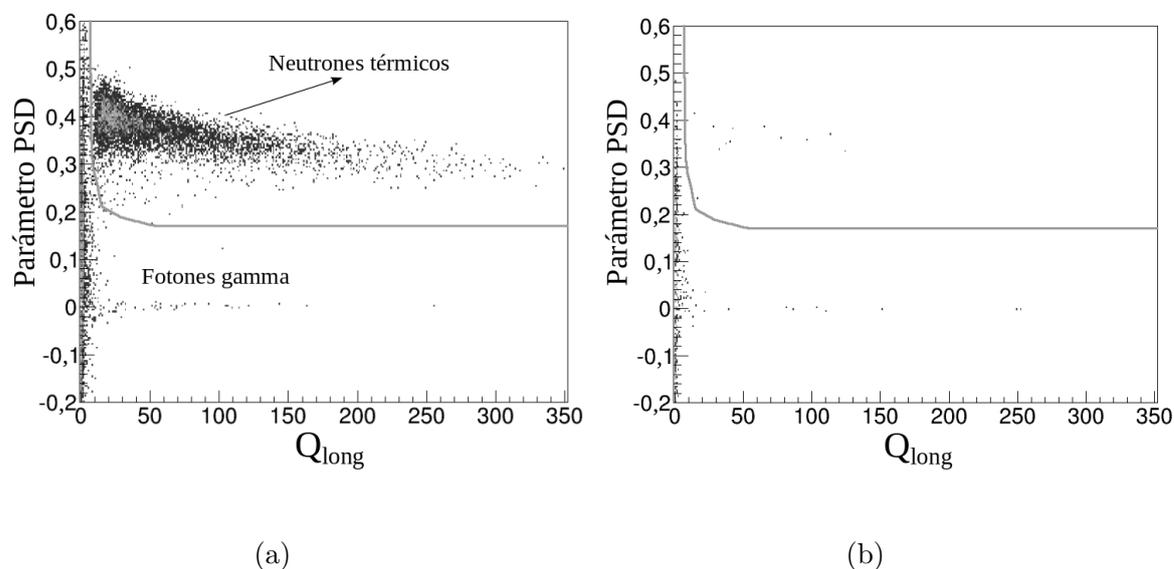


Figura 4.55. Parámetro PSD en función de la integral larga (Q_{long}) de cada pulso de salida del detector EJ-420. Los gráficos corresponden a mediciones hechas con ^{252}Cf blindado con 6 cm de polietileno (a) y con ^{137}Cs (b)

En la Fig. 4.55a se presenta el gráfico del parámetro PSD en función de la integral larga (Q_{long}) de cada pulso de salida del detector EJ-420 correspondiente a una medición hecha con la fuente de ^{252}Cf blindada con 6 cm de polietileno. En esta figura se observa claramente la zona donde se ubican los eventos correspondientes a capturas neutrónicas (neutrones térmicos). Basta con tomar todos los eventos que están ubicados por encima de la línea gris para cuantificar de manera exacta el número de capturas neutrónicas que ocurrieron en el detector. Para asegurarse que los demás eventos son causados fundamentalmente por fotones gamma, se realizó un gráfico similar con un conjunto de datos adquiridos con una fuente de ^{137}Cs , el resultado se muestra en la Fig. 4.55b.

En la Fig. 4.56 se presenta el número de capturas neutrónicas registradas durante un segundo en el detector EJ-420 en función del espesor del bloque de polietileno ubicado entre la fuente de ^{252}Cf y el detector. Hasta 6 cm se observa una tendencia lineal entre estas dos cantidades. Es importante resaltar la excelente sensibilidad que ofrece este detector en lo que respecta a la detección de neutrones térmicos ($\sim 1,3\text{ CPS/cm}$ de polietileno). A partir de los resultados obtenidos con el detector EJ-339A (ver sec. 4.4)

se ha demostrado que la información que aporta un detector de neutrones térmicos puede ser usada para identificar fuentes de neutrones blindadas. Sin embargo, ya que el detector EJ-339A (y otros similares) es un centellador orgánico líquido tóxico e inflamable, una alternativa más segura (desde el punto de vista técnico) de obtener la misma información pudiese ser combinar la respuesta obtenida de centelladores orgánicos como el EJ-309 o EJ-299-33 (que no son ni tóxicos ni inflamables) con la que aporta el detector EJ-420. Es importante mencionar que la información obtenida del detector EJ-420 es mucho más exacta que la que se obtiene del detector EJ-339A debido a que los eventos de capturas neutrónicas en este último se encuentran mezclados con eventos correspondientes a neutrones rápidos y fotones gammas que producen una emisión total de luz aproximadamente igual a 50 keVee (ver Fig. 4.42).

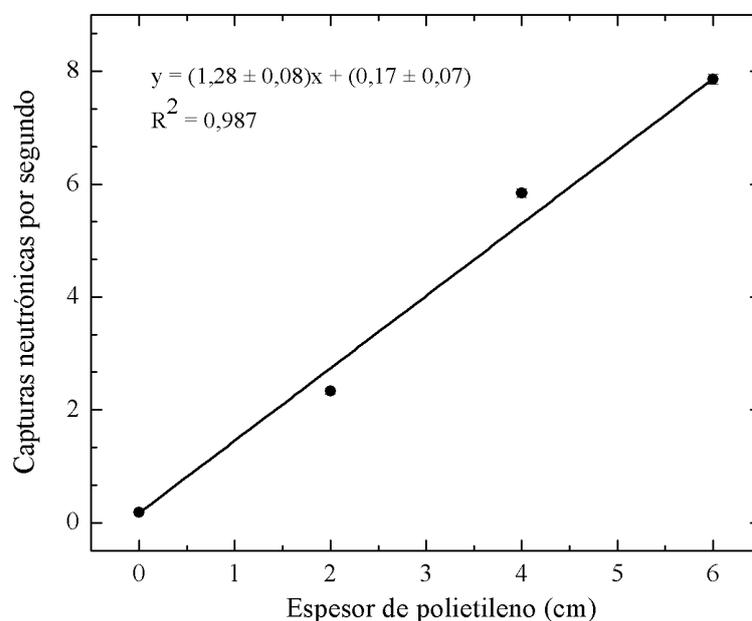


Figura 4.56. Número de capturas neutrónicas registradas en el detector EJ-420 en un segundo en función del espesor del bloque de polietileno. El tamaño de las barras de error es comparable al de los círculos

4.5.1. Decaimiento de la molécula de ZnS(Ag)

El tiempo de decaimiento de los pulsos que se desean analizar debe ser bien conocido para optimizar la ventana de adquisición del *digitizer*. Según la información reportada por algunas de las empresas que comercializan detectores de neutrones térmicos basados en la combinación ZnS(Ag)- ^6Li (Eljen Technology y Saint-Gobain Crystals), el tiempo característico de la componente rápida más intensa de este centellador está entre 0,2 y 0,25 μs . Sin embargo, se ha dedicado esta sección de este trabajo de tesis para hacer

un estudio detallado de los tiempos de decaimiento de la molécula de $\text{ZnS}(\text{Ag})$ cuando ésta es excitada por los productos de la reacción de captura neutrónica del ${}^6\text{Li}$. Cabe destacar que los productos de esta reacción son un ${}^3\text{H}$ ($2,73 \text{ MeV}$) y una partícula α ($2,05 \text{ MeV}$).

