

TESIS DE LA CARRERA DE
DOCTORADO EN CIENCIAS DE LA INGENIERÍA

**Desarrollo de técnicas de detección de sustancias por
irradiación pulsada de neutrones**

Lic. Aureliano Tartaglione
Doctorando

Dr. Roberto E. Mayer
Director

Dr. César H. Moreno
Co-director

San Carlos de Bariloche
28 de junio de 2009

Instituto Balseiro
Universidad Nacional de Cuyo
Comisión Nacional de Energía Atómica
Argentina

A mis padres y a mis maestros.

Resumen

Los neutrones se han convertido en una popular herramienta para realizar estudios no invasivos en diversas ramas de la ciencia como la física, la biología, la ingeniería de materiales, etc. En la última década se ha incrementado el interés por aplicar este tipo de radiación penetrante en equipos de seguridad portuaria, fronteriza y aeroportuaria, complementando sistemas ya existentes basados en imágenes radiográficas que emplean radiación X y gamma. El principal interés por los neutrones está basado en la posibilidad de realizar detección elemental en grandes contenedores, que permita detectar tráfico ilícito de narcóticos, explosivos, armamento químico, residuos industriales peligrosos y materiales nucleares especiales.

En este trabajo se han empleado neutrones pulsados con energías del rango térmico para realizar experimentos que permitieron estudiar los conceptos de detección elemental por medio de la radiación gamma *prompt* producida por la absorción de neutrones en la materia y la detección de material nuclear especial detectando neutrones instantáneos de fisión y neutrones retardados.

Tanto en la detección por radiación gamma *prompt* como por neutrones de fisión en el caso del material nuclear, se aprovechó el hecho de que la fuente de neutrones fuera pulsada, aplicando técnicas de tiempo de vuelo que permitieron que las técnicas de detección desarrolladas fueran sensibles a la posición de la muestra respecto del detector con resoluciones espaciales de decenas de centímetros.

Los estudios mencionados tienen como fin una aplicación tecnológica concreta en el ámbito de la seguridad y la ingeniería nuclear. Sin embargo, el trabajo también ha dado lugar a estudios básicos en física nuclear empleando un detector de radiación gamma de alta resolución para observar las emisiones que se producen cuando el indio absorbe neutrones de energías en torno a la resonancia que el isótopo de masa 115 de este metal posee en 1,45 eV. El estudio permitió hallar la intensidad de algunas emisiones no informadas con anterioridad en la literatura, contribuyendo de este modo a la base general de datos nucleares.

Palabras clave: Detección no Invasiva de Sustancias, Fuente Pulsada de Neutrones, Tiempo de Vuelo, Gamma "Prompt", Seguridad Fronteriza, Materiales Nucleares Especiales.

Abstract

Neutrons have become an important tool for non-invasive studies in different science and engineering disciplines like physics, biology and material engineering. In the last decade, the interest in using neutrons for border security applications and cargo container scanning has been growing, as a complement of previous X and gamma ray image technology to detect illicit trafficking of narcotics, explosives, industrial pollutants, chemical weaponry and special nuclear materials.

In this work, pulsed thermal neutrons were applied to study the concepts of elemental detection by prompt gamma analysis, and special nuclear materials determination by induced prompt fission and delayed neutrons.

Upon detecting prompt gamma or fission neutrons, the developed techniques take advantage of the pulsed nature of the neutron source by applying time-of-flight methods, to make the elemental (and special nuclear materials) determination, position sensitive with a spatial resolution of a few tens of centimeters.

The mentioned studies have an immediate application to borders security and nuclear engineering. However some basic results have been obtained in the field of nuclear physics. Using a Ge(Li) gamma detector, the relative intensities of prompt gamma lines by epithermal neutrons absorption in indium were determined. The study made possible to observe emissions produced by the absorption of neutrons with energies around the 1.45 eV indium nuclear resonance not reported before in the standard nuclear data tables.

Keywords: Non-Invasive Substance Detection, Pulsed Neutrons, Time-of-Flight, Prompt Gamma, Border Security, Special Nuclear Material

Indice General

| | |
|---|-----------|
| Introducción | 1 |
| 1. Detectores, fuentes de neutrones y técnicas empleadas | 8 |
| 1.1. Detectores de radiación | 8 |
| 1.1.1. Detección de neutrones con ^3He | 9 |
| Detector de neutrones epitérmicos y rápidos | 10 |
| 1.1.2. Detección de radiación gamma | 11 |
| Detector por centelleo en NaI(Tl) | 11 |
| Detector semiconductor de Ge(Li) | 13 |
| 1.2. Fuentes pulsadas | 15 |
| 1.2.1. LINAC del Centro Atómico Bariloche | 17 |
| La técnica de tiempo de vuelo | 19 |
| La electrónica de adquisición | 19 |
| El espectro de neutrones | 21 |
| 1.2.2. Plasma Focus | 23 |
| Fuentes plasma focus en Argentina | 25 |
| Producción neutrónica y anisotropía | 27 |
| 1.3. Fuentes isotópicas | 29 |
| 1.3.1. Fuente de AmBe | 29 |
| 1.3.2. Fuente de ^{252}Cf | 30 |
| 2. Espectroscopia gamma y detección de sustancias | 31 |
| 2.1. Gammas instantáneos y retardados | 31 |
| 2.2. Espectroscopia gamma con fuente de ^{252}Cf | 32 |
| 2.3. Espectroscopia gamma con fuente pulsada | 36 |
| 2.3.1. Gammas <i>prompt</i> de H, Cl, Fe, S y N | 36 |
| 2.4. Conclusiones | 42 |

| | |
|--|------------|
| 3. Detección no invasiva mediante gammas instantáneos: aspectos tecnológicos | 47 |
| 3.1. Combinaciones elementales | 47 |
| 3.2. Blindajes | 53 |
| 3.3. Sensibilidad a la posición | 56 |
| 3.3.1. Experimento realista | 65 |
| 3.4. Conclusiones | 68 |
| 4. Espectroscopia gamma de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ con Ge(Li) | 69 |
| 4.1. Introducción | 69 |
| 4.2. Antecedentes en el tema | 70 |
| 4.3. Experimento y resultados | 71 |
| 4.4. Análisis de resultados | 78 |
| 4.5. Conclusiones | 78 |
| 5. Detección de material nuclear: uranio altamente enriquecido y natural | 79 |
| 5.1. Fisión nuclear por absorción de neutrones | 79 |
| 5.2. Aspectos generales de los experimentos | 81 |
| 5.3. Evaluaciones preliminares | 82 |
| 5.4. Detección de neutrones instantáneos: pruebas de factibilidad | 84 |
| Detección de uranio de alto enriquecimiento | 84 |
| Detección de uranio natural | 92 |
| 5.5. Detección mediante neutrones retardados | 95 |
| 5.6. Conclusiones | 100 |
| Discusión General y Conclusiones | 104 |
| Detección de sustancias por gamma <i>prompt</i> | 104 |
| Espectroscopía de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ | 107 |
| Detección de materiales nucleares | 107 |
| A. Corrección por atenuación de neutrones y gammas en una muestra plana | 110 |
| B. Ajuste de espectros de “tiempo de vuelo” | 113 |
| Bibliografía | 121 |

Introducción

Lo último que uno sabe, es por
donde empezar.

BLAS PASCAL

INTRODUCCION

La capacidad de obtener información acerca del interior de un volumen mediante el empleo de radiaciones de algún tipo es desde hace mucho tiempo materia de investigación y desarrollo por parte de científicos e ingenieros. Los objetivos detrás de los desarrollos son diversos: desde las aplicaciones en la medicina con los sistemas de diagnóstico por imágenes (ecógrafos, tomógrafos, resonadores magnéticos, etc), pasando por la arqueología (georadares), hasta la seguridad de personas y bienes con los sistemas más convencionales como los “scanners” aeroportuarios.

En el mundo actual existen diversas actividades ilícitas relacionadas con el transporte y distribución de sustancias y materiales ilegales. Esas sustancias naturalmente pueden ser de muy diverso tipo pero una clasificación general podría distinguir entre desechos industriales tóxicos y/o contaminantes, drogas ilegales, armamento de diverso tipo y materiales relacionados con la actividad nuclear como fuentes y residuos radiactivos, y material nuclear especial.

Luego de los atentados a las Torres Gemelas en septiembre de 2001, el sistema de transporte marítimo de cargas se transformó en el foco de atención de agencias de seguridad y gobiernos de todo el mundo debido a la posibilidad de que se convirtiera en blanco o vector de futuros ataques terroristas.

Desde los años cincuenta, el intercambio de mercancías por medio de contenedores marítimos estandarizados no ha hecho más que crecer hasta convertirse en el principal medio de intercambio comercial internacional. Se estima que el 90 % del volumen económico del comercio mundial se mueve por este medio [CEPAL, 2006]. En el año 2002 se estimaba que 15 millones de contenedores se encontraban en circulación y, durante el año 2001, 232 millones de contenedores pasaron por los 4000 puertos alrededor del mundo [Crist, 2003]. Los atentados del año 2001 lograron que por primera vez en la historia se cerrara el espacio aéreo norteamericano a la aviación civil. Un atentado coordinado y a gran escala basado en el sistema de transporte marítimo podría literalmente paralizar el comercio mundial y provocar pérdidas de decenas de miles de millones de dólares (58 mil millones sólo en los Estados Unidos) debido al cierre de puertos y los retrasos que todo el sistema podría sufrir hasta que los gobiernos tomaran las medidas de seguridad necesarias. Nuestro país sería uno de los más perjudicados ya que depende en gran medida de sus exportaciones.

Las vulnerabilidades del sistema de cargas marítimas llevaron a que los gobiernos adoptaran medidas que permitieran mitigar los riesgos más inmediatos. Las medidas más generales se negociaron en el ámbito de la Organización Marítima Internacional y se acordó su puesta en marcha desde el año 2004. Muchas de estas medidas son de tipo administrativo, como por ejemplo dar aviso al puerto de arribo de la carga con 96 horas de anticipación, poner en conocimiento de las autoridades el manifiesto de carga con un mínimo de 24 horas antes del arribo a puerto, etc. Sin embargo también

INTRODUCCION

se adoptaron medidas para el control físico de los contenedores. Estados Unidos puso en marcha en el año 2002 la Iniciativa de Seguridad en Contenedores (CSI por sus siglas en inglés) [www.cbp.gov/xp/cgov/newsroom/fact_sheets/trade_security/csi.xml] con la que busca desarrollar acuerdos bilaterales con otros países mediante los cuales se realiza una pre-revisión por algún método tecnológico (imágenes radiográficas o similar) de contenedores de “alto riesgo” en los puertos de carga. Los contenedores también pueden ser revisados al arribar a los puertos norteamericanos. El puerto de Buenos Aires se encuentra desde noviembre de 2007 entre las terminales que operan bajo CSI. Actualmente el 86 % de los contenedores que arriban a Estados Unidos lo hacen bajo CSI.

El propósito principal de CSI en Estados Unidos es la revisión de contenedores para detectar, además de materiales y sustancias ilegales en general, materiales nucleares especiales (*Special Nuclear Materials*), que son aquellos mediante los cuales en mayor o menor medida es posible fabricar un arma nuclear. En otros países el énfasis está puesto en la verificación de manifiestos de carga y la identificación de material de contrabando.

Los sistemas existentes de revisión no intrusiva de contenedores pueden ser de tipo activo o pasivos. Los sistemas pasivos buscan detectar principalmente la radiación gamma que se produce espontáneamente en algunas sustancias con el objetivo de hallar materiales nucleares ocultos, como fuentes radiactivas y, con algunas limitaciones, materiales nucleares especiales. Se presentan como portales de detectores basados en centelladores orgánicos sensibles a gammas y neutrones de alta energía. Sin embargo existen numerosos materiales “benignos” que son naturalmente radiactivos y producen hasta un 99 % de las falsas alarmas en equipos de este tipo (cerámicos, granitos y arena para gatos por citar algunos ejemplos) por lo que su empleo y efectividad real han sido cuestionados [Lipton, 2005; Davis y Waxman, 2006]. Sin embargo se han realizado trabajos de evaluación y mejora de este tipo de sistemas, en los que ha participado la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA) en colaboración con el Centro Austríaco de Investigación de Seibersdorf (ARCS). Tales estudios incluyeron evaluaciones de laboratorio y de campo (prueba de sistemas comerciales en condiciones reales en la frontera Austro-Húngara) en los que se evaluó el desempeño de dispositivos provistos por una decena de fabricantes frente a los estándares establecidos por la IAEA [Schmitzer, 2002].

Dentro de los sistemas activos más populares se encuentran aquellos mediante los cuales es posible obtener una imagen radiográfica de un contenedor completo [Orphan, 2005]. Tales sistemas emplean fuentes de radiación gamma que pueden estar constituídas por una fuente isotópica como ^{60}Co o ^{137}Cs con energías entre 0,661 y 1,332 MeV, o bien aceleradores lineales de electrones (LINACs) que pueden generar

INTRODUCCION

fotones de hasta 10 MeV. Según la fuente de la que se trate se logran mayores grados de penetración, 15-18 cm y 30-40 cm de acero respectivamente. En ambos casos se emplean columnas de centelladores como detectores para componer una imagen radiográfica que permite verificar manifiestos de carga, e incluso distinguir entre regiones por su alta densidad, lo que podría significar la presencia de blindajes deliberados de fuentes radiactivas o materiales nucleares especiales. Incluso existen trabajos en los que se ha logrado por medio del procesamiento de imágenes la descomposición de acuerdo al número atómico de los materiales irradiados [Ogorodnikov, 2002]. Entre otras ventajas de los equipos basados en radiación X o gammas también se encuentra su relativo bajo costo, su tamaño y su aceptación en lugares públicos. Sin embargo la técnica de imágenes de rayos X tiene importantes desventajas como por ejemplo la baja probabilidad de interacción de los fotones con elementos de bajo número atómico como los que forman los materiales orgánicos, incluyendo la mayoría de los explosivos y las drogas ilegales. Por otro lado, la detección se basa en la observación del perfil de los objetos que aparecen en una imagen, lo que también es una desventaja ya que explosivos y drogas pueden ser moldeados para presentar alguna forma que no genere sospechas del operador.

Los métodos neutrónicos para la detección de sustancias ilegales y/o peligrosas, y materiales nucleares especiales en grandes contenedores se encuentran todavía en etapa de desarrollo pero se presentan como una alternativa o un complemento de los sistemas basados en imágenes radiográficas y que por sí solos pueden presentar desventajas frente a la detección de explosivos y narcóticos. En todos los casos se busca emplear la gran penetración de los neutrones en la materia para desarrollar técnicas no invasivas y de detección más selectiva que lo que se podría conseguir con una imagen radiográfica convencional de rayos X o gamma. Entre las técnicas que se proponen para la inspección de equipajes y cargas en general se encuentran: PFNTS (*Pulsed Fast Neutron Transmission Spectroscopy*) [Overley 1987; Overley, 2006], TNA (*Thermal Neutron Analysis*) [Lee, 1995; Smith, 1995], PFNA (*Pulsed Fast Neutron Analysis*) [Gozani, 1994; Brown, 1994; Rynes, 1999] y PFTNA (*Pulsed Fast-Thermal Neutron Analysis*) [Womble, 1995; Vourvopoulos, 2001]. PFNTS se basa en la atenuación de un haz pulsado de neutrones al atravesar el objeto interrogado. TNA, PFNA y PFTNA en cambio permiten la identificación de diferentes elementos químicos mediante la caracterización de la radiación gamma que se produce por la excitación del material interrogado por la absorción de neutrones térmicos (TNA y PFTNA) o por dispersión inelástica de neutrones rápidos (PFNA, PFTNA).

Las técnicas mencionadas están orientadas a la detección de explosivos y narcóticos determinando los porcentajes de, esencialmente, cuatro elementos químicos: hidrógeno, carbono, nitrógeno y oxígeno. En comparación con materiales y sustancias

INTRODUCCION

legales y/o inocuas que poseen los mismos elementos en su composición, los explosivos en general se caracterizan por tener una relativamente elevada proporción de nitrógeno y oxígeno frente al carbono y el hidrógeno. De la misma manera, en los narcóticos se destacan las proporciones de hidrógeno y carbono frente al nitrógeno y el oxígeno [Buffler, 2004]. También existen explosivos como por ejemplo el HTH (hipoclorito de calcio) o el tricloruro de nitrógeno, y narcóticos (cocaína en forma de clorhidrato) en los que es importante la presencia de cloro.

Además de encontrarse en algunos explosivos, el cloro es un componente muy importante de los contaminantes industriales más peligrosos, como los contaminantes orgánicos persistentes o por sus siglas en inglés, POP (*Persistent Organic Pollutants*). Se trata de compuestos orgánicos artificiales cuyo tiempo de degradación es muy largo, aún diseminado en el medio ambiente. Justamente por el hecho de ser compuestos artificiales, no son fácilmente degradados por acción de bacterias y otros organismos. Los POPs suelen tener efectos acumulativos, se almacenan en los tejidos grasos y pueden tener efectos hormonales nocivos en mamíferos. También son semi-volátiles, con lo cual pueden desplazarse grandes distancias por la atmósfera antes de depositarse. Uno de los más conocidos es el PCB (**poli**clorobifenilos), considerado por el Programa de las Naciones Unidas para el medio Ambiente (PNUMA) como uno de los doce contaminantes más nocivos fabricados por el hombre. Otros POPs son el 1,1,1-Tricloro-2,2-bis(4-clorofenil)-etano o DDT (**D**icloro-**d**ifenil-**t**ricloroetano), organoclorado principal de los insecticidas, el 1,2,3,4,5,6-hexaclorociclohexano o Lindano. Las dioxinas son también compuestos que se obtienen a partir de la combustión de compuestos clorados, y en algunas de sus variantes son muy nocivas para la salud humana. Un arma química basada en el ácido 2,4,5-triclorofenoxiacético o más conocida como Agente Naranja fue empleada en la guerra de Vietnam por Estados Unidos y se basa en una dioxina prohibida que tiene efectos plaguicidas y es perjudicial para la salud humana y el medio ambiente. Con el fin de proteger la salud humana y el ambiente se suscribió el Tratado Global de Estocolmo sobre POPs en el año 2004, bajo el Programa de las Naciones Unidas para el Medio Ambiente. Nuestro país es suscriptor del mismo desde el año 2005. Información adicional sobre estas sustancias el lector podrá encontrarla en [<http://www.chem.unep.ch/Pops/default.htm>].

Además del tratado de Estocolmo sobre POPs, la Argentina también ha suscripto el Convenio de Basilea en vigor desde el año 1992. Fue creado para tratar las preocupaciones sobre la gestión, la eliminación y los movimientos transfronterizos de un estimado de 400 millones de toneladas de desechos peligrosos que son producidos mundialmente cada año. Los principios guía del Convenio sostienen que los movimientos transfronterizos de desechos peligrosos deben ser reducidos al mínimo; gestionados de un modo ambientalmente racional; tratados y eliminados lo más cerca posible de la

INTRODUCCION

fuelle que los generó; y ser minimizados en su origen [<http://crsbasilea.inti.gov.ar/>].

Además de la utilidad en la detección de narcóticos, explosivos y contaminantes, los métodos neutrónicos activos también pueden ser de gran utilidad para detectar materiales nucleares especiales. Los principales materiales de este tipo son aquellos físiies, capaces de sostener una reacción en cadena. Pueden ser empleados para liberar energía de fisión como en las bombas de Hiroshima y Nagasaki o también como iniciadores en los modernos dispositivos termonucleares. Los dos más empleados por Estados Unidos y la ex Unión Soviética han sido el uranio y el plutonio de grado armamentístico, también conocidos por sus siglas en inglés WgU (*weapon-grade uranium*) y WgPu (*weapon-grade plutonium*) respectivamente. El WgU contiene un 93,3 % de ^{235}U y el WgPu un 93,3 % de ^{239}Pu . Una cabeza nuclear convencional contiene típicamente entre cuatro y doce kilogramos de material físil, según el tipo [Fetter, 1990].

Si bien existe gran cantidad de armamento nuclear en los arsenales de Estados Unidos, Rusia, Francia e Inglaterra, en muchos medios se cree que el mayor peligro que enfrenta actualmente el planeta no radica en la utilización de esas armas por los gobiernos de los países mencionados sino la posibilidad de que grupos terroristas accedan a los materiales y la tecnología necesaria para crear un dispositivo explosivo de fisión. Según se plantea en [Bunn, 2002], estos grupos no han accedido todavía a artefactos de este tipo por falta de medios pero no por falta de convicciones lo cual convierte el riesgo en un peligro real. La preocupación también a sido planteada desde la IAEA, expresando que el desmantelamiento de armas nucleares es lo que ha resultado en un incremento del material enriquecido usable para armamento. Según este organismo, el desafío se basa en tres pilares: la prevención, la detección e intercepción y la respuesta ante los incidentes de tráfico ilícito [Hoskins, 2002].

En los últimos años se han venido explorando y desarrollando tecnologías que permitan la detección de materiales nucleares especiales en contenedores portuarios. Para prevenir un ataque con armas nucleares es preciso un sistema de medidas internacionales coordinadas entre gobiernos, pero son parte fundamental de este sistema los equipos que empleando técnicas nucleares sean capaces de advertir el transporte ilegal de materiales nucleares especiales en las menores cantidades posibles a través de puertos y fronteras. En [Byrd *et al.*, 2005] se mencionan algunas de las tecnologías disponibles para la prevención de ataques nucleares aunque se reconoce que ningún sistema es 100 % efectivo, ya que un eventual artefacto podría ser detonado incluso antes de descender de un barco causando gran daño si se tratara del puerto de una gran ciudad.

Los sistemas neutrónicos activos en desarrollo para detectar materiales nucleares especiales son variados. Algunos emplean neutrones pulsados de alta energía (60 keV) para inducir fisiones en pequeñas cantidades de ^{235}U blindado y detectar neutrones de

INTRODUCCION

fisión discriminando gammas de neutrones por la forma de los pulsos detectados [Kerr *et al.*, 2007]. Los materiales físi les producen neutrones instantáneos y retardados. Los instantáneos son debidos a las fisiones y se producen durante la irradiación del material en cuestión. En cambio los neutrones retardados tienen su origen en los decaimientos de los productos de fisión luego de la irradiación. Los fragmentos de fisión pueden tener períodos de semi-desintegración desde 0,17 hasta 56 segundos [Keepin, 1957; Waldo, 1981]. Aprovechando la existencia de los neutrones instantáneos y retardados y que sólo pueden provenir de materiales físi les algunos autores han buscado desarrollar técnicas de detección empleando fuentes pulsadas de neutrones para contar neutrones entre pulsos de neutrones incidentes [Moss, 2004, 2005; Jordan, 2007, 2008]. Otros autores también han abordado el problema detectando la radiación gamma que también se produce por las fisiones y los decaimientos de los fragmentos de fisión [Hall, 2007; Church, 2007].

También existen trabajos que en lugar de neutrones emplean radiación gamma de alta energía para inducir fotofisión en materiales nucleares especiales para luego detectar los neutrones producidos [Micklich, 2005; Norman, 2005] e incluso autores que sugieren la utilización de muones generados por la radiación cósmica para obtener radiografías del interior de camiones y contenedores [Priedhorsky, 2003].

La problemática presentada constituye un desafío a la seguridad de las personas, el medio ambiente, los bienes y de los países en general. El tráfico ilícito de explosivos, narcóticos, materiales nucleares y contaminantes industriales constituye un serio inconveniente para el desenvolvimiento normal del comercio internacional en el que nuestro país, por su esquema económico exportador, se encuentra inmerso y del que depende para su funcionamiento. La participación de Argentina en los convenios de Basilea, el Tratado Global de Estocolmo, su rol protagónico en la IAEA y en la Iniciativa de Seguridad en Contenedores con Estados Unidos y Europa, hacen que sea de importancia estratégica el desarrollo propio de tecnologías de seguridad para puertos y fronteras.

En este contexto, en el presente trabajo de Tesis se han realizado las primeras investigaciones y desarrollos en este sentido en el país. Algunos de los resultados han sido expuestos en reuniones internacionales [Mayer *et al.*, 2007] o aceptados para su publicación en revistas internacionales con referato [Tartaglione, Di Lorenzo y Mayer, 2008].

Con respecto a la organización de esta Tesis, en el Capítulo 1 se realiza una descripción general de las fuentes de neutrones empleadas o relevantes para el tema tratado, los detectores y las técnicas empleadas a lo largo del trabajo.

Los Capítulos 2 al 4 tratan sobre la detección de radiación gamma *prompt* empleando fuentes de neutrones isotópicas (primera parte del Capítulo 1) y el LINAC

INTRODUCCION

del Centro Atómico Bariloche como fuente pulsada. Los primeros experimentos realizados y sus resultados se describen en el Capítulo 2. Los desarrollos necesarios para poder detectar radiación gamma al mismo tiempo que la muestra es irradiada se muestran en ese Capítulo así como los primeros espectros de altura de pulsos obtenidos con un detector centellador de NaI(Tl) y un multicanal, para muestras de cloro, hidrógeno, hierro, azufre y nitrógeno.

El Capítulo 3 trata sobre aspectos tecnológicos relacionados con la detección de sustancias por gamma *prompt* con una fuente pulsada de neutrones. Aquí se describen y muestran los resultados de experimentos realizados, orientados a evaluar las posibilidades de la técnica desarrollada para lidiar con mezclas elementales, blindajes y el aprovechamiento del carácter pulsado de la fuente de neutrones para observar cambios en la posición de la muestra irradiada mientras la fuente y los detectores mantienen una posición fija.

El Capítulo 4 aprovecha herramientas de la técnica de tiempo de vuelo y el desarrollo hecho en los capítulos previos para observar gammas *prompt* con una fuente pulsada. El experimento y los resultados que nutren este capítulo han permitido observar la radiación gamma *prompt* que se produce cuando se irradia una muestra de indio produciendo la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$. Por medio de la técnica de tiempo de vuelo se ha podido seleccionar la energía de los neutrones incidentes en la muestra y observar las emisiones gamma como función de esa energía, según se trate de neutrones térmicos o con una energía entorno a la resonancia que el indio tiene en 1,45 eV. Este trabajo permitió validar la técnica implementada en el marco del presente trabajo como así también observar emisiones gamma por absorción de neutrones epitérmicos que no se encontraban en las tablas de datos nucleares, dando lugar a una publicación internacional [Tartaglione, Blostein y Mayer, 2008].

El Capítulo 5 de la Tesis trata sobre desarrollo de técnicas para detectar materiales nucleares empleando una fuente pulsada de neutrones. Se realizaron experimentos en los que se logró determinar la presencia de pequeñas cantidades, del orden de diez gramos, de uranio altamente enriquecido. Los experimentos incluyeron pruebas para probar la factibilidad de hallar este tipo de material en condiciones de blindaje de alto y bajo número atómico, e incluso la sensibilidad a la posición de la muestra. Las pruebas estuvieron diseñadas para evaluar la capacidad de emplear como señal tanto neutrones de fisión instantáneos, como los producidos en forma retardada debidos a decaimientos de los fragmentos de fisión. Además de uranio altamente enriquecido se empleó una muestra constituida por vainas de elementos combustible de una central nuclear, con pastillas de uranio natural sinterizado en su interior. También en ese caso se evaluó la capacidad de detección bajo condiciones de blindaje y situaciones experimentales que asemejaran situaciones reales.

Detectores, fuentes de neutrones y técnicas empleadas

Creo que generalmente se puede decir, que no hay conocimiento alguno en el hombre, el cual no sea mediata o inmediatamente deducido de la Experiencia.

BENITO JERÓNIMO FEIJOO

En este capítulo se describen los distintos tipos de detectores de radiación empleados en la realización del presente trabajo, las fuentes de neutrones pulsadas o isotópicas relevantes en lo que hace al tema investigado y aspectos generales sobre técnicas de medición aplicadas en los distintos experimentos realizados con una fuente pulsada de neutrones.

1.1. Detectores de radiación

La detección de neutrones y radiación gamma es parte esencial de este trabajo. Todos los experimentos que se describen a lo largo de la presente Tesis fueron llevados a cabo empleando detectores comerciales como único detector o como parte de un sistema de detectores.

Se describen las características generales de los detectores de neutrones de ^3He . Un sistema de estos detectores fue empleado en una configuración especial para detectar neutrones de fisión de ^{235}U . Dicho sistema se describe más adelante en el Capítulo dedicado a lo realizado en esa línea de trabajo (Capítulo 5).

En otro apartado de esta sección, se describen los principios básicos de funcionamiento de los detectores de radiación gamma basados en un centellador de NaI(Tl) así como en la interacción de la radiación con un semiconductor de Ge(Li) . En el caso

del centellador, también se empleó un conjunto de estos detectores en una configuración especial que será descrita en el capítulo correspondiente (Capítulo 2).

1.1.1. Detección de neutrones con ^3He

Los neutrones térmicos y epitérmicos solo pueden ser detectados a través de reacciones nucleares intermediarias, las cuales liberan una energía mucho mayor a la energía cinética que traía el neutrón inicialmente [Knoll, 1989]. Por lo tanto la señal entregada por el detector provee información sobre momento en que el neutrón ha sido detectado pero no brinda información acerca de la energía del mismo.

Dado que en algunos de los experimentos se emplearon detectores de neutrones de ^3He , se hará en esta sección una breve descripción del funcionamiento de los mismos y sus principales características.

Los detectores utilizados son marca Texlum y están compuestos por un tubo de acero SS-321 (de un espesor estimado de 0,35 mm) con un diámetro externo de 2,54 cm, 6 pulgadas de longitud activa, relleno con ^3He a 10 atm de presión a temperatura ambiente. Posee un filamento axial, y en régimen de trabajo se establece entre éste y el tubo de acero una diferencia de potencial de 1300 V.

La detección de un neutrón se produce mediante la reacción nuclear



Los productos de esta reacción son partículas cargadas que ionizan el gas, y la avalancha de electrones acelerados hacia el electrodo colector genera un pulso de corriente que indica que se ha absorbido un neutrón. No se obtiene información sobre la energía de éste previamente a ser absorbido, dado que la energía de los neutrones incidentes es muy baja frente la energía de 764 keV liberada (Q de la reacción). La incerteza temporal asociada al proceso de detección es menor que un microsegundo. Si el detector se encuentra colocado directamente en el haz incidente de una fuente pulsada, la energía del neutrón puede ser determinada mediante la técnica de tiempo de vuelo, que será descrita en la sección 1.2.1.

La sección eficaz de la reacción 1.1 está dada por [Mughabghab, 1981]

$$\sigma_r(E)[barn] = \frac{848,239}{\sqrt{E[eV]}}, \quad (1.2)$$

por lo que la eficiencia de detección es una función decreciente de la energía. La eficiencia también depende del camino recorrido por el neutrón dentro del detector así que

será también una función del ángulo de incidencia respecto al eje del cilindro y del punto de ingreso al volumen activo del detector. Para el caso de incidencia normal al eje del cilindro y suponiendo un perfil de haz de intensidad uniforme de ancho igual al diámetro del cilindro, la eficiencia está descrita por la curva de la Figura 1.1 [Dawidowski, 1993].