Para hacer este estudio se utilizó el detector EJ-420, la fuente de calibración de ${}^{252}\text{Cf}$ y un osciloscopio Tektronix TBS1000, el cual posee una frecuencia máxima de muestreo de $2,5 \text{ GHz}$. Se ubicó un bloque de polietileno entre la fuente de neutrones y el detector de 6 cm de espesor con la finalidad de incrementar la probabilidad de ocurrencia de las reacciones de captura neutrónica en el detector. Los pulsos de salida del detector (específicamente del ánodo del PMT) se enviaron directamente al osciloscopio donde fueron digitalizados. En total se digitalizaron 12 pulsos (con amplitudes distintas) en una ventana temporal variable entre $2,5$ y $6 \mu\text{s}$.

El análisis cuantitativo se llevó a cabo modelando la intensidad de la parte decreciente de los pulsos digitalizados con una función compuesta por una suma de exponenciales decayentes [62] (ver ec. 4.7). Es importante mencionar que debido a que el fotomultiplicador H1949-51 posee una constante de tiempo característica ($1,3 \text{ ns}$) menor que los tiempos de decaimiento observados, el perfil temporal del pulso de salida se aproxima con bastante exactitud a la historia temporal de su formación. Por lo tanto, de los parámetros de ajuste de la ec. 4.7 se pueden determinar los tiempos característicos (τ_i) y las amplitudes (A_i) de las componentes de decaimiento del centellador $\text{ZnS}(\text{Ag})$.

$$I(t) = \sum \left(\frac{A_i}{\tau_i} \right) e^{-t/\tau_i} \quad (4.7)$$

En la Fig. 4.57 se presenta un ajuste realizado a uno de los pulsos digitalizados. En total fue necesario incluir un mínimo de tres términos en la ec. 4.7 para modelar la forma del pulso. En la Fig. 4.57 también se muestran por separado los tres términos (componentes de decaimiento) incluidos en el ajuste.

De los ajustes realizados a los 12 pulsos digitalizados se obtuvieron los valores promedio para los tiempos τ_i y las intensidades normalizadas w_i (calculadas según la ec. 4.8) de las tres componentes de decaimiento del $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Los resultados se presentan en la Tabla 4.6. Es importante destacar que la precisión con la que se reportan los tiempos de decaimiento es del orden del 6% (excepto en el caso de la componente más rápida que es $\sim 20\%$).

$$w_i = \frac{A_i}{\sum_{i=1}^3 A_i} \quad (4.8)$$

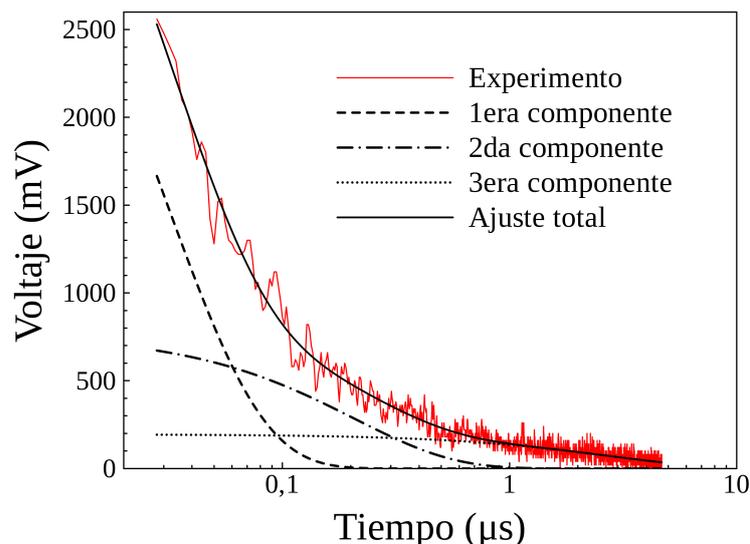


Figura 4.57. Ejemplo de un pulso de salida del detector EJ-420. Se muestra el ajuste realizado a los datos con la ec. 4.7. Además, se muestran por separado las tres componentes de decaimiento incluidas en el ajuste

Tabla 4.6. Tiempos (τ_i) e intensidades (w_i) promedio de las tres componentes de decaimiento del ZnS(Ag)

τ_i (μs)	w_i
$0,029 \pm 0,006$	$0,10 \pm 0,02$
$0,159 \pm 0,007$	$0,18 \pm 0,01$
$2,4 \pm 0,1$	$0,72 \pm 0,02$

De los resultados presentados en la Tabla 4.6 se obtiene que la componente más intensa es la que posee el tiempo característico más largo entre las tres ($\sim 2,4 \mu s$). Además, se encontró que la componente rápida más intensa tiene un tiempo característico de aproximadamente $159 ns$. Este valor difiere considerablemente del reportado por las empresas Eljen Technology y Saint-Gobain Crystals ($0,2$ y $0,25 \mu s$ respectivamente). Además, recientemente Kubota et. al. (2004) [63] reportaron sólo dos componentes de decaimiento para el ZnS(Ag), una componente rápida con un $\tau_1 = 0,222 \mu s$ y una lenta con un $\tau_2 = 1,77 \mu s$. Sin embargo, hay que tomar en cuenta que el procedimiento llevado a cabo por Kubota et al. (2004) [63] para analizar las curvas decaimiento del ZnS(Ag) representa un método alternativo al implementado en este trabajo de tesis. En [63] se definieron las componentes de decaimiento rápida y lenta como el tiempo en el cual la intensidad de luminiscencia (integral del pulso) alcanza la mitad de su valor total en dos ventanas de integración, una entre 0 y $0,4 \mu s$ para la componente rápida y otra entre 0 y $4 \mu s$ para la componente lenta.