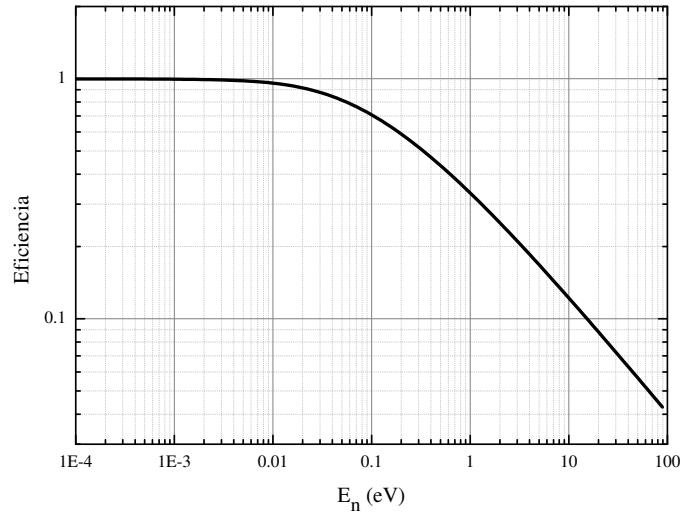


Figura 1.1: Eficiencia de un detector de ^3He en función de la energía para neutrones incidiendo en forma normal al eje del cilindro.

Detector de neutrones epitérmicos y rápidos

Un detector de neutrones de ^3He como el descrito en la sección 1.1.1 posee una alta eficiencia si se trata de detectar neutrones de térmicos. Pero tal como muestra la Figura 1.1 se vuelve ineficiente si se trata de registrar neutrones del rango de energía epitérmico (<40 % si $E_n > 0,55$ eV) o rápido (<10 % si $E_n > 20$ eV).

Existen aplicaciones que requieren la capacidad de detectar neutrones rápidos. Particularmente en este trabajo (Capítulo 5) se llevaron a cabo experimentos para estudiar la factibilidad de detectar la presencia de material nuclear mediante la irradiación de neutrones térmicos y la posterior detección de neutrones *prompt* y retardados por fisión de UAE (Uranio Altamente Enriquecido). Dichos neutrones tienen una energía del orden del MeV (Tabla 5.1) y por lo tanto es preciso utilizar un detector capaz de ser eficiente en ese rango de energías.

El detector de neutrones rápidos utilizado, se basa en los detectores de neutrones de ^3He . Fue construido para trabajos previos a esta Tesis que requerían la detección de neutrones rápidos. Cinco detectores de ^3He se encuentran inmersos en un bloque curvo

de parafina, dentro de sendos orificios de 3,8 cm de diámetro dejando un mínimo de 2,5 cm de parafina por delante de los detectores y no menos de 6 cm por detrás que actúa como reflector de neutrones. Para moderar hasta energías térmicas neutrones del orden del MeV el espesor óptimo es de aproximadamente 4 cm. En este caso el moderador rodea a los detectores y es por eso que su diseño optimizado cuenta con sólo 2,5 cm entre los tubos de ^3He y el frente del detector. El conjunto formado por el bloque de parafina y los detectores se encuentra revestido en cadmio de 0,8 mm de espesor para reducir la chance de detección de neutrones de baja energía no deseados de las inmediaciones (Figura 1.2). Los neutrones que llegan al detector y no son absorbidos por el cadmio ($E_n > 0,55 \text{ eV}$) son termalizados por el hidrógeno presente en la parafina de modo tal que la probabilidad de detección en los tubos de ^3He sea mayor.

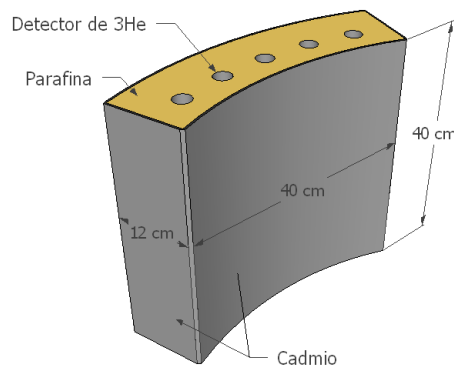


Figura 1.2: Detector de neutrones epitérmicos y rápidos. Cinco detectores de ^3He conectados en paralelo inmersos en un bloque de parafina revestida por cadmio de 1 mm de espesor permiten detectar neutrones de alta energía.

1.1.2. Detección de radiación gamma

Parte del problema explorado en esta Tesis es la detección de sustancias y/o materiales mediante la detección de la radiación gamma que se origina debido a la absorción de neutrones. Por esta razón es relevante introducir las principales características de los detectores de utilizados.

Detector por centelleo en NaI(Tl)

Buena parte de los experimentos de detección de radiación gamma realizados en este trabajo fueron llevados a cabo empleando detectores basados en centelladores

inorgánicos de NaI(Tl) acoplados a fototubos. En todos los casos se trató de conjuntos comerciales de cristales cilíndricos de 2"×2" (diámetro×espesor) acoplados a un fototubo y encapsulados en aluminio de 0,5 mm de espesor. El conjunto centellador-fototubo constituye un cilindro de 18,5 cm de largo y 5 cm de diámetro. La señal de ánodo del fototubo se extrajo hacia un preamplificador externo a través de un cable corto, y de ahí a un amplificador para ser procesada como señal del experimento.

Las primeras mediciones de gamma *prompt* se realizaron empleando un único detector pero posteriormente, a fin de aumentar la eficiencia, en el marco de esta Tesis, se desarrolló un detector constituido por un conjunto de cuatro centelladores acoplados a fototubos y conectados en paralelo en un arreglo lineal dentro de una caja de aluminio (Figura 1.3). La señal de ánodo de cada uno se conectó a un filamento común cuya señal se extrajo a su vez al preamplificador externo mencionado previamente.

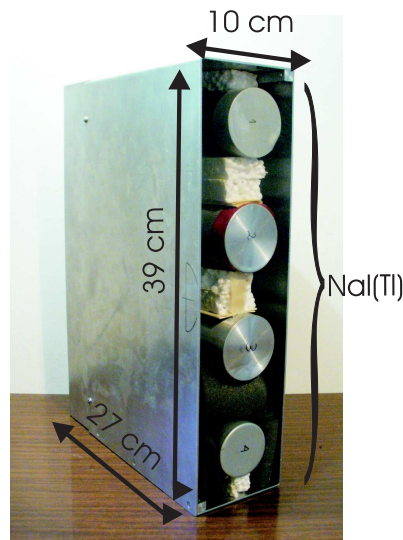


Figura 1.3: Conjunto de cuatro detectores de radiación gamma conectados en paralelo. Cada uno está compuesto por un centellador de NaI(Tl) cilíndrico de 2"×2" (diámetro×espesor) acoplado a un fototubo.

Si bien la alta tensión era provista por una línea común a todos los fototubos (normalmente la tensión aplicada al conjunto era de 840 V) y dado que cada uno fue provisto con su propia cadena resistiva para polarización, contaban a la entrada con un potenciómetro de 10 vueltas, accesible desde el exterior, de manera tal de poder realizar un ajuste fino de la ganancia que permitiera la sintonización del sistema, esto es que un gamma de la misma energía diera como resultado un pulso de la misma amplitud en los cuatro detectores (Figura 1.4).

Un control de sintonización se realizó antes de cada experimento y cuando fue

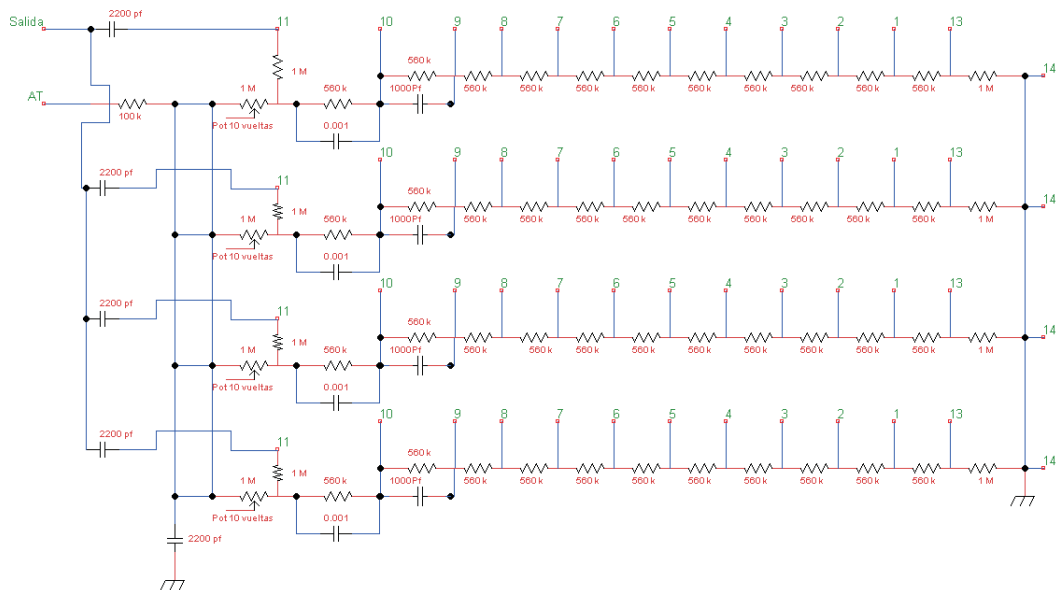


Figura 1.4: Esquema del circuito eléctrico diseñado para el conjunto de cuatro detectores por centelleo en NaCl(Tl). Los números en color verde representan los distintos conectores que se encuentran en la parte posterior de un fototubo.

necesario resintonizar el sistema, se procedió empleando una fuente de calibración de ^{60}Co y un multicanal Canberra Serie 35. Este detector mostró ser suficientemente robusto y rara vez fue necesario repetir una sintonización si el experimento no excedía de la semana de duración, como fue la mayoría de las veces. Un tiempo de dos o tres meses entre un experimento y otro sin emplear este detector, en cambio, requirió de una resintonización aunque aún en ese caso el ajuste fue mínimo, no tomando más de quince minutos poner el sistema a punto para medir.

Detector semiconductor de Ge(Li)

En este apartado se describe brevemente el funcionamiento y características generales del detector de radiación gamma basado en un semiconductor de Ge(Li). Este detector, Canberra modelo 7229, se encuentra en nuestro laboratorio desde el año 1980. Se trata de un semiconductor de Ge(Li) que debe ser mantenido a temperatura de nitrógeno líquido en todo momento, para evitar que el dopante de litio migre fuera de las posiciones atómicas apropiadas dentro de la matriz de germanio y, cuando se encuentra en funcionamiento para lograr una mejor resolución en energía (en comparación con un centellador) que es la principal virtud de este tipo de detectores.

Tiene un volumen activo dado por un cilindro de 2"×2" (diámetro×espesor). La tensión de operación recomendada por el fabricante es de 2800 Volts. Un dedo frío mantiene en contacto el volumen activo con un baño de nitrógeno líquido alojado en un termo de 30 litros de capacidad que se ubica por debajo del detector (Figura 1.5) y que es recargado semanalmente.

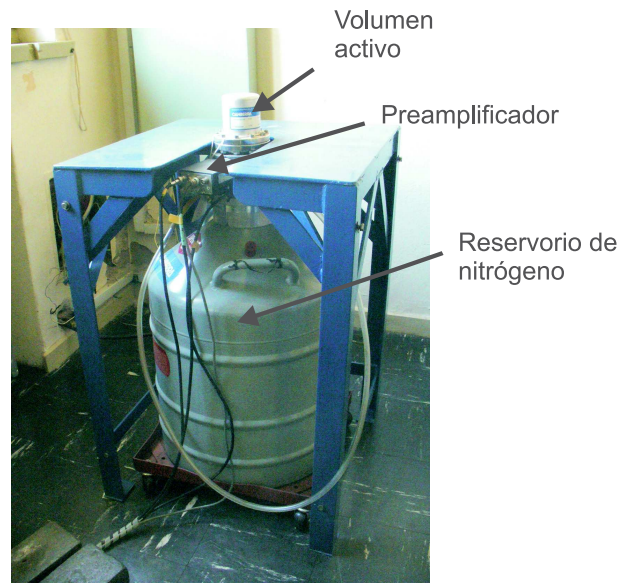


Figura 1.5: Detector de Ge(Li) para radiación gamma. Es mantenido a temperatura de nitrógeno líquido para evitar que el dopante de litio migre de la matriz de germanio y para optimizar su desempeño en términos de resolución en energía.

Este detector fue provisto con una curva de eficiencia absoluta por el fabricante. Dicha curva se obtuvo empleando distintas fuentes de calibración (^{133}Ba , ^{241}Am , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{203}Hg , ^{22}Na y ^{88}Y) a una distancia de 4 cm del volumen activo. Durante el año 2007 se realizaron experimentos de espectroscopía gamma (Capítulo 4), para los que era necesario conocer la forma de dicha curva de eficiencia. Por esta razón se verificó la vigencia de la provista en su momento por el fabricante, relevando algunos valores con una fuente de ^{133}Ba , fabricada por CNEA.

El ^{133}Ba decae por β^- dando lugar a numerosas emisiones gamma cuya intensidad absoluta o *Yield* se encuentra tabulada [Firestone, 1996]. Las emisiones con energías entre 53,161 y 383,851 keV (Tabla 1.1) se emplearon para verificar la validez de la curva de eficiencia proporcionada por el fabricante a menos de una constante multiplicativa.

Al obtener el espectro de altura de pulsos de dicha fuente, el área A correspondiente a cada pico será proporcional al *Yield*, $Y(E_\gamma)$, y a la eficiencia, $\epsilon(E_\gamma)$, que a esa energía

| E_γ [keV] | Y_γ | Error Y_γ |
|------------------|------------|------------------|
| 53,161 | 0,02199 | 0,00022 |
| 80,997 | 0,3406 | 0,0027 |
| 160,613 | 0,00645 | 0,00008 |
| 223,234 | 0,0045 | 0,0004 |
| 276,398 | 0,07164 | 0,00022 |
| 302,853 | 0,1833 | 0,0006 |
| 356,017 | 0,6205 | 0,0019 |
| 383,851 | 0,0894 | 0.0003 |

Tabla 1.1: Tabla que enumera las emisiones gamma de ^{133}Ba empleadas para verificar en algunos puntos la validez de la forma de la eficiencia del detector de Ge(Li). Se indica la energía de cada pico junto con su Yield según se extrajo de [Firestone, 1996].

tenga el detector, siendo entonces:

$$\epsilon(E_\gamma) \propto \frac{A(E_\gamma)}{Y(E_\gamma)}. \quad (1.3)$$

En la Figura 1.6 se muestra un espectro de altura de pulsos normalizado por tiempo vivo de medición (restado ya un fondo medido durante el mismo tiempo), colocando la fuente de ^{133}Ba a 14,3 cm sobre el detector durante 400 segundos. En dicho espectro se indican las emisiones empleadas en la obtención de la eficiencia relativa y se señalan sus energías.

Para obtener la eficiencia relativa, se normalizaron los valores obtenidos de aplicar la expresión 1.3 por el valor obtenido para la energía de 356,017 keV, la emisión más intensa. Del mismo modo se procedió con la curva provista por el fabricante del detector, normalizándola por el valor que dicha curva toma para la misma energía. La comparación entre la curva del año 1980 (renormalizada) y los valores de eficiencia relativa obtenidos en el 2007 para una fuente de ^{133}Ba se muestra en la Figura 1.7.