Finalmente, en este trabajo de tesis se encontró que es necesario incluir una tercera componente (más rápida, $\sim 29 \text{ ns}$) para reproducir de manera exacta la forma del pulso. Es importante mencionar que para realizar un análisis adecuado de los datos es sumamente crítico tener digitalizado todo el pulso, es decir, es necesario asegurarse que la cola del pulso retornó completamente a la línea base. Si esto no ocurre, es muy probable que los valores obtenidos para los tiempos característicos e intensidades de las componentes de decaimiento sean inexactos.

CAPÍTULO V

CONCLUSIONES

Se comparó el desempeño entre un fotomultiplicador (PMT) plano de múltiples ánodos H8500C y un PMT estándar (linear-focused) H1949-51. Para hacer esto, estos dos fotomultiplicadores se acoplaron a dos celdas cilíndricas idénticas (de 50,8 *mm* de diámetro por 50,8 *mm* de espesor) que contienen el centellador orgánico líquido moderno EJ-309. Se encontró que la resolución en energía que exhiben ambos detectores es similar, mientras que, la resolución temporal del detector asociado al PMT estándar es mayor que la del detector asociado al PMT H8500C. Aún así, la resolución temporal que muestra este último es suficientemente buena para una gran cantidad de aplicaciones ya que ésta es menor que 1 *ns*. También, se estudió el desempeño de ambos detectores en la vecindad de un campo magnético. Se encontró que la respuesta del detector asociado al PMT H8500C se ve poco afectada en zonas con campos magnéticos moderados (hasta ~ 250 *G*), mientras que, tanto la ganancia como la resolución en energía del detector asociado al PMT estándar se ven severamente disminuidas en zonas con campos magnéticos de aproximadamente 60 *G*, aún y cuando el PMT H1949-51 posee un blindaje de mu-metal. Finalmente, se comparó la capacidad de discriminación n/γ entre el centellador moderno EJ-309 y el referente EJ-301 (acoplados ambos a PMT's H8500C). Se encontraron valores para la Figura de Mérito (FoM) utilizada ligeramente mayores para el detector asociado al centellador EJ-301. Este resultado está en concordancia con lo reportado anteriormente para este tipo de centelladores cuando han sido acoplados a fotomultiplicadores estándares (linear-focused).

Se determinó la función de emisión de luz para protones del centellador EJ-309 contenido en una celda de aluminio de 50,8 *mm* de diámetro por 50,8 *mm* de espesor. Para ello se utilizó una fuente de ^{252}Cf y se aplicó el método de la primera derivada propuesto por Kornilov et. al. (2009) [24]. La función encontrada en este trabajo presenta algunas diferencias respecto a las funciones reportadas anteriormente por Enqvist et al. (2013) [37] y Takada et al. (2011) [36], las cuales corresponden a detectores de mayor volumen. Enqvist et al. (2013) [37] evidenciaron una dependencia entre estas funciones y el volumen del detector, sin embargo, no queda clara la aplicabilidad de este resultado para detectores con distintos volúmenes ya que por una parte la función determinada por Takada et al. (2011) para un detector de 12 *cm* x 12 *cm* presenta diferencias con la reportada por Enqvist et al. (2013) para un detector de igual tamaño, y por otra parte

la función determinada en este trabajo no sigue la tendencia encontrada por Enqvist et al. (2013) a medida que el detector es más pequeño. Por lo tanto, para construir un modelo por Monte Carlo confiable de un detector EJ-309 se recomienda determinar experimentalmente su correspondiente función de emisión de luz para protones.

Utilizando tres de los códigos más usados en la actualidad para realizar el transporte de neutrones y fotones gamma a través de la materia, es decir, *GEANT4 9.6*, *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008*, se realizaron tres modelos idénticos de la celda de aluminio que contiene a los centelladores líquidos utilizados en este trabajo. En los modelos realizados con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* se introdujeron las diferentes funciones de emisión de luz para protones con la finalidad de simular los espectros en emisión de luz correspondientes a neutrones monoenergéticos y así poder determinar la curva de eficiencia intrínseca para neutrones del centellador EJ-309. A pesar de que las diferencias entre las funciones de emisión de luz para protones son pequeñas en la región de interés, se encontró que éstas causan diferencias importantes en los espectros en emisión de luz simulados. Se compararon las curvas de eficiencia simuladas con las curvas experimentales y se observó que las curvas simuladas con las funciones reportadas anteriormente difieren considerablemente de las curvas experimentales, sobre todo para valores de emisión de luz cercanas al umbral, mientras que aquellas simuladas con la función de emisión de luz determinada en este trabajo están en buena correspondencia con las mediciones experimentales. Se observó además una buena correspondencia entre los cálculos realizados con *GEANT4 9.6* y *MCNPX 2.7.0* en lo que respecta al transporte de neutrones de baja energía.

El modelo realizado con *PENELOPE 2008* se utilizó únicamente para los cálculos que involucraron el transporte de fotones gamma. Se demostró, a partir de resultados experimentales y simulaciones por Monte Carlo, que la eficiencia intrínseca gamma de un detector EJ-309 de 50,8 mm de diámetro por 50,8 mm de espesor no cambia sustancialmente ($< 3\%$) en función de la posición de la fuente radiactiva respecto al centro del detector. Este resultado también sirvió para validar el modelo realizado con *PENELOPE 2008*. Se comparó el espectro en energía experimental de una fuente de ^{137}Cs con los espectros simulados con *GEANT4 9.6*, *MCNPX 2.7.0* y *PENELOPE 2008*, encontrándose una buena correspondencia entre el espectro experimental y los simulados con *PENELOPE 2008* y *MCNPX 2.7.0*, mientras que, el espectro simulado con *GEANT4 9.6* sobrestima en aproximadamente 20 % el resultado experimental. Estos mismos resultados se observaron en la curva de eficiencia intrínseca gamma. Se recomienda usar *MCNPX 2.7.0* o *PENELOPE 2008* para obtener información cuantitativa confiable en problemas donde se simulen fotones de baja energía.