1.2. Fuentes pulsadas

En esta sección se describen las fuentes pulsadas de neutrones relevantes en lo que respecta a este trabajo. Por un lado el LINAC del Centro Atómico Bariloche porque sirvió como fuente de neutrones para llevar a cabo los experimentos de factibilidad de los conceptos fundamentales abarcados en la presente Tesis. Por otra parte se describe

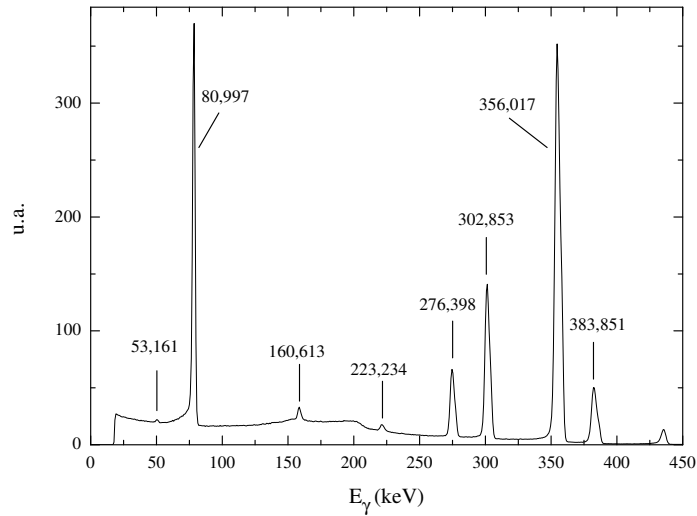


Figura 1.6: Espectro obtenido con el Ge(Li) colocando la fuente de ^{133}Ba a 14 cm sobre el detector durante 400 segundos. En el mismo tiempo se midió un espectro de fondo ya restado del espectro que se muestra.

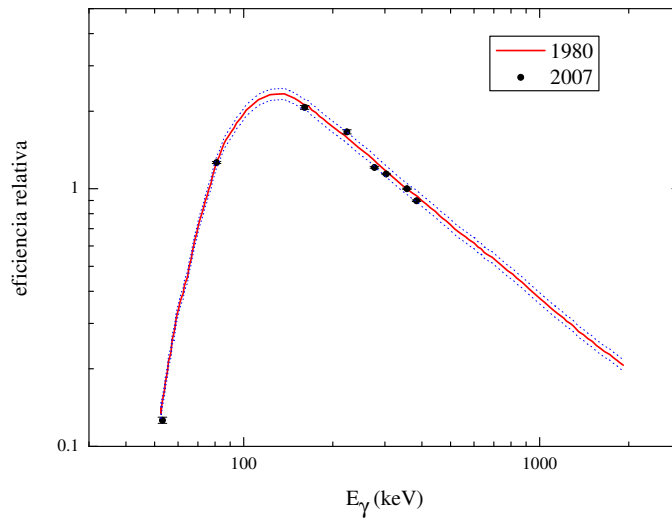


Figura 1.7: Se muestra la eficiencia relativa a la energía de la emisión más intensa de ^{133}Ba a partir de la curva de eficiencia absoluta proporcionada por el fabricante del detector de Ge(Li) en 1980 (línea continua) junto con las bandas de error de $\pm 5\%$. Se compara con algunos puntos de eficiencia relativa obtenidos a partir de medir el área de las emisiones de bario entre 53,161 y 383,851 keV.

brevemente el funcionamiento de un Plasma Focus y se presentan las principales características del mismo como fuente de neutrones debido a que su tecnología es bien conocida en nuestro país y a sus posibilidades futuras como fuente pulsada para la detección no invasiva de sustancias.

1.2.1. LINAC del Centro Atómico Bariloche

Buena parte del trabajo experimental de esta Tesis se realizó empleando la fuente pulsada de neutrones del Laboratorio de Neutrones y Reactores del Centro Atómico Bariloche.

En este caso la producción pulsada de neutrones se basa en un acelerador lineal de electrones (LINAC) que mediante el campo eléctrico generado por una microonda que evoluciona dentro de condiciones de contorno periódicas, acelera paquetes de estas partículas hasta que alcanzan una energía de 25 MeV. Los pulsos de electrones tienen típicamente una duración de $\sim 1 \mu s$ y la frecuencia de pulsado puede variarse según los requerimientos del experimento hasta un máximo de 100 pulsos por segundo (pps). El haz de electrones acelerados incide sobre un blanco de plomo, lo que produce radiación de frenamiento (*bremstrahlung*) que por efecto fotonuclear (γ, n) extrae neutrones de los núcleos de plomo cercanos al lugar de frenado de los electrones.

Los neutrones producidos tienen un espectro de energías de tipo fisión con un valor medio cercano al MeV [Rodríguez Palomino, 2006] por lo que para su uso en este trabajo han tenido que ser moderados. Para ello se los hizo interactuar con un medio hidrogenado constituido por dos placas de polietileno de 2 cm de espesor y 21 cm de lado cada una.

Cuando ingresan al moderador, gran parte de los neutrones rápidos alcanza el equilibrio térmico ($\sim 0,025$ eV) luego de una decena de colisiones con los átomos de hidrógeno del medio. Si el moderador es lo suficientemente extenso, a la salida del mismo el espectro de energías puede ser descripto por una distribución de Maxwell con su máximo ubicado en un valor próximo a la temperatura del moderador, además de una componente epitérmica [Beckurts, 1964].

El acelerador se encuentra dentro de una sala (*bunker*) cuyas paredes de 1 metro de espesor de hormigón constituyen el blindaje apropiado para mantener las radiaciones en niveles aceptablemente bajos para el personal en el resto del edificio durante la operación de la máquina. Respecto a la seguridad radiológica, sus condiciones de operación se encuentran regidas y supervisadas conforme a las normas establecidas por la Autoridad Regulatoria Nuclear de nuestro país. En la Figura 1.8 se muestra un esquema del acelerador en el *bunker* y los espacios relacionados más inmediatos.

El conjunto blanco-moderador que constituye, en sí, la fuente de neutrones se encuentra ubicado dentro de un recipiente cilíndrico hueco cuya pared de 10 cm de es-

pesor de agua liviana y cubierta exterior de cadmio constituye para los neutrones producidos lo que se denomina el blindaje biológico (Figura 1.9). Este blindaje además, reduce la contribución debida a neutrones de fondo en diversos experimentos.

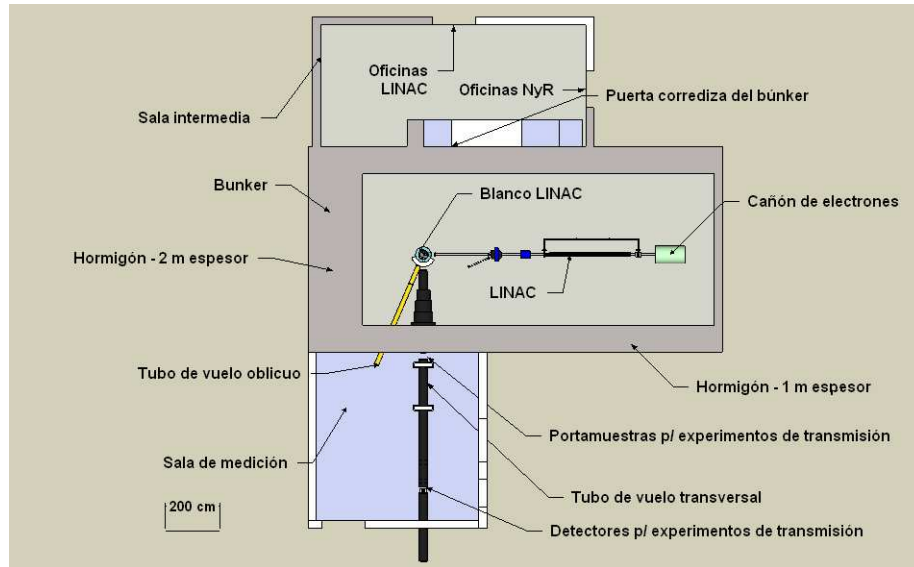


Figura 1.8: Vista superior del bunker del LINAC, sala de medición y sala intermedia.

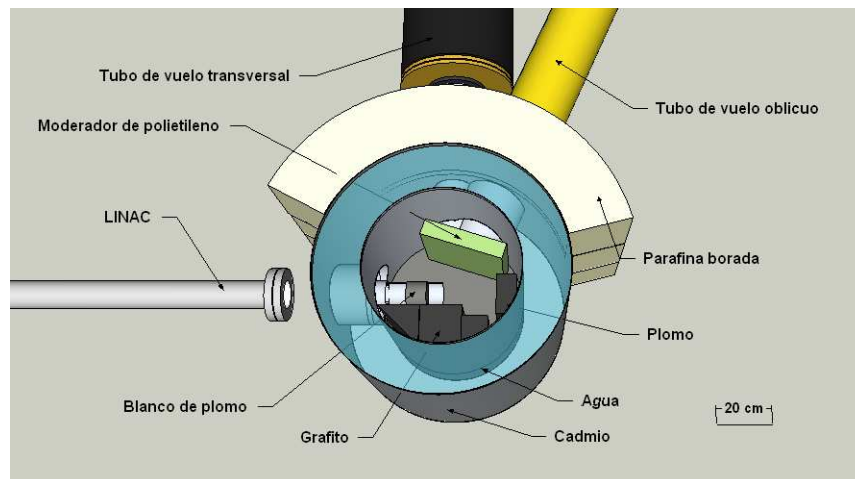


Figura 1.9: Detalle del blanco de plomo y zona próxima al mismo.

Dentro del *bunker* se encuentra colocado un fototubo, que detecta la radiación de frenamiento de los electrones en el blanco de plomo en cada disparo del LINAC. La

señal se denomina “ γ -flash” y define el tiempo $t=0$ para los diversos instrumentos que emplean la técnica de tiempo de vuelo.

Existen fluctuaciones normales en la producción de neutrones, por esa razón se utiliza un detector de neutrones de ^3He como detector de referencia/monitor que se encuentra ubicado en la parte externa de la pared del *bunker*, en el espacio denominado Sala Intermedia.

La técnica de tiempo de vuelo

Algunos de los resultados experimentales del presente trabajo fueron obtenidos empleando la técnica de tiempo de vuelo (TDV). La misma consiste en registrar en un espectro el número de neutrones o gammas detectados en función del tiempo transcurrido desde el disparo del acelerador (señal de γ -flash tomada como $t=0$). La frecuencia de pulsado del LINAC puede variarse entre 12,5 y 100 pps. El mínimo ancho temporal de los canales del espectro es de $2 \mu\text{s}$, el cual está dado por la tarjeta de adquisición Canberra Accuspec instalada en una PC, que realiza la codificación de tiempos.

La electrónica de adquisición

Se han empleado tanto detectores de radiación gamma como de neutrones. En ambos casos lo que se produce a la salida del conjunto detector-preamplificador es un pulso que debe ser amplificado, conformado, y discriminado según las necesidades antes de ser sumado como un evento válido en el espectro. La Figura 1.10 muestra un esquema de la electrónica utilizada en los experimentos. Se han identificado con tres colores la señal proveniente del experimento (rojo), del γ -flash (verde) y del monitor (azul).

En el caso de los detectores de neutrones, tanto del experimento como del monitor, la amplificación de la señal se realiza en dos etapas. La primera es llevada a cabo por un preamplificador conectado directamente al tubo de ^3He y a través del cual se transmite también la alta tensión al detector. El mismo es ubicado lo mas cerca posible del detector con el objeto de reducir el ruido electromagnético. Para los detectores de radiación gamma, la diferencia principal es que la alta tensión del detector no pasa por el preamplificador. En ambos casos, la señal producida por el preamplificador es transportada a la sala de control, en donde se hallan los restantes instrumentos que forman la línea de adquisición. Empleando electrónica NIM convencional, esta señal es amplificada (AMPL) y posteriormente discriminada por altura de pulso (TSCA), a fin de filtrar aquellos pulsos originados en sucesos espurios.

Para tiempos muy próximos al disparo del acelerador, un flujo muy grande de neutrones de alta energía y gammas producen la saturación de la electrónica de adquisición

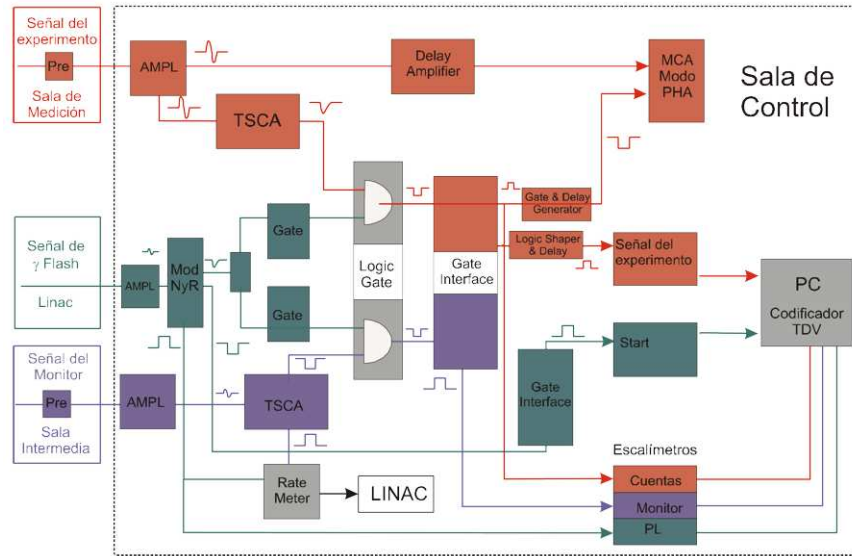


Figura 1.10: Diagrama de la electrónica asociada a un experimento empleando el LINAC como fuente de neutrones. La señal de experimento puede provenir de un detector de neutrones o gammas. Los pulsos pueden ser discriminados según su amplitud y luego obtener con ellos un espectro de tiempo de vuelo al mismo tiempo que un espectro de altura de pulsos de dichos eventos es obtenido empleando un multicanal Canberra Serie 35.

durante algún tiempo. Por esta razón, las señales del experimento y del monitor son habilitadas sólo durante ciertos períodos de tiempo a partir de la llegada del γ -flash. Esta habilitación se realiza mediante una coincidencia lógica (*Logic Gate*) de estas señales con niveles lógicos producidos a partir de la señal del γ -flash. Dichos niveles son generados por dos módulos *Gate Generator*, que permiten definir el tiempo de inicio y la duración de la habilitación. Los pulsos lógicos resultantes de la coincidencia son conformados y posteriormente distribuidos a distintos dispositivos responsables de su procesamiento. La señal del experimento es ingresada a un codificador de tiempo de vuelo, encargado de construir el espectro en TDV, usando la señal del γ -flash como $t = 0$ (Start), el cual se encuentra instalado en la PC de adquisición. Todas las señales (experimento, monitor, γ -flash) son ingresadas en contadores que muestran en tiempo real el número de pulsos registrado en cada caso (Escalímetros). Estos escalímetros pueden ser leídos y comandados desde la PC de adquisición. Por último, la señal proveniente del experimento es ingresada en un multicanal (MCA Modo PHA) obteniéndose el espectro en altura de pulsos de las señales admitidas por el discriminador durante los períodos de tiempo habilitados. Esto permite tomar conocimiento acerca de even-

tuales apariciones de ruido en las mediciones basadas en la detección de neutrones, y en el caso de estar adquiriendo espectros de radiación gamma se transforma en la herramienta principal para realizar espectroscopía gamma.

El espectro de neutrones

Si se coloca un detector directamente en el haz incidente a una distancia L de la fuente, y un neutrón de energía E_0 es detectado, este será registrado a un tiempo t dado por

$$t = \sqrt{\frac{m}{2E_0}} L + t_R, \quad (1.4)$$

donde t_R es el retardo electrónico, propio de los detectores y de la electrónica posteriormente empleada tanto en el procesamiento de la señal del neutrón como de la señal de γ -flash. Hay que mencionar que la distancia L tiene dos contribuciones, una es la distancia real moderador-detector y otra que tiene en cuenta el tiempo medio de emisión de los neutrones que emergen del moderador [Blostein, 2004]. La última ha sido despreciada en este caso.

De esta forma el espectro de energías incidentes $\Phi(E_0)$ de los neutrones que llegan al detector está relacionado con la distribución en tiempos $\varphi(t)$ de estos neutrones mediante

$$\Phi(E_0)dE_0 = \varphi(t)dt. \quad (1.5)$$

Evaluando el Jacobiano a partir de la Ec. 1.4 resulta

$$\Phi(E_0) = \varphi(t(E_0)) \frac{\sqrt{m} L}{(2E_0)^{\frac{3}{2}}}. \quad (1.6)$$

La magnitud determinada experimentalmente es el número de neutrones detectados en función del tiempo de vuelo, y será notada $N(t)$. Para obtener la distribución en tiempo de los neutrones que arriban al detector $\varphi(t)$ a partir de $N(t)$ es necesario tener en cuenta la eficiencia de detección, de la misma manera que es preciso descontar los neutrones debidos al fondo ambiente, es decir aquellos neutrones detectados provenientes de direcciones distintas a la del haz incidente. La contribución debida al fondo $N_{fon}(t)$ puede ser estimada colocando en el haz un grueso tapón de polietileno y cadmio, desplazando del haz el detector o bien (a ciertas energías) colocando en el haz algún material que capture todos los neutrones para alguna energía o rango de energías

(por ejemplo cadmio o indio). Para ritmos de contaje elevados el efecto de pérdidas en el contaje debidas al tiempo muerto en el sistema de detección puede ser significativo, por lo tanto $N(t)$ (y eventualmente también $N_{fon}(t)$) deben ser corregidos por tiempo muerto, tal como se muestra en [Dawidowski, 1986]. Teniendo en cuenta estas correcciones, la distribución en tiempo $\varphi(t)$ puede ser obtenida mediante

$$\varphi(t) = \frac{\tilde{N}(t) - \tilde{N}_{fon}(t)}{\varepsilon(E_0(t))}, \quad (1.7)$$

donde $\varepsilon(E_0(t))$ es la eficiencia de la detección (Figura 1.1) y \tilde{N} los espectros ya corregidos. Luego reemplazando 1.7 en 1.6 se obtiene el espectro incidente en función de la energía.

Empleando un detector de neutrones de ${}^3\text{He}$ como el descrito en la sección 1.1.1 se caracterizó el espectro de neutrones del LINAC. Para ello el acelerador fue operado a 100 pps, a una corriente media de electrones $\sim 25 \mu\text{A}$. El moderador consistió en dos placas o *slabs* acoplados de polietileno de 21 cm de lado y 2 cm de espesor cada uno dispuestos casi en contacto con el blanco de plomo. Para minimizar los efectos de tiempo muerto en el detector se utilizó un colimador de 0,67 cm de diámetro en el haz. Se obtuvieron los espectros de tiempo de vuelo a 600 y 700 cm del moderador y se calculó la intensidad en función de la energía mediante las ecuaciones 1.5, 1.6 y 1.7 (Figura 1.11).

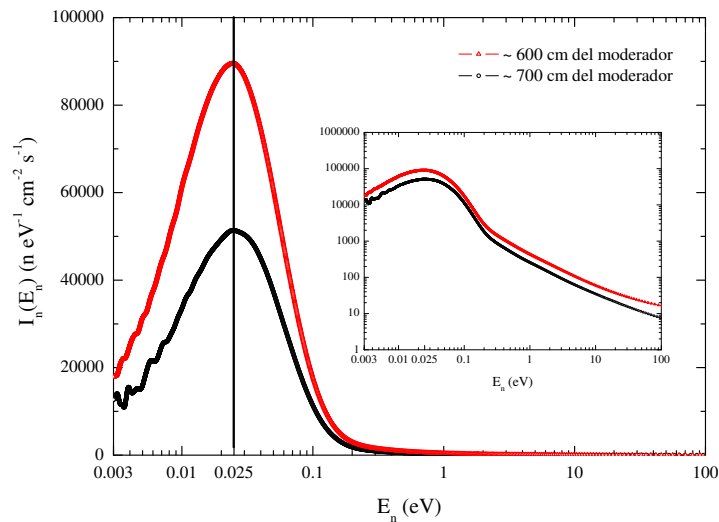


Figura 1.11: Espectros de neutrones a 600 y 700 cm del moderador. El LINAC se operó a 100 pps y $25 \mu\text{A}$ empleando como moderador 4 cm de polietileno.

Empleando un filtro de cadmio se determinó el canal de tiempo de vuelo a partir del

cual los neutrones tienen una energía tal que son completamente absorbidos y el espectro se iguala con el espectro de fondo ambiente (0,4 eV). De esta forma se pudo integrar el espectro de tiempo de vuelo y determinar la intensidad de neutrones en el rango térmico y epitérmico con que fueron irradiadas las muestras. A 600 cm del moderador en las condiciones descritas se tienen aproximadamente $4,2 \times 10^3 \frac{n}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$ y $1,9 \times 10^3 \frac{n}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$ neutrones térmicos y epitérmicos respectivamente, mientras que a 700 cm del moderador estas intensidades son de $2,5 \times 10^3 \frac{n}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$ y $1,2 \times 10^3 \frac{n}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$.

1.2.2. Plasma Focus

Se denomina plasma al estado que alcanza un gas cuando una parte importante de sus átomos se encuentra ionizada debido, por ejemplo, a la alta temperatura de ese gas, o a la acción de intensos campos eléctricos externos. Por extensión, la materia que se encuentra en dicho estado recibe también el nombre genérico de plasma [Bittencourt, 2003; Milántiev and Temkó, 1987]. La evolución libre del plasma conlleva en general a su enfriamiento y extinción como tal, como consecuencia de que los electrones libres existentes en el seno del plasma son capturados nuevamente por los iones presentes en el mismo.

Existen dispositivos que permiten generar un plasma en el Laboratorio y mantenerlo confinado durante cierto tiempo. Entre estos dispositivos se encuentran los denominados plasma focus. En este tipo de equipos, un banco de capacitores empleado para almacenar energía electrostática, es descargado sobre un par de electrodos inmersos en un medio gaseoso. Si la geometría de los mismos y la presión de trabajo son las adecuadas, el plasma generado por la descarga eléctrica evoluciona desde su formación, en la que se comporta como un plasma tenue, hasta que se produce una violenta auto-compresión del mismo, debido a la acción de intensos campos magnéticos generados por la propia corriente de descarga. Como consecuencia de dicha compresión, la densidad y temperatura del plasma alcanza valores suficientemente elevados como para favorecer procesos de fusión nuclear, cuando el gas empleado es deuterio o una mezcla de deuterio-tritio. Debido también a su alta densidad y temperatura, este plasma emite radiación electromagnética en un amplio espectro, que abarca desde el visible hasta los rayos x.

Poco tiempo después de su descubrimiento, los dispositivos plasma focus fueron intensamente estudiados como generadores de reacciones de fusión nuclear de deuterio. En los años 60, Filippov en la ex Unión Soviética [Filippov *et al.*, 1962] y Mather, en los Estados Unidos [Mather, 1964], fueron los primeros en concebir estos equipos como tales generadores, y en impulsar su desarrollo con miras a la eventual producción de energía por fusión nuclear.

En los diseños de Mather y Filippov, un banco de capacitores es descargado sobre

un par de electrodos cilíndricos y concéntricos, separados en su base por un aislante, y sumergidos en un gas a baja presión (del orden del mbar).

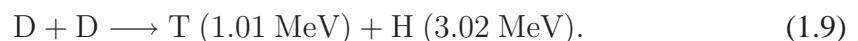
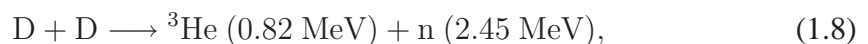
En términos generales puede describirse el funcionamiento de un plasma focus del siguiente modo: un pulso de alta tensión (> 10 kV) es aplicado sobre los electrodos, produciendo la ruptura dieléctrica del gas en el que están inmersos, generalmente deuterio (D_2) si como resultado de la operación del equipo se desea obtener neutrones, lo que da lugar a la formación de una lámina de corriente eléctrica (plasma) que inicialmente fluye sobre la superficie del aislante, si los parámetros de diseño y operación del equipo son los adecuados [Bruzzone and Vieytes, 1993].

Dicha corriente interactúa con el campo magnético por ella generado, produciendo el movimiento de la lámina en el sentido axial hacia el extremo libre de los electrodos, con velocidades típicas comprendidas entre 1 y 10 cm/ μ s. Al llegar al extremo de los electrodos, la misma comienza a realizar un movimiento radial convergente que da lugar a la formación de una columna de plasma con simetría cilíndrica, que finalmente colapsa frente al extremo del electrodo interno sobre el eje de simetría de los electrodos, produciendo lo que se denomina foco de plasma.

El foco ocupa una región cilíndrica de aproximadamente 1 cm de longitud y radio del orden de 1 mm, en donde el plasma alcanza temperaturas y densidades típicas comprendidas en los rangos 1 keV-10 keV (1 eV equivale a 11 604 °K) y 10^{18} - 10^{19} partículas/cm³, respectivamente.

Debido a su naturaleza intrínsecamente inestable, caracterizada por el desarrollo de inestabilidades magnetohidrodinámicas, turbulencia y fenómenos de competencia entre la presión magnética y térmica, la existencia del foco como tal se ve habitualmente limitada a intervalos de ~ 100 ns de duración, luego de los cuales el foco de plasma se disgrega. Todo el proceso que se inicia con la aplicación de tensión sobre los electrodos y culmina con la focalización del plasma, puede tener una duración típica de 1 a 10 μ s, dependiendo de los parámetros de construcción del equipo. La Figura 1.12 ilustra la geometría de un plasma focus tipo Mather y las etapas de formación, evolución y focalización de la lámina de corriente.

En las condiciones del foco mencionadas, se ve muy favorecida la interacción entre los iones, lo que puede dar lugar a reacciones de fusión entre los mismos con producción de neutrones. En particular, si el gas de llenado es deuterio, dos reacciones son posibles con igual probabilidad:



Si en cambio se utiliza una mezcla de deuterio y tritio, se puede producir además la reacción:

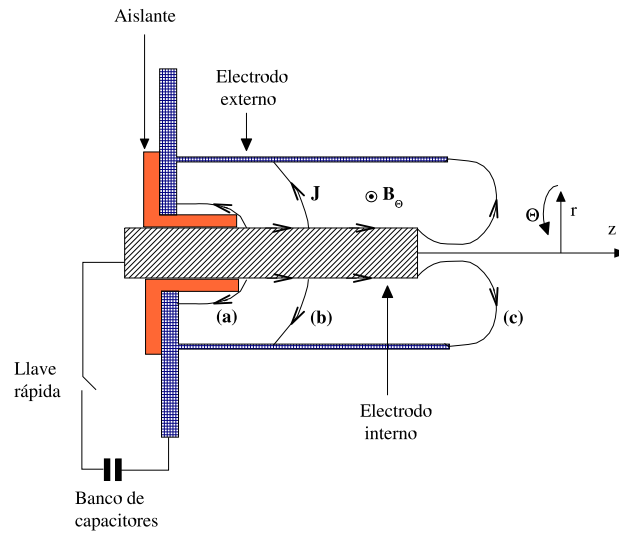
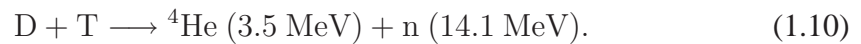


Figura 1.12: La figura muestra la geometría de un plasma focus tipo Mather y un esquema simplificado del circuito eléctrico. También se ilustra en forma aproximada, la forma que adopta la lámina de corriente durante las etapas de formación (a), evolución (b) y focalización (c) sobre el eje de simetría del sistema.



Para finalizar esta breve reseña de los procesos que ocurren durante la operación de un equipo plasma focus, cabe mencionar que además de las radiaciones neutrónica y electromagnética ya mencionadas, desde el foco se emiten también haces energéticos de iones y electrones. El lector interesado en conocer más detalles del funcionamiento de estos dispositivos puede consultar, entre muchos otros, los trabajos de Mather (1971), S Lee (1989) y Pouzo (1979).

Fuentes plasma focus en Argentina

Uno de los equipos plasma focus en funcionamiento en nuestro país se denomina GN1 y se encuentra montado en el Laboratorio Plasma Focus del Instituto de Física del Plasma (CONICET), en el ámbito del Departamento de Física de la Facultad de Ciencias Exactas y Naturales de la Universidad de Buenos Aires. Si bien no es el único en el país, la reseña se refiere a este equipo en particular debido a que el autor ha realizado en el pasado la caracterización del mismo y empleado los neutrones producidos con fines experimentales [Tartaglione, 2004].

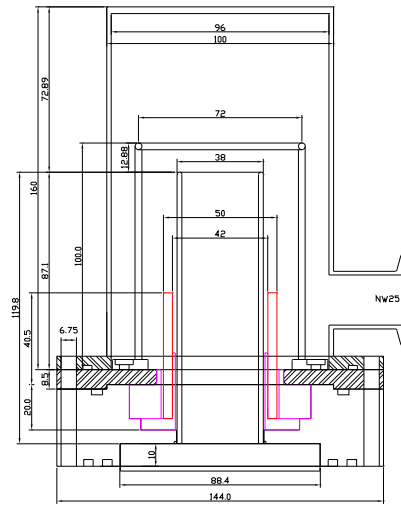


Figura 1.13: Corte longitudinal del juego de electrodos, base y carcasa de la cámara de descargas del GN1. Las longitudes están expresadas en mm [Tartaglione, 2004].

El dispositivo es de tipo Mather y consta de una cámara de descargas cilíndrica, de acero inoxidable, que alberga en su interior dos electrodos que son cilíndricos, coaxiales entre sí y con la cámara. Lateralmente, a la altura de su base, la cámara cuenta con una toma norma NW25 que permite realizar vacío y también el ingreso de gases. El electrodo interno (ánodo), es un tubo de pared maciza de cobre de alta conductividad libre de oxígeno (OFHC), de 87 mm de longitud medida desde la base de la cámara, cuyos diámetros interno y externo son de 34 mm y 38 mm, respectivamente. El electrodo externo (cátodo) es de bronce y está compuesto por doce varillas cilíndricas de 3 mm de diámetro y 100 mm de longitud, cuyos ejes, paralelos al de la cámara, se disponen equiespaciadamente sobre una circunferencia de 72 mm de diámetro. Las varillas están soldadas por uno de sus extremos a una pieza de bronce que está en contacto con la base de la cámara, y por el otro, a un anillo del mismo material. En su base, ambos electrodos se encuentran aislados eléctricamente por un vidrio Pyrex templado cilíndrico, coaxial con los electrodos, de 42 y 50 mm de diámetro interno y externo respectivamente, y 32 mm de longitud medida desde la base del cátodo (longitud libre). La Figura 1.13 muestra un corte longitudinal de la cámara, los electrodos y el aislante descriptos, este último se ilustra en color rojo.