A partir de estos resultados se usó un detector EJ-309/H8500C para ensamblar un prototipo de un espectrómetro de neutrones y fotones gamma compacto, ligero ($\sim 8,4$

kg) y que consume poca energía (opera con baterías durante aproximadamente 2,5 *h* continuas). El sistema hace uso de una electrónica nuclear basada en *digitizers* para hacer el procesamiento digital de los pulsos. El prototipo se encuentra actualmente bajo pruebas de laboratorio para asegurarse de que cumpla con la normativa relacionada con este tipo de instrumento. Hasta ahora se ha determinado que la eficiencia de detección para gammas y neutrones cumple con la normativa correspondiente de la IEC [87]. Actualmente, como parte de una tesis de doctorado en física que se está llevando a cabo en la Universidad de los Estudios de Padova, se está desarrollando un programa para identificar fuentes radiactivas basándose únicamente en las características de los espectros gamma. La capacidad de discriminación n/γ del sistema ofrece la posibilidad de detectar fuentes de neutrones débiles. Este sistema puede ser útil tanto en aplicaciones de campo como en ciencias puras y aplicadas. En aplicaciones de campo éste puede ser implementado en el área de la seguridad nacional como un instrumento para la detección e identificación de materiales nucleares y fuentes radiactivas. Y en lo que respecta a las ciencias puras y aplicadas éste está siendo usado actualmente en el ámbito de la ingeniería de la fusión nuclear (Consozio RFX, Padova-Italia), como una herramienta para el diagnóstico de un plasma D-D.

Se realizó una caracterización completa de un nuevo y moderno tipo de centellador plástico con capacidades de discriminación n/γ (EJ-299-33). Se determinó la resolución en energía, la resolución temporal y la capacidad de discriminación n/γ de este centellador. Los resultados obtenidos fueron comparados con los centelladores líquidos EJ-309 y EJ-301. Se obtuvo que la resolución en energía del plástico EJ-299-33 ($\sigma/L = 10,0 \pm 0,8\%$), correspondiente al borde Compton del fotón gamma de 1,275 *MeV*, es ligeramente menor que la de los centelladores líquidos ($\sigma/L = 8,0 \pm 0,5\%$), mientras que la resolución temporal es muy similar a la de ambos centelladores líquidos ($\sim 0,4$ ns). Por otra parte, la capacidad de discriminación n/γ del plástico es menor que la de los líquidos, siendo ésta crítica en la zona de bajas energías donde se observó una discriminación pobre entre los eventos correspondientes a neutrones rápidos y fotones gamma. No obstante, las características generales encontradas en este nuevo tipo de detector plástico respaldan la posibilidad de usarlo en aplicaciones donde se requieren áreas o volúmenes activos grandes. En ciencias puras y aplicadas éste puede ser usado en medidas de tiempo de vuelo, además, puede ser usado en aplicaciones de seguridad nacional como reemplazo de los detectores basados en PVT (que son sensibles principalmente a fotones gamma y no poseen capacidades de discriminación n/γ), los cuales constituyen parte fundamental de los portales para medir radiación en puertos, aeropuertos y aduanas, entre otros.

Se estudió la respuesta y el desempeño de un centellador orgánico líquido cargado con 4,6% de ^{10}B , EJ-339A, ante un campo de radiación mixta (neutrones rápidos,

neutrones térmicos y fotones gamma). Se determinó la capacidad de discriminación entre neutrones rápidos y fotones gamma de este detector a partir del cálculo de la Figura de Mérito (definida en la sec. 2.3) en función del umbral en emisión de luz. Se encontró que los valores de FoM del centellador EJ-339A son menores que los de los centelladores líquidos EJ-309 y EJ-301. Sin embargo, la capacidad de discriminación n/γ del EJ-339A es suficientemente buena como para ser utilizado en aplicaciones en donde puede ser tolerado un umbral en emisión de luz mayor o igual que 200 keVee ($\text{FoM} \geq 1, 2$).

Para estudiar la respuesta del detector EJ-339A a eventos correspondientes a capturas neutrónicas se realizaron mediciones con una fuente de ^{252}Cf blindada con polietileno y además se hizo un experimento con la misma fuente blindada con plomo para medir los eventos tipo “*capture-gated*”. Los resultados obtenidos confirmaron que los eventos de captura del ^{10}B producen una emisión de luz promedio de aproximadamente 50 keVee , tal como ha sido reportado previamente por otros autores. Además, haciendo un procesamiento digital de los pulsos, se confirmó que en un gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz los eventos de captura se encuentran distribuidos entre los eventos correspondientes a neutrones rápidos y fotones gamma. Otros autores, utilizando electrónica nuclear analógica, encontraron resultados similares con detectores semejantes al EJ-339A. Sin embargo, Flaska et al. (2009) [3], haciendo un procesamiento digital de los pulsos similar al implementado en este trabajo, reportaron que los eventos correspondientes a capturas neutrónicas exhiben parámetros PSD mayores que los de los neutrones rápidos. Se ha demostrado en este trabajo que en realidad los eventos observados por Flaska et al. (2009) [3] corresponden a pulsos apilados.

Utilizando los eventos tipo “*capture-gated*” se determinó el tiempo característico de captura para un detector EJ-339A de $50,8 \text{ mm}$ de diámetro por $50,8 \text{ mm}$ de espesor. El valor obtenido fue de $\tau = (440 \pm 20) \text{ ns}$, estando éste en buena correspondencia con otros valores reportados anteriormente para detectores similares, y una vez más en desacuerdo con los resultados reportados por Flaska et al. (2009) [3]. Con estos mismos eventos se determinó experimentalmente la eficiencia de detección del fotón gamma de 478 keV , el cual se emite el 94% de las veces que ocurre una reacción de captura neutrónica del ^{10}B . El resultado experimental obtenido para esta eficiencia de detección fue de $(20 \pm 3)\%$. Finalmente se realizó un modelo de este detector con *PENELOPE 2008* el cual se usó, entre otras cosas, para determinar un valor simulado para este parámetro. Las simulaciones arrojaron un valor de 17%, el cual está en correspondencia con el valor experimental.