Un conjunto de 18 capacitores de alta tensión marca Maxwell (modelo 31161, de $0.7 \mu\text{F}$, 50 kV y 20 nH de inductancia espúrea serie equivalente cada uno) conectados en paralelo y dispuestos en tres módulos de seis capacitores cada uno, proveen al sistema de la energía necesaria para la formación, evolución y colapso de la lámina de

| | |
|-----------------------------|-------------------------------|
| Capacidad del banco | $(12.6 \pm 0.3) \mu\text{F}$ |
| Tensión de trabajo | $(30.0 \pm 0.1) \text{kV}$ |
| Inductancia espúrea | $(39 \pm 5) \text{nH}$ |
| Diámetro externo del ánodo | $(38.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Diámetro medio del cátodo | $(72.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Longitud efectiva del ánodo | $(55.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Longitud del cátodo | $(100.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Longitud de la cámara | $(157.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Longitud libre del aislante | $(32.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Espesor del aislante | $(4.00 \pm 0.02) \text{mm}$ |
| Material del aislante | Vidrio Pyrex templado |

Tabla 1.2: *Parámetros del equipo GN1.*

corriente según se describió en la sección 1.2.2. Cada módulo está controlado por una llave gaseosa de descarga rápida (también denominada spark-gap), Maxwell modelo 40065, capaz de operar a una tensión de trabajo comprendida entre 25 y 100 kV. En cada módulo, una placa colectora de aluminio conecta, mediante la correspondiente llave, a los capacitores del mismo con los electrodos de la cámara del plasma focus, por medio de una línea de transmisión formada por seis cables coaxiales de 57 cm de longitud (uno por cada capacitor). La placa colectora posee sus bordes redondeados para disminuir todo lo posible los efluvios que se producen al operar con altas tensiones y que se deben al efecto punta. En la Tabla 1.2 se resumen los valores de los principales parámetros geométricos y eléctricos del GN1.

El equipo GN1 ha sido caracterizado en el pasado como generador de neutrones, entre otros por este tesista. Se presentarán aquí directamente los resultados [Tartaglione, 2004] de producción neutrónica en función de la presión de llenado de deuterio y anisotropía en la emisión neutrónica. Los detalles de realización de tales investigaciones pueden ser obtenidos en la referencia citada.

Este equipo también ha demostrado su utilidad como emisor de rayos X duros para aplicaciones. La corta duración del pulso y la energía de la radiación X permite obtener radiografías de objetos ocultos en metal e imágenes de dispositivos en movimiento [Raspa, 2004,2008].

Producción neutrónica y anisotropía

La producción neutrónica en función de la presión de gas de llenado (deuterio) y la anisotropía de emisión de neutrones del GN1 se estudiaron empleando detectores de

neutrones basados en el método de plata activada [Lanter y Bannerman, 1966].

Los resultados de producción en función de la presión son los que se muestran en la Figura 1.14. De acuerdo a la calibración de los detectores utilizados [Delellis, 1976], para la Figura 1.14 se debe considerar que el GN1 produjo $2,6 \cdot 10^5$ neutrones por cada cuenta registrada en el detector. En otras palabras podemos decir que este equipo es capaz de producir, en promedio, un máximo de $4 \cdot 10^8$ neutrones por disparo si es operado con deuterio a 4 mbar.

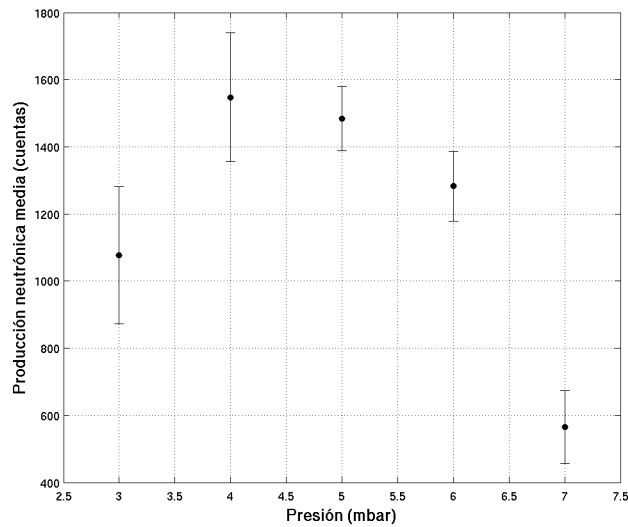


Figura 1.14: Producción neutrónica media en función de la presión de llenado de deuterio [Tartaglione, 2004].

Para estudiar la anisotropía en función de la presión se emplearon dos detectores que medían en forma simultánea, colocados a 60 cm del lugar estimado de ocurrencia de la focalización de la lámina de plasma. Unos de los detectores se colocó sobre el eje de simetría de la cámara mientras que el otro (detector de referencia) se ubicó a 90° del primero, a un lado de la cámara ya que la anisotropía se define como:

$$\text{Anisotropía} = \frac{N_{0^\circ}}{N_{90^\circ}}, \quad (1.11)$$

donde N_{0° y N_{90° son los neutrones emitidos desde el foco a 0° y 90° respecto del eje de simetría de los electrodos.

Según se observa en la Figura 1.15 el GN1 emite un 40% más neutrones hacia adelante que hacia los lados si se asume que existe simetría cilíndrica en la emisión.

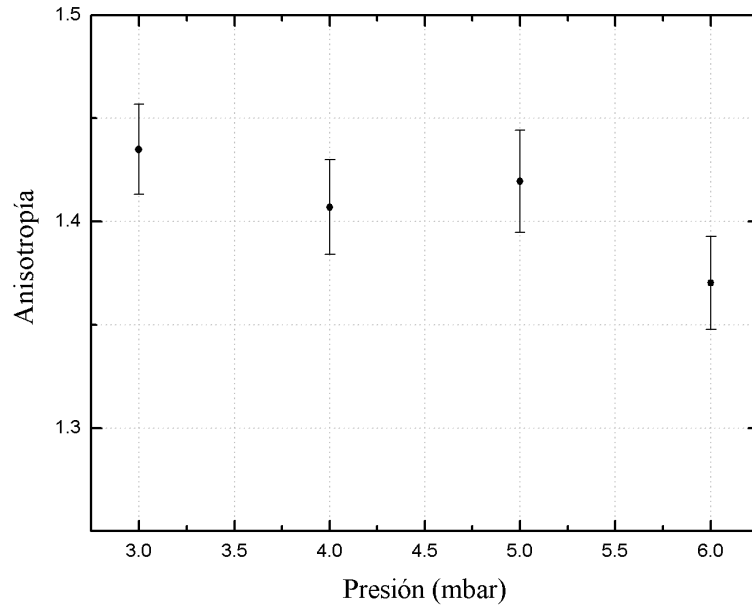


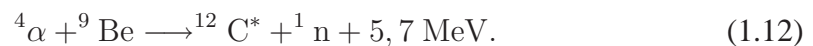
Figura 1.15: Anisotropía de la producción en función de la presión de llenado [Tartaglione 2004].

1.3. Fuentes isotópicas

Si bien el tópico de la presente Tesis es la detección de sustancias empleando neutrones de una fuente pulsada, a lo largo de su desarrollo se han empleado también fuentes isotópicas. Se describen brevemente en esta sección las fuentes con las que cuenta nuestro laboratorio y sus características principales.

1.3.1. Fuente de AmBe

La emisión de neutrones de una fuente de AmBe se produce a partir de una reacción (α, n), donde las partículas alfa son originadas a partir del decaimiento espontáneo del ^{241}Am que son capturadas por los núcleos de berilio dando lugar a la reacción:



Los neutrones emitidos por esta fuente són rápidos, del orden de 4 MeV de energía promedio. Existen publicaciones sobre el espectro energético de los neutrones emitidos que el lector interesado puede consultar [Marsh 1995, Lorch 1973].

la fuente de AmBe es a su vez una importante fuente de radiación gamma de alta

energía ya que el decaimiento del $^{12}\text{C}^*$ produce una emisión de 4,44 MeV, razón por la cual no sería muy recomendable para ser aplicada como fuente de neutrones destinados a producir una respuesta gamma *prompt*, puesto que el espectro final obtenido contendría una importante contribución en su fondo proveniente de la misma fuente de neutrones, no solo por la presencia de un importante pico en 4,44 MeV sino además con el agravante de producir en cualquier detector gamma picos de simple y doble escape debidos a la creación de pares electrón-positrón por la alta energía del gamma involucrado además de un importante número de cuentas por efecto Compton que reduciría notablemente la relación señal-ruido para la mayoría de los gammas *prompt* de interés.

Este tipo de fuentes se fabrican sinterizando y encapsulando, generalmente en acero inoxidable doble capa, una mezcla de polvos de óxido de americio y berilio metálico. En nuestro laboratorio se cuenta con una fuente de este tipo donde la cápsula cilíndrica de acero tiene aproximadamente 1 cm^3 y tiene al día de la fecha una tasa de emisión de neutrones de $2,4 \cdot 10^6\text{ n/s}$, debidos a 1 Ci alfa de actividad del americio.

La fuente de AmBe fue empleada como fuente de calibración gamma. Como se verá en el Capítulo 2, fue preciso el ajuste de la amplificación de la señal proveniente de los centelladores de NaI(Tl) para la observación de gammas *prompt* de alta energía del hierro (hasta $\sim 8\text{ MeV}$) y/o el nitrógeno (hasta $10,9\text{ MeV}$). Para la calibración energía-canal del sistema en esos casos era necesario contar con una fuente gamma de mayor energía que la usual (^{60}Co tiene emisiones en 1,17 y 1,33 MeV) por lo que se utilizó la emisión mencionada de 4,44 MeV proveniente del $^{12}\text{C}^*$ y sus picos de simple y doble escape. La fuente se encuentra normalmente dentro de un cilindro de parafina a modo de blindaje biológico para los neutrones de alta energía. Los neutrones absorbidos en el hidrógeno del blindaje dan lugar a un gamma *prompt* de 2,22 MeV.

1.3.2. Fuente de ^{252}Cf

Nuestro laboratorio también cuenta desde el año 1994 con una fuente de neutrones de ^{252}Cf . La misma emite neutrones por fisión espontánea del ^{252}Cf , que posee una vida media de 2,65 años. El tamaño es similar a la fuente de AmBe, aproximadamente 1 cm^3 , y se encuentra del mismo modo dentro de un blindaje hidrogenado para su almacenamiento y transporte. Los neutrones emitidos tienen una energía promedio de 2,3 MeV y emite en promedio 3,5 neutrones por fisión [Beckurts, 1964]. Esta fuente es también una emisora gamma, aunque mucho menos importante que la de AmBe, ya que en promedio en este caso la energía de los fotones emitidos es de 1,9 keV, por esta razón es más indicada para aplicaciones basadas en espectroscopía de gammas *prompt*. La actividad declarada por el fabricante es de $2,7 \times 10^6\text{ n/s}$ al 29/06/1994.

Espectroscopia gamma y detección de sustancias

Las cosas tienen vida propia, todo es cuestión de despertarles el ánimo.

Melquíades

CIEN AÑOS DE SOLEDAD
GABRIEL GARCÍA MÁRQUEZ

Uno de los temas centrales de la presente Tesis es la detección no invasiva de sustancias mediante la detección de la radiación gamma que se produce cuando un determinado isótopo absorbe un neutrón. El presente Capítulo introduce el tema, explicando brevemente el origen de la radiación gamma instantánea y retardada. Luego se detallan los experimentos preliminares realizados para poder observar radiación gamma *prompt* de interés. Primero se presentan los resultados obtenidos empleando una fuente isotópica y luego el acelerador lineal como fuente pulsada de neutrones, mediante la implementación de una ventana temporal de habilitación.

2.1. Gammas instantáneos y retardados

La técnica de detección de gammas instantáneos por absorción de neutrones (PGNAA) es no destructiva y permite realizar análisis multielemental en forma cualitativa y cuantitativa. Se usa para la detección y análisis de elementos livianos como H, B, C, N, Si, P, S y Cl, así como para Cd, Sm, Gd y Hg [Alfassi, 1995].

La técnica de PGNAA se basa en la reacción nuclear (n, γ) de captura de un neutrón por parte de un núcleo atómico y la emisión posterior de uno o más fotones de alta energía. Cuando el neutrón es capturado por el núcleo, el núcleo compuesto queda en un estado excitado de energía similar a la energía de ligadura del neutrón absorbido.

Luego dicho núcleo compuesto decae, casi instantáneamente ($t < 10^{-12}$ s), a un estado de mayor estabilidad a través de la emisión de radiación gamma característica de la especie nuclear en cuestión (*prompt gamma*). Normalmente, la nueva configuración nuclear consiste en un núcleo radioactivo que decae a su vez emitiendo lo que se conoce como gammas retardados (*delayed gamma*) (Figura 2.1). La aplicación de PGNAA consiste entonces en la detección de la radiación gamma instantánea emitida por una muestra mientras la misma es irradiada con neutrones.

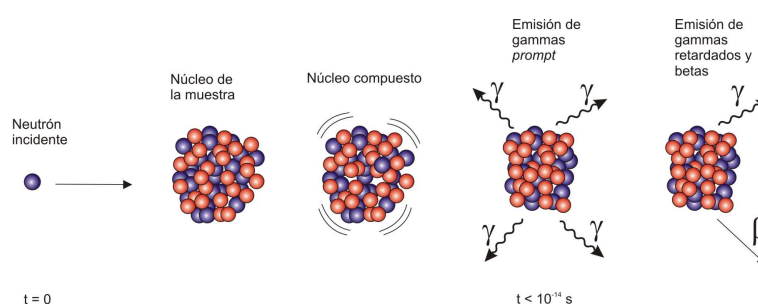


Figura 2.1: Se muestra el mecanismo mediante el cual la absorción de un neutrón por un núcleo culmina en la emisión de radiación gamma prompt.

Otra técnica muy difundida es la de análisis por activación neutrónica (NAA) que consiste en irradiar muestras, generalmente en reactores de investigación, y estudiar el espectro de radiación gamma emitido por ésta luego de la irradiación, como resultado del decaimiento de los elementos que la componen. La técnica de PGNAA se presenta como complemento de NAA en la detección de aquellos isótopos cuyo periodo de desintegración es muy largo (ej. C) o bien no dan lugar a núcleos radioactivos luego de absorber neutrones (ej. H y B).

2.2. Espectroscopia gamma con fuente de ^{252}Cf

Los primeros estudios de detección de sustancias por gamma *prompt* comprendidos en el marco del presente trabajo se llevaron a cabo empleando la fuente isotópica de neutrones de ^{252}Cf descrita en la Sección 1.3.2. Estos experimentos estuvieron orientados a observar en condiciones controladas de laboratorio el espectro de radiación gamma *prompt* generado por la absorción de neutrones en un volumen de solución de agua y cloruro de sodio (NaCl).

El arreglo experimental utilizado consistió de un recipiente cilíndrico de ~ 60 litros en cuyo interior se colocaron 50,4 litros de agua de red en los que se disolvieron 2 kg de NaCl común (sal de mesa). Dos detectores fueron utilizados en este experimento, el

Ge(Li) ubicado debajo del recipiente principal, y un centellador de NaI(Tl) acoplado a un fototubo sobre la pared lateral de dicho recipiente. En la Figura 2.2 se muestra con mayor detalle la geometría empleada. En forma coaxial al recipiente se colocó un cilindro más pequeño conteniendo en su interior la fuente de neutrones de ^{252}Cf , un cilindro de plomo como blindaje gamma entre la fuente y el Ge(Li) y un cilindro de parafina como reflector de neutrones. Blindajes neutrónicos de polietileno borado fueron colocados entre los detectores y el cilindro con agua para reducir la incidencia directa de neutrones que pudieran activar los materiales de los detectores (produciendo gammas indeseados) o, debido a los neutrones de mayor energía, ocasionar daños en la estructura cristalina del detector. Esto último está particularmente contraindicado para el caso de un detector semiconductor de germanio (Ge(Li) o HPGe) puesto que su resolución en energía, principal virtud de este tipo de detectores gamma, podría verse seria y permanentemente afectada [Knoll, 1989].

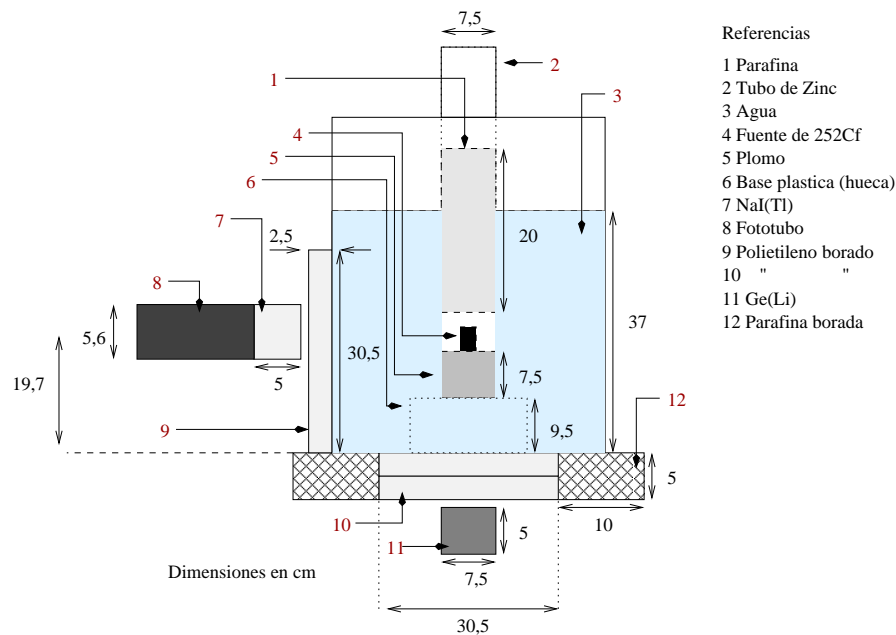


Figura 2.2: Geometría empleada para hacer espectroscopia de NaCl disuelto en agua empleando un detector de Ge(Li) y un centellador de NaI(Tl) acoplado a un fototubo.

Cada detector se conectó a través de un preamplificador y un amplificador externo a un multicanal Canberra Serie 35 Plus que permitió obtener los espectros de altura de pulsos (modo PHA) y grabar los mismos en una computadora para su posterior análisis. Los espectros fueron adquiridos simultáneamente durante aproximadamente 24 horas. Para obtener el espectro de fondo, se repitió el experimento con agua de red sin NaCl disuelta. Ambos espectros de fondo, con el Ge(Li) y con el centellador de NaI(Tl) se

muestran en la Figura 2.3, donde se puede apreciar la gran diferencia de resolución en energía entre ambos detectores y algunos picos gamma característicos como el que se produce por la reacción $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ (477,6 keV) en los blindajes neutrónicos, la aniquilación electrón-positrón (511 keV) por producción de pares debidos a gammas de alta anergia, ^{40}K (1460,8 keV), gamma *prompt* por absorción de neutrón en hidrógeno (2223,2 keV) y sus picos de simple y doble escape, un pico del ^{208}Tl que se produce como resultado de una cadena de decaimientos originada en el ^{232}Th natural terrestre y gammas de alta energía atribuidos a la respuesta *prompt* por absorción de neutrones en el hierro de la mesa que sostiene todo el sistema sobre el Ge(Li).

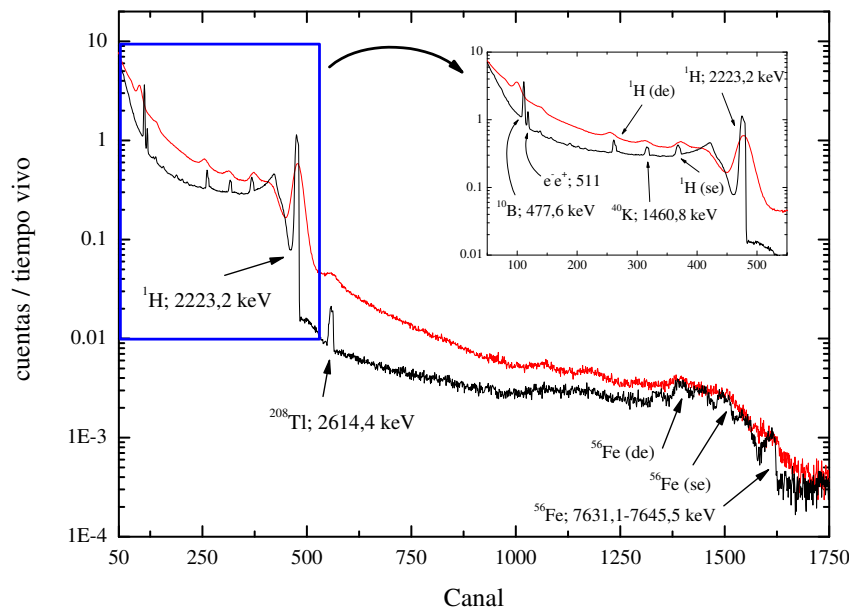


Figura 2.3: Espectros de fondo, normalizados por el tiempo vivo de medición. Se obtuvieron con la fuente de ^{252}Cf en el agua sin NaCl disuelta.

Todas las emisiones que aparecen en el espectro de fondo, a excepción de las emisiones de hierro, se emplearon para realizar la calibración energía-canal del sistema, además se empleó una fuente de calibración de ^{60}Co y como pico de alta energía se incorporó luego a la calibración la emisión *prompt* de 7790,3 keV del cloro del NaCl. Una vez calibrado el sistema se identificaron las emisiones restantes que resultan de la incorporación del NaCl al agua (Figura 2.4).

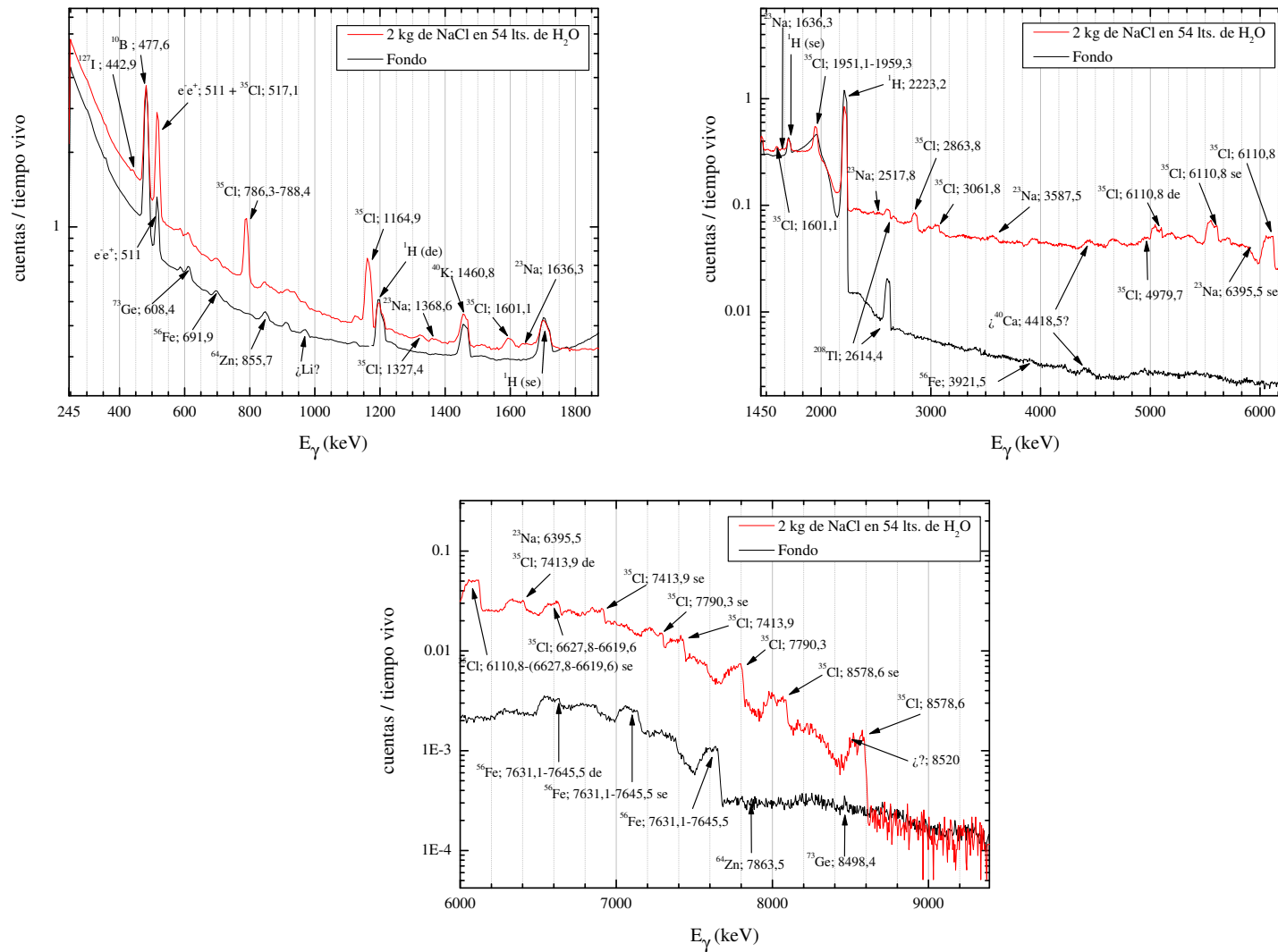


Figura 2.4: Espectroscopia con la fuente de ^{252}Cf y un detector de Ge(Li). Se irradiaron 2 kg de NaCl disueltos en 54 lt de agua de red. Los espectros de arriba muestran el rango de energías desde 245 hasta 6000 keV. El de la línea inferior se analizan las emisiones desde 6000 hasta 9400 keV. La clasificación se realizó con la ayuda de tablas de gammas prompt por absorción de neutrones térmicos [Choi, 2007].

Para la identificación de los picos se emplearon tablas de emisiones de gamma *prompt* por absorción de neutrones térmicos [Choi, 2007]. Se han identificado emisiones gamma *prompt* de cloro, hidrógeno y hierro. Los tres elementos son de importancia tecnológica para los fines de este trabajo.

2.3. Espectroscopia gamma con fuente pulsada

Como se mostró en la Sección 2.2, es posible realizar detección de sustancias observando los gammas *prompt* que se producen por absorción de neutrones termalizados de una fuente isotópica. Esta Sección comienza a tratar uno de los temas centrales de este trabajo que es la detección de sustancias empleando una fuente pulsada de neutrones.

La irradiación en sí misma de una muestra con una fuente pulsada no implica una gran complejidad técnica. Sin embargo la detección de las emisiones gamma producidas por tal irradiación requiere, debido a las características de la fuente de neutrones y los principios involucrados en la generación de los mismos, del empleo de técnicas que normalmente se aplican en trabajos de tiempo-de-vuelo. Se expondrá sobre los primeros pasos dados en este sentido hasta la obtención de un espectro de altura de pulsos de una fuente gamma conocida fue obtenido con el acelerador en funcionamiento. Luego se muestran los experimentos preliminares realizados para estudiar la respuesta gamma *prompt* de sustancias de interés tecnológico (H, Cl, N, Fe, S), que permitieron luego avanzar con experimentos de mayor complejidad, tanto orientados a las aplicaciones (ver Capítulo 3) como a estudios básicos (ver Capítulo 4).

2.3.1. Gammas *prompt* de H, Cl, Fe, S y N

Se realizaron experimentos preliminares a fin de determinar si a grandes rasgos la detección de gammas *prompt* era posible empleando un haz pulsado de neutrones. Para ello se preparó un experimento empleando el haz de neutrones que emerge por el tubo oblicuo del LINAC (ver Figura 1.8) y una geometría experimental sencilla. Dichos neutrones provienen de moderar los neutrones producidos por el LINAC con 4 cm de polietileno. El haz es colimado desde 16 cm de diámetro a la entrada en el tubo de vuelo (moderador) hasta 5 cm de diámetro en la salida.

El sistema de detección se montó a ~ 40 cm de la salida del tubo de vuelo (460 cm del moderador de neutrones) y se empleó un único detector centellador de NaI(Tl) de 2"×2" acoplado a un fototubo. La señal de ánodo del fototubo se conectó a un preamplificador y la señal resultante se envió a la sala tomados donde fue amplificada y procesada según el esquema mostrado en la Figura 1.10. El detector se blindó con la-

drillos de plomo para reducir la incidencia de gammas producidos por activación de las paredes y demás alrededores del montaje. Además este blindaje cumplía el rol de disminuir la incidencia de fotones de alta energía que se producen en el momento de la generación de los neutrones (*bremsstrahlung*) y que de incidir directamente en el detector producen la saturación de la electrónica de adquisición durante un tiempo suficientemente largo como para que los eventos gamma *prompt* debidos a la llegada de los primeros neutrones a la muestra no pudieran ser observados. Dicho en otras palabras, la saturación de la electrónica según se observó en el osciloscopio podía llegar a ser de hasta $100 \mu\text{s}$ posteriores al γ -*flash* cuando, para que un neutrón que emerge del moderador con un energía de 20 eV arribe a la muestra sólo deben transcurrir $\sim 72 \mu\text{s}$. Si bien el interés principal del trabajo es en los gammas generados en las muestras por absorción de neutrones térmicos, en un principio se buscó obtener la mayor cantidad de neutrones posibles aunque éstos fueran epitérmicos. En la Figura 2.5 se muestra la geometría del experimento descripto.

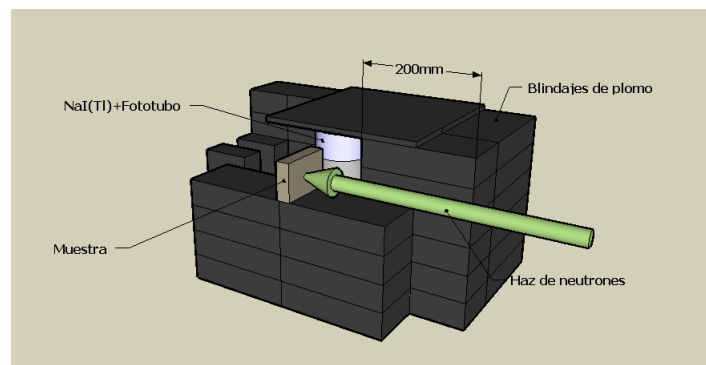


Figura 2.5: Esquema de la geometría utilizada para observar en condiciones experimentales ideales los gammas *prompt* de distintas muestras de interés.

Para poder observar los eventos gamma *prompt* con el acelerador en funcionamiento, es necesario ajustar electrónicamente una ventana temporal que inhiba al sistema de adquirir durante el período en el que la radiación de *bremsstrahlung* perturba la electrónica de adquisición. Los medios electrónicos necesarios para implementar dicha ventana son los que se describen en la Sección 1.2.1. Los pulsos que provienen del detector, pasando por el preamplificador y el amplificador, pueden ser observados en el osciloscopio empleando como disparador externo (*trigger*) de este instrumento los pulsos de γ -*flash*, en la pantalla se observa algo similar a la representación de la Figura 2.6.