A partir de los eventos registrados en un detector EJ-339A se estudió un escenario en el cual una fuente de ^{252}Cf se encuentra blindada con un material hidrogenado (polietileno). Utilizando sólo la respuesta del detector EJ-339A, se encontró una manera de

distinguir entre una fuente de neutrones blindada (por los eventos de captura neutrónica) de fuentes de fotones gamma de baja energía (por ejemplo los de una fuente de ^{241}Am). Esto se logró realizando un gráfico de la relación entre los eventos correspondientes a fotones gamma en dos regiones del espectro ($< 0,1 \text{ MeVee}$ y $> 0,1 \text{ MeVee}$) en función de la misma relación para los eventos correspondientes a neutrones. En este gráfico se logra discriminar claramente entre fuentes gamma (^{241}Am y ^{22}Na) y una fuente de ^{252}Cf blindada en diferentes configuraciones con polietileno y plomo. Este resultado es muy importante para la posible implementación del detector EJ-339A en aplicaciones de seguridad nacional. Por otra parte, se encontró que usando en conjunto la información registrada por un sistema de dos detectores, un EJ-301 y un EJ-339A, es posible obtener información acerca del espesor de polietileno con el cual está blindada la fuente de ^{252}Cf . Específicamente esto se obtuvo graficando la relación entre el incremento relativo de eventos registrados en el detector EJ-339A y el número de neutrones rápidos que produjeron una emisión de luz mayor que $0,1 \text{ MeVee}$ en el detector EJ-301 en función del espesor de polietileno. El resultado que se obtuvo fue una dependencia casi lineal entre dicha relación y el espesor de polietileno. Finalmente, se realizó un modelo de este sistema con *GEANT4 9.6* y se encontró una buena correspondencia entre los resultados experimentales y los simulados.

Se estudió la respuesta de un detector de neutrones térmicos EJ-420, el cual está basado en un compuesto de litio (enriquecido al 95 % con ^6Li) disperso en una matriz $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Con la finalidad de identificar los eventos correspondientes a neutrones térmicos se implementó de manera exitosa la técnica de discriminación por forma de pulsos haciendo un procesamiento digital de los datos. Se encontró que los anchos óptimos para las ventanas de integración de los pulsos son de 128 y 600 ns. Con esta configuración se pudieron discriminar de manera precisa los eventos correspondientes a neutrones térmicos de los eventos gamma. La alta sensibilidad que muestra este centellador para la detección de neutrones térmicos lo hace un fuerte candidato para aplicaciones de seguridad nacional, específicamente para la detección de fuentes de neutrones blindadas con materiales hidrogenados.

Finalmente, utilizando el detector EJ-420 y una fuente de ^{252}Cf blindada con polietileno, se midieron las componentes de decaimiento del centellador $\text{ZnS}(\text{Ag})$ cuando es excitado por los productos de la reacción $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$. Estos resultados contribuyeron a la determinación de los valores óptimos de las ventanas de integración de los pulsos para implementar la técnica de discriminación. En total fueron identificadas tres componentes de decaimiento: $\tau_1 = (0,029 \pm 0,006) \mu\text{s}$, $\tau_2 = (0,159 \pm 0,007) \mu\text{s}$, y $\tau_3 = (2,4 \pm 0,1) \mu\text{s}$.

APÉNDICE A

EJ-301

En las Fig. A.1 y A.2 se presentan los gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para las fuentes de ^{241}Am (A.1a), ^{22}Na (A.1b) y ^{252}Cf (A.2) construidos con los eventos registrados en el detector EJ-301. La curva gris define la frontera entre las regiones que corresponden a eventos de neutrones rápidos y fotones gamma. Estos datos fueron adquiridos con el esquema experimental presentado en la Fig. 4.50 y sirvieron para estudiar la respuesta del sistema de detectores EJ-339A/EJ-301 ante la presencia de una fuente de ^{252}Cf blindada con polietileno (ver sec. 4.4.4).

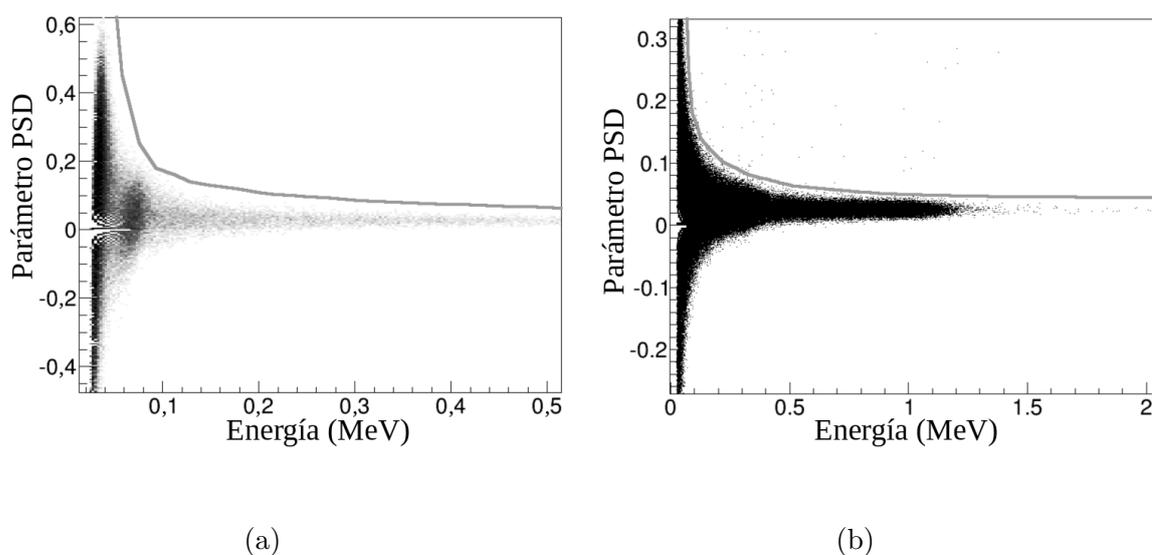


Figura A.1. Gráficos del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para las fuentes de ^{241}Am (a) y ^{22}Na (b) construidos con los eventos registrados en el detector EJ-301. La curva gris define la frontera entre la región que corresponde a eventos gamma (debajo de la curva) y la que corresponde a eventos de neutrones rápidos (encima de la curva)

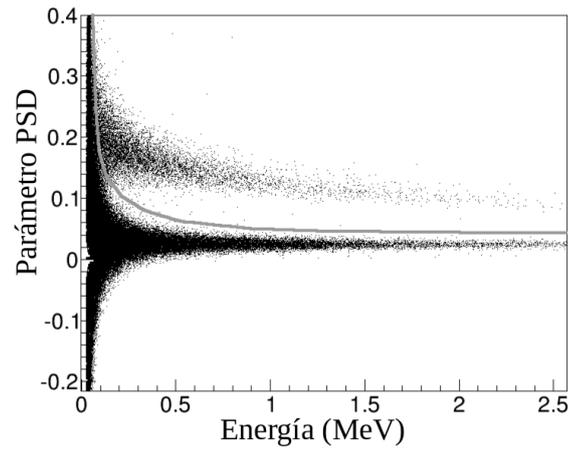


Figura A.2. Gráfico del parámetro PSD en función de la emisión total de luz para la fuente de ^{252}Cf construido con los eventos registrados en el detector EJ-301. La curva gris es la misma de la Fig. A.1