Una fuente de calibración de ^{60}Co se empleó para probar el sistema de detección gamma con el acelerador en funcionamiento. La misma se colocó cerca del detector,

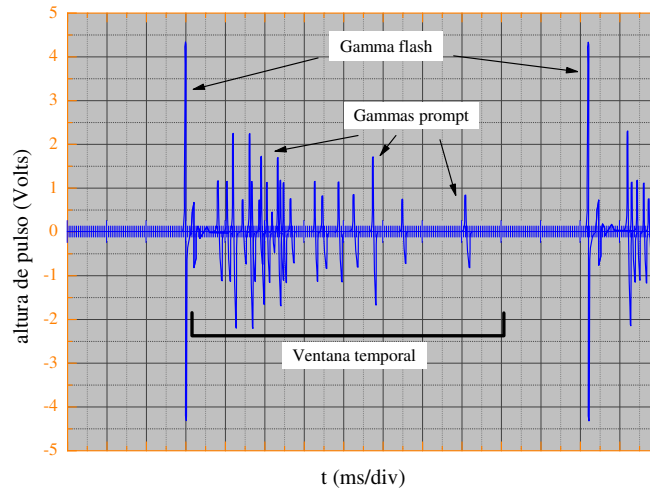


Figura 2.6: La ilustración muestra la pantalla de un osciloscopio en momentos en se están registrando pulsos por radiación gamma provenientes del detector con el acelerador en funcionamiento. Se ajusta una ventana temporal que inhibe al sistema de tomar en cuenta pulsos que se producen temporalmente cerca del momento de generación de los neutrones.

fuera del haz de neutrones, mientras se operaba el LINAC a 50 pps. Una ventana temporal fue ajustada desde $15 \mu\text{s}$ hasta los 8 ms posteriores al γ -flash (lo que corresponde a neutrones con energías que van desde el rango térmico hasta 500 eV aproximadamente) y se obtuvo el espectro que se muestra en la Figura 2.7. La resolución del sistema no se ve notoriamente afectada por el funcionamiento del LINAC, aunque se registran más cuentas debidas a gammas de las inmediaciones, en particular se destaca un pico en 511 keV debido a la presencia de fotones de alta energía en el fondo ($E_\gamma > 1022 \text{ keV}$) que producen positrones que se aniquilan fuera del detector.

Empleando el mismo arreglo experimental y la ventana temporal descrita se colocaron distintas muestras delante del detector en el haz de neutrones. Las cantidades en todos los casos fueron del orden de los cien gramos. Aunque la muestra en algunos casos fue mayor a la cantidad informada, sólo se consideró el volumen de muestra comprendido en el haz de neutrones. De este modo se irradiaron 125 cm^3 de agua (dentro de un recipiente de vidrio), 215 cm^3 de NaCl (dos cajas de 1 kg de sal gruesa común) y 140 gramos de azufre (dos barras cilíndricas sobre el haz, 99 % de pureza) durante 16 minutos a 50 pps (Figura 2.8).

La calibración energía-canal del sistema fue realizada en función de las emisiones más intensas observadas al colocar las sucesivas muestras como así también del espectro de ^{60}Co ya mencionado. Para determinar la energía de dichas emisiones *prompt*,

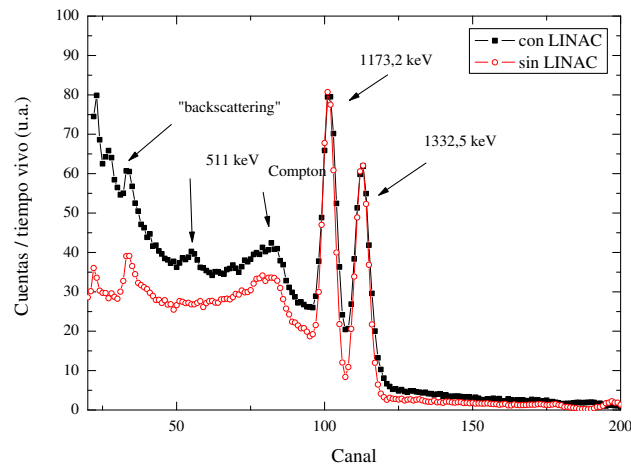


Figura 2.7: Se midió el espectro de una fuente de calibración de ^{60}Co con y sin el LINAC en funcionamiento. La resolución del sistema no se ve notoriamente afectada, sin embargo el espectro se suma a un fondo mayor debido a la absorción de neutrones en las inmediaciones por lo que registra un mayor número de cuentas, sobre todo a bajas energías, además de un prominente pico correspondiente a 511 keV por la aniquilación de positrones originados por gammas de fondo de altas energías.

se consultó una compilación gammas *prompt* producidos por absorción de neutrones térmicos [Choi, 2007]. En la Figura 2.9 se muestran los puntos correspondientes a las emisiones gamma y la recta de ajuste de dicha calibración.

En todos los casos la muestra también se irradió interponiendo una placa de cadmio de 1,12 mm de espesor a la salida del tubo de vuelo, para remover la componente térmica del espectro de neutrones y poner de manifiesto el hecho de que buena parte de los gammas detectados son debidos a neutrones del rango térmico. En la Figura 2.10 se muestra el caso para la muestra de cloruro de sodio.

Dado que el interés principal del trabajo es la detección de gammas *prompt* por absorción de neutrones térmicos, a los espectros obtenidos con el haz directo se restaron los adquiridos colocando cadmio en el haz (todos los espectros se normalizaron por el monitor). De este modo se pone de manifiesto sólo aquellos gammas que se deben a la absorción de la componente térmica del espectro (Figura 2.11). Para bajas energías, se observa una emisión en ~ 58 keV común a los espectros de todas las muestras. Dicha emisión fue asociada a dos emisiones no resueltas del ^{127}I presente en el detector, de 53,385 y 58,11 keV. Se deduce su origen dado que su presencia no depende de la muestra y es más intensa cuando la muestra es agua debido a que los neutrones en este caso son dispersados en mayor cantidad hacia el detector por la presencia de hidrógeno.

En un experimento posterior, se redujo la amplificación de los pulsos de modo de

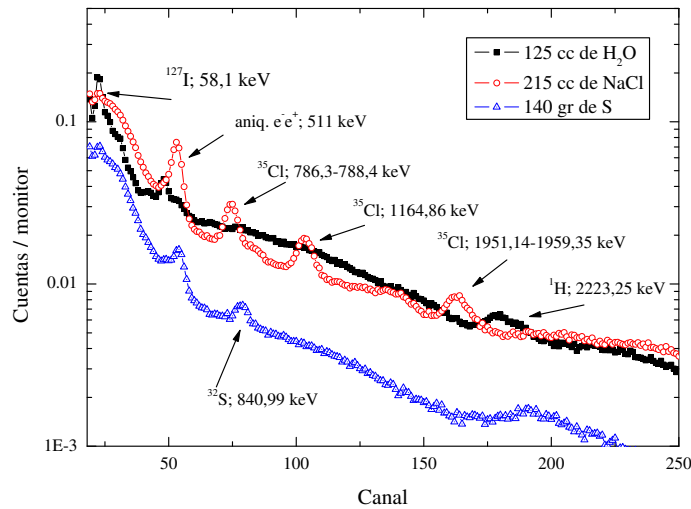


Figura 2.8: Espectros de altura de pulso de NaCl, S y H₂O. Las muestras se irradiaron por separado, durante 16 minutos. La muestra de NaCl consistió de dos cajas de 1 kg de sal gruesa de mesa cada una. Para el azufre se emplearon dos cilindros de azufre 99 % puro de 28 mm de diámetro y 55 mm de largo sobre el haz, y el agua se colocó en un termo de vidrio de 8 cm de diámetro interno.

ampliar el rango de energía de los gammas observados. Las muestras estudiadas en este caso fueron nuevamente el NaCl y una placa de hierro de $5 \times 15 \text{ cm}^2$, 8 mm de espesor. El interés en conocer el espectro del hierro radica principalmente en que las paredes de un *container* portuario estándar, de 3 o 4 mm de espesor son de acero siendo el hierro el componente mayoritario de este material. En la Figura 2.12 se muestran los espectros para NaCl, Fe y un espectro de fondo, todos con haz directo.

También en el caso del hierro resulta de interés conocer la respuesta gamma *prompt* por absorción de neutrones epitérmicos, así que nuevamente se irradió la muestra colocando el absorbente de cadmio en el haz (Figura 2.13).

Por último, en esta etapa de experimentos preliminares se irradió una muestra de nitrógeno líquido. El objetivo era observar la emisión de 10,8 MeV que se genera en el nitrógeno al absorber neutrones térmicos. Esta es la emisión gamma *prompt* por absorción de neutrones térmicos más energética conocida. La amplificación nuevamente se redujo de modo que el rango de energías detectables llegara en este caso hasta un máximo de 12 MeV. La muestra consistió en un termo de vidrio de 8 cm de diámetro interno y 20 cm de altura lleno de nitrógeno líquido. La intersección del haz de 5 cm de diámetro con la columna de nitrógeno determina un volumen de 125 cm^3 de muestra irradiada (Figura 2.14). En este caso la irradiación se realizó durante 40 minutos con el LINAC operando a 50 pps.

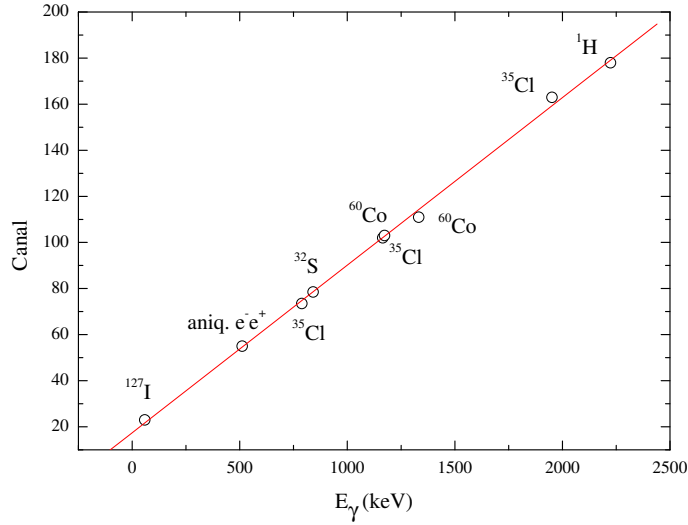


Figura 2.9: Se muestra la calibración energía-canal del sistema de espectroscopia gamma, realizada a partir de los espectros obtenidos para el ^{60}Co , y las muestras de NaCl , azufre y agua. El pico de menor energía se asocia a un gamma prompt de yodo, componente del detector. También se incluyó el pico de 511 keV debido a aniquilación de positrones.

A partir de los espectros de la Figura 2.8 y 2.12 se puede estimar la intensidad de las emisiones observadas de las sustancias irradiadas, para lo cual se calculó el área de los picos trazando una recta que permite descontar aproximadamente las cuentas por efecto Compton [Knoll, 1989] debidas a emisiones de energías superiores (Figura 2.15).

Para calcular el área de los picos, se seleccionaron los límites de integración inferior y superior, A y B respectivamente. El área del pico, A_p , está entonces dada por:

$$A_p = \sum_{i=A}^B C_i - (B - A) \frac{C_A + C_B}{2}, \quad (2.1)$$

donde C_i es el número de cuentas en el canal i . Considerando que en cada canal vale la distribución de Poisson, el error en el área A_p , está dado por:

$$\sigma_{A_p}^2 = \sum_{i=A}^B C_i + (C_A + C_B) \left(\frac{B - A}{2} \right)^2. \quad (2.2)$$

De esta manera, teniendo en cuenta el tiempo de irradiación de 960 segundos en cada caso (salvo para el hierro donde la irradiación fue de 1000 segundos) y la canti-

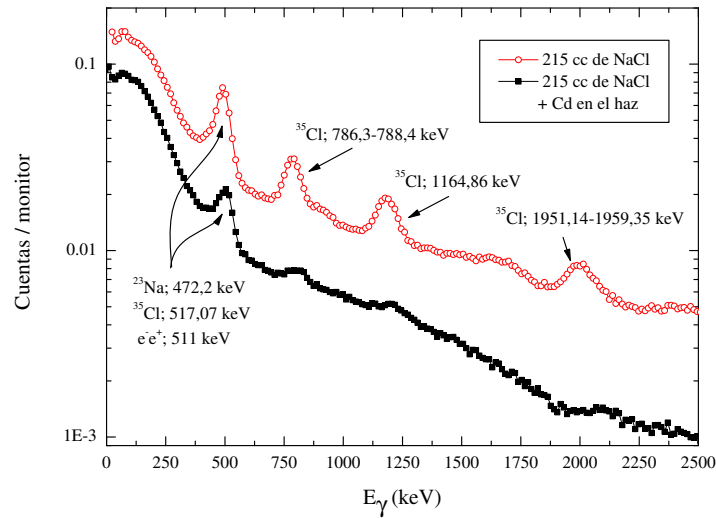


Figura 2.10: Se muestran los espectros gamma prompt de la muestra de NaCl, irradiando la muestra con el haz directo e interponiendo una placa de cadmio de 1,12 mm de espesor en el haz. La resta de estos dos espectros permite ver sólo aquellos gammas producidos por absorción de neutrones térmicos.

dad estimada de muestra irradiada se armó la Tabla 2.1 de cuentas netas por segundo y por gramo. Se debe tener en cuenta que el flujo de neutrones a 50 pps es menos de la mitad que a 100 pps (o sea $\leq 2 \cdot 10^3$ n/cm²s) y que la muestra se ubicó a 10 cm de un único detector de NaI(Tl) de 2"×2" (diámetro×altura).

Para cuantificar la señal debida a los gammas de nitrógeno, se integraron el espectro de fondo y con la muestra de nitrógeno entre 9800 y 11200 keV, es decir teniendo en cuenta los eventos de simple y doble escape. Para el fondo se obtuvieron $0,0851 \pm 0,0045$ cuentas/segundo mientras que con la muestra de nitrógeno la tasa de conteo es $0,1375 \pm 0,0075$ cuentas/segundo. Tomando en cuenta la cantidad de nitrógeno irradiada ($\sim 100,8$ g) y descontando el fondo se tiene que para un flujo del orden de 10^3 n/cm²s y a 10 cm de un único detector de NaI(Tl) la señal estimada es $(0,00051 \pm 0,00008) \frac{\text{cuentas}}{\text{gramo segundo}}$.

2.4. Conclusiones

Este Capítulo empieza con las primeras pruebas con una fuente isotópica y un detector de alta resolución para conocer el espectro que cabría esperar si se irradia un compuesto clorado con neutrones térmicos. Luego se mostró de que manera se implementaron procedimientos de la técnica de tiempo de vuelo para poder observar radia-

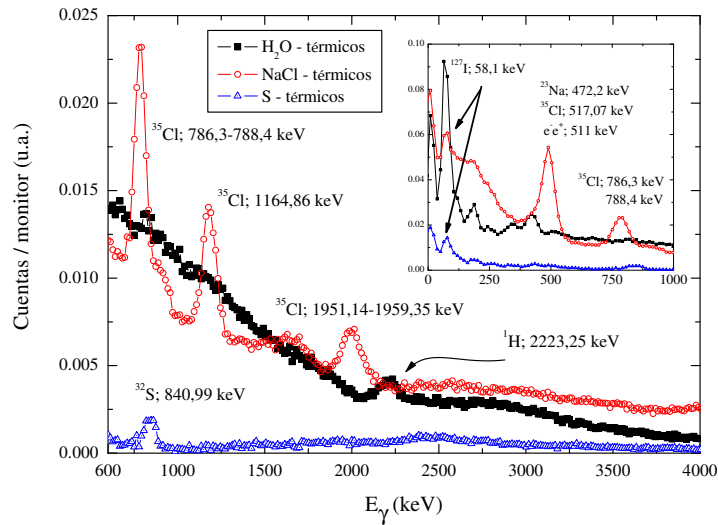


Figura 2.11: Gamma prompt por absorción de neutrones térmicos. A los espectros de la Figura 2.8 se restaron los espectros de altura de pulso realizados colocando la placa de cadmio en el haz. De esta forma se removió la componente gamma debida