REFERENCIAS

- [1] Knoll G. *Radiation Detection and Measurements*. John Wiley and Sons, Inc., New York, USA, tercera edición, 1989.
- [2] Pesente S., Nebbia G., Viesti G., Daniele F., Fabris D., Lunardon M., Moretto S., Nad K., Sudac D., y Valkovic V. Progress in tagged neutron beams for cargo inspections. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 261:268-271, 2007.
- [3] Flaska M. y Pozzi S. Digital pulse shape analysis for the capture-gated liquid scintillator BC-523A. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 599:221-225, 2009.
- [4] Viesti G. et al. The EXPLODET project: advanced nuclear techniques for humanitarian demining. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 422:918-921, 1999.
- [5] Zuin L. et al. Experimental optimisation of a moderated ^{252}Cf source for land mine detection. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 449:416-426, 2000.
- [6] Fioretto E. et al. *CsI(Tl)* scintillators as γ -ray detectors for the identification of hidden explosives. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 471:234-238, 2001.
- [7] Pesente S. et al. Tagged neutron inspection system (tnis) based on portable sealed generators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 241:743-747, 2005.
- [8] Perot B. et al. Development of the EURITRACK tagged neutron inspection system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 261:295-298, 2007.
- [9] Pesente S., Lunardon M., Nebbia G., Viesti G., Sudac D., y Valkovic V. Monte carlo analysis of tagged neutron beams for cargo container inspection. *Applied Radiation and Isotopes*, 65:1322-1329, 2007.

- [10] Carasco C. et al. In-field tests of the EURITRACK tagged neutron inspection system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 588:397-405, 2008.
- [11] Viesti G., Cossutta L., Fabris D., Lunardon M., Moretto S., Nebbia G., Pesente S., Pino F., y Sajo-Bohus L. Material recognition by using a tagged ^{252}Cf source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 593:592-596, 2008.
- [12] Stevanato L. et al. A new facility for non-destructive assay using a ^{252}Cf source. *Applied Radiation and Isotopes*, 73:52-59, 2013.
- [13] Viesti G. et al. Search of explosives in vehicles by using tagged neutrons. *Detection of Liquid Explosives and Flammable Agents in Connection with Terrorism*, páginas 39-46, 2008.
- [14] Viesti G., Sajo-Bohus L. and Fabris D., Lunardon M., Moretto S., Nebbia G., y Pesente S. Material recognition using fission gamma rays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 606:816-820, 2009.
- [15] D. Cester D., Nebbia G., Stevanato L., Viesti G., Neri F., Petrucci S., Selmi S., Tintori C., Peerani P., y Tomanin A. Special nuclear material detection with a mobile multi-detector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 663:55-63, 2012.
- [16] Coelho P., Da Silva A., y Maiorino J. Neutron energy spectrum measurements of neutron sources with an NE-213 spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 280:270-272, 1989.
- [17] Klein H. y Neumann S. Neutron and photon spectrometry with liquid scintillation detectors in mixed fields. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 476:132-142, 2002.
- [18] Kaschuck Yu. A., Esposito B, Trykov L. A., y Semenov V. P. Fast neutron spectrometry with organic scintillators applied to magnetic fusion experiments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 476:511-515, 2002.
- [19] Zhang C., Mei D. M., Davis P., Woltman B., y Gray F. Measuring fast neutrons with large liquid scintillation detector for ultra-low background experiments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 729:138-146, 2013.
- [20] Howe S. D., Lisowski P. W., Russell G. J., King N. S. P., y Donnert H. J. Determination of the absolute efficiency of an organic scintillator for neutrons with energies between 0.5 and 800 MeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 227:565-570, 1984.

- [21] Weber Ch., Fabry I., Huhn V., Siepe A., y Von Witsch W. Accurate determination of the fast-neutron detection efficiency for organic scintillators using a collimated neutron beam. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 488:307-313, 2002.
- [22] Shin K., Ishii Y., Uwamino Y., Sakai H., y Numata S. Measurements of NE-213 response functions to neutrons of energies up to several tens of Mev. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 308:609-615, 1991.
- [23] Sasaki M., Nakao N., Nakamura T., Shibata T., y Fukumura A. Measurements of the response functions of an NE213 organic liquid scintillator to neutrons up to 800 MeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 480:440-447, 2002.
- [24] Kornilov N. V., Fabry I., Oberstedt S., y Hambsch F. Total characterization of neutron detectors with a ^{252}Cf source and a new light output determination. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 599:226-233, 2009.
- [25] Moszyński M., Costa G. J., Guillaume G., Heusch B., Huck A., y Mouatassim S. Study of n- γ discrimination with NE213 and BC501A liquid scintillators of different size. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 350:226-234, 1994.
- [26] Kaschuck Y. y Esposito B. Neutron/ γ -ray digital pulse shape discrimination with organic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 551:420-428, 2005.
- [27] Cavallaro M. et al. Pulse-shape discrimination in NE213 liquid scintillator detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 700:65-69, 2013.
- [28] Cester D., Lunardon M., Nebbia G., Stevanato L., Viesti G., Petrucci S., y Tintori C. Pulse shape discrimination with fast digitizers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 748:33-38, 2014.
- [29] Schweda K. y Schmidt D. Improved response function calculations for scintillation detectors using an extended version of the MCNP code. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 476:155-159, 2002.
- [30] Pozzi S., Flaska M., Enqvist A., y Pázsit I. Monte carlo and analytical models of neutron detection with organic scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 582:629-637, 2007.

- [31] Gohil M. et al. Measurement and simulation of neutron response function of organic liquid scintillator detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 664:304-309, 2012.
- [32] Tajik M., Ghal-Eh N., Etaati G. R., y Afarideh H. Modeling NE213 scintillator response to neutrons using an MCNPX-PHOTRACK hybrid code. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 704:104-110, 2013.
- [33] Pozzi S. A., Clarke S. D., Flaska M., y Peerani P. Pulse-height distributions of neutron and gamma rays from plutonium-oxide samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 608:310-315, 2009.
- [34] Lavietes A., Liguori C., Pickrell M., Plenteda R., Sweet M., Shigeyama M., Asano T., Nagatani T., y Nakajima S. Gamma and neutron detector performance in a mox fuel fabrication plant environment. *Nuclear Science Symposium Conference Record (NSS/MIC), 2010 IEEE*, páginas 677-685, 2010.
- [35] Pawelczak I. A., Ouedraogo S. A., Glenn A. M., Wurtz R. E., y Nakae L. F. Studies of neutron- γ pulse shape discrimination in ej-309 liquid scintillator using charge integration method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 711:21-26, 2013.
- [36] Takada M., Yajima K., Kamada S., Yasuda H., y Nakamura T. Simulated neutron response functions of phoswich-type neutron detector and thin organic liquid scintillator. *Progress in Nuclear Science and Technology*, 2:274-279, 2011.
- [37] Enqvist A., Lawrence C., Wieger B., Pozzi S., y Massey T. Neutron light output response and resolution functions in EJ-309 liquid scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 715:79-86, 2013.
- [38] Naeem S. F., Clarke S. D., y Pozzi S. A. Validation of Geant4 and MCNPX-PoliMi simulations of fast neutron detection with the EJ-309 liquid scintillator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 714:98-104, 2013.
- [39] Kouzes R. T., Ely J. H., Lintereur A. T., Mace E. K., Stephens D. L., y Woodring M. L. Neutron detection gamma ray sensitivity criteria. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 654:412-416, 2011.
- [40] Swiderski L., Moszyński M., Wolski D., Iwanowska J., Szcześniak T., Schotanus P., y Hurlbut C. Suppression of gamma-ray sensitivity of liquid scintillators for neutron detection. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 652:330-333, 2011.

- [41] Stevanato L., Cester D., Nebbia G., y Viesti G. Neutron detection in a high gamma-ray background with EJ-301 and EJ-309 liquid scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 690:96-101, 2012.
- [42] Takahiko A., Kiyonari H., Chizuo M., Katsuhisa K., y Naoto T. Energy response of a full-energy-absorption neutron spectrometer using boron-loaded liquid scintillator BC-523. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 333:492-501, 1993.
- [43] Ranucci G. y Borex collaboration. A liquid scintillator detector for the solar neutrino. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 315:229-235, 1992.
- [44] Wang S. C. et al. A feasibility study of boron-loaded liquid scintillator for the detection of electron anti-neutrinos. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 432:111-121, 1999.
- [45] Normand S., Mouanda B., Haan S., y Louvel M. Discrimination methods between neutron and gamma rays for boron loaded plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 484:342-350, 2002.
- [46] Holm P., Peräjärvi K., Ristkari S., Siiskonen T., y Toivonen H. A capture-gated neutron spectrometer for characterization of neutron sources and their shields. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 751:48-54, 2014.
- [47] Swiderski L. et al. Boron-10 loaded BC523A liquid scintillator for neutron detection in the border monitoring. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 55(6):3710-3716, 2008.
- [48] Swiderski L. et al. Comparison of neutron detection efficiency of a He-3 counter and a boron-10 loaded liquid scintillator. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 57(5):2857-2861, 2010.
- [49] Jastaniah S. D. y Sellin P. J. Digital techniques for n/γ pulse shape discrimination and capture-gated neutron spectroscopy using liquid scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 517:202-210, 2004.
- [50] Kamykowski E. A. Analysis of mean lifetime for capture of neutrons in boron-loaded plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 299:105-110, 1990.
- [51] Swiderski L. et al. Further study of boron-10 loaded liquid scintillators for detection of fast and thermal neutrons. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 57(1):375-380, 2010.

- [52] Budakovskiy S. V., Galunov N. Z., Karavaeva N. L., Jong K. K., Yong K. K., Tarasenko O. A., y Martynenko E. V. New effective organic scintillators for fast neutron and short-range radiation detection. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 54(6):2734-2740, 2007.
- [53] Zaitseva N., Rupert B. L., Pawełczak I., Glenn A., Martinez H. P., Carman L., Faust M., Cherepy N., y Payne S. Plastic scintillators with efficient neutron/gamma pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 668:88-93, 2012.
- [54] Matei C., Hamsch F. J., y Oberstedt S. Proton light output function and neutron efficiency of a p-terphenyl detector using a ^{252}Cf source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 676:135-139, 2012.
- [55] Pozzi S. A., Bourne M. M., y Clarke S. D. Pulse shape discrimination in the plastic scintillator EJ-299-33. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 723:19-23, 2013.
- [56] Nyibule S. et al. Radioluminescent characteristics of the EJ 299-33 plastic scintillator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 728:36-39, 2013.
- [57] Kojima T., Katagiri M., Tsutsui N., Imai K., Matsubayashi M., y Sakasai K. Neutron scintillators with high detection efficiency. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 529:325-328, 2004.
- [58] Katagiri M., Nakamura T., Ebine M., Birumachi A., Sato S., Shooneveld E. M., y Rhodes N. J. High-position-resolution neutron imaging detector with crossed wavelength shifting fiber read-out using two $\text{ZnS}/^6\text{LiF}$ scintillator sheets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2007:149-152, 573.
- [59] Wu C., Tang B., Sun Z. J., Zhang Q., Yang Z., Zhang J., Yang Y. D., Liang J. C., y Wu J. J. A study of $\text{ZnS}(\text{Ag})/^6\text{LiF}$ with different mass ratios. *Radiation Measurements*, 58:128-132, 2013.
- [60] Kiff S. D., Bowden N., Lund J., y Reyna D. Neutron detection and identification using $\text{ZnS}:\text{Ag}/^6\text{LiF}$ in segmented antineutrino detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 652:412-416, 2011.
- [61] Kraitor S. N. y Koshaeva K. K. Decay of scintillations in $\text{ZnS}(\text{Ag})$ produced by α -particles and fission fragments. *Translated from Zhurnal Prikladnoi Spektroskopii*, 10:638-641, 1969.

- [62] Mikhailik V. B., Henry S., Horn M., Kraus H., Lynch A., y Pipe M. Investigation of luminescence and scintillation properties of a ZnS-Ag/⁶LiF scintillator in the 7-295 K temperature range. *Journal of Luminescence*, 134:63-66, 2013.
- [63] Kubota N., Katagiri M., Kamijo K., y Nanto H. Evaluation of ZnS-family phosphors for neutron detectors using photon counting method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 529:321-324, 2004.
- [64] Kouzes R. T. et al. Neutron detection alternatives to ³He for national security applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 623:1035-1045, 2010.
- [65] Barros Haydn. Use of agro-environmental radioactive soil tracers (i.e. ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb) for assessing and managing sedimentation processes impacting reservoirs (VEN/7/004). proyecto nacional de cooperación técnica del organismo internacional de energía atómica, 2012-2013.
- [66] Barros Haydn. Fortalecimiento de las capacidades de la red nacional geocronología para incrementar la oferta de servicios a las empresas e instituciones nacionales y disminuir la dependencia tecnológica del exterior. FONACIT – PEI CFI-703, Octubre 2013.
- [67] Barros Haydn. Evaluation of residence times and water ages in aquifers by means of environmental beta emitter radioisotopes to better understanding and managing water resources. (VEN/7/005). proyecto nacional de cooperación técnica del organismo internacional de energía atómica, 2014-2015.
- [68] Barros Haydn. Diseño y construcción de una herramienta de sondeo gamma espectral para perfilaje estratigráfico de pozos petroleros y aplicaciones en hidrogeología, 2016-2017. Sometido al FONACIT y pre-aprobado por la Dirección de Energía Atómica para ser elevado como Proyecto Nacional de Cooperación Técnica auspiciado por el OIEA.
- [69] Birks J. B. *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. Pergamon Press Ltd., primera edición, 1964.
- [70] Siciliano E. R., Ely J. H., Kouzes R. T., Schweppe J. E., Strachan D. M., y Yokuda S. T. Energy calibration of gamma spectra in plastic scintillators using Compton kinematics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 594:232-243, 2008.
- [71] Stevanato L., Fabris D., Hao X., Lunardon M., Moretto S., Nebbia G., Pesente S., Sajo-Bohus L., y Viesti G. Light output of EJ228 scintillation neutron detectors. *Applied Radiation and Isotopes*, 69:369-372, 2011.

- [72] Dietze G. y Klein H. Gamma-calibration of NE213 scintillation counter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 193:549-556, 1982.
- [73] Green S., Koochi-Fayegh R., y Scott M. An observation on the response of small NE-213 scintillation detectors to high energy neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 431:380-382, 1999.
- [74] Verbinski V., Weber H., y Sund R. E. Prompt gamma rays from $^{235}\text{U}(n,f)$, $^{239}\text{Pu}(n,f)$, and spontaneous fission of ^{252}Cf . *Physical Review C*, 7:1173-1185, 1973.
- [75] Mannhart W. Evaluation of the Cf-252 fission neutron spectrum between 0 MeV and 20 MeV. *Proceedings of the Advisory Group Meeting on Properties of Neutron Sources, Report IAEA-TECDOC-410*, page 158, 1986.
- [76] Bielajew Alex. *Fundamentals of the Monte Carlo method for neutral and charged particle transport*. 2000.
- [77] Salvat F., Fernández J., Acosta E., y Sempau J. *PENELOPE, a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport*. NEA/NSC/DOC(2001)19, 2001.
- [78] Evans Robley D. *The Atomic Nucleus*. McGraw-Hill Publishing Company LTD., Bombay-New Delhi, first edición, 1955.
- [79] Agostinelli S. et al. Geant4 — a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 506:250-303, 2003.
- [80] Allison J. et al. Geant4 developments and applications. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 53:270-278, 2006.
- [81] Pelowitz D. MCNPX User's Manual, version 2.7.0, Los Alamos National Laboratory. *2011LA-CP-11-00438*, 2011.
- [82] Chadwick M. B. et al. ENDF/B-VII.1 Nuclear data for science and technology: Cross 2 sections, covariances, fission product yields and decay data. *Nuclear Data Sheets*, 112:2887-2996, 2011.
- [83] X-5 Monte Carlo Team. *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. Volume I: Overview and Theory*. Los Alamos National Laboratory, 2008.
- [84] Stevanato L., Cester D., Nebbia G., Viesti G., Neri F., Petrucci S., Selmi S., y Tintori C. High rate read-out of *LaBr(Ce)* scintillator with a fast digitizer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 678:83-87, 2012.

- [85] Fallu-Labruyere A., Tan H., Hennig W., y Warburton W. K. Time resolution studies using digital constant fraction discrimination. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 579:247-251, 2007.
- [86] Antcheva I. et al. ROOT — A C++ framework for petabyte data storage, statistical analysis and visualization. *Computer Physics Communications*, 180:2499-2512, 2009.
- [87] Voytchev M., Chiaro P., y Radev R. Development of international standards for instrumentation used for detection of illicit trafficking of radioactive material. *Radiation Measurements*, 44:1-5, 2009.
- [88] Cester D., Nebbia G., Stevanato L., Pino F., Sajo-Bohus L., y Viesti G. A compact neutron-gamma spectrometer. *25th International Nuclear Physics Conference*, Florencia - Italia, 2013.
- [89] Cester D., Nebbia G., Stevanato L., Pino F., Sajo-Bohus L., y Viesti G. A compact neutron-gamma spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 719:81-84, 2013.
- [90] Pino F., Stevanato L., Cester D., Nebbia G., Sajo-Bohus L., y Viesti G. The light output and the detection efficiency of the liquid scintillator EJ-309. *Applied Radiation and Isotopes*, 89:79-84, 2014.
- [91] Cester D., Nebbia G., Stevanato L., Pino F., y Viesti G. Experimental tests of the new plastic scintillator with pulse shape discrimination capabilities EJ-299-33. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 735:202-206, 2014.
- [92] Braizinha B., Esterline J. H., Karwowski H. J., y Tornow W. Determination of the proton and alpha-particle light-response functions for the KamLAND, BC-501A and BC-517H liquid scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 623:1046-1049, 2010.
- [93] Jackson H. y Thomas G. Boron-loaded neutron detector with very low γ -ray sensitivity. *Review of Scientific Instruments*, 36:419, 1965.
- [94] Greenwood L. y Chellew N. Improved (^{10}B) -loaded liquid scintillator with pulse-shape discrimination. *Review of Scientific Instruments*, 50:466, 1979.
- [95] Yi-Fen Y. et al. A high-rate ^{10}B -loaded liquid scintillation detector for parity violation studies in neutron resonances. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 447:476-489, 2000.

- [96] Peerani P. et al. Testing on novel neutron detectors as alternative to ^3He for security applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 696:110-120, 2012.
- [97] Pino F., Stevanato L., Cester D., Nebbia G., Sajo-Bohus L., y Viesti G. Detecting capabilities of the boron loaded liquid scintillator EJ-339A. *10th Latin American Symposium on Nuclear Physics and Applications*, Montevideo - Uruguay, 2013.
- [98] Pino F., Stevanato L., Cester D., Nebbia G., Sajo-Bohus L., y Viesti G. Detecting fast and thermal neutrons with the boron loaded liquid scintillator, EJ-339A. *Applied Radiation and Isotopes*, 92:6-11, 2014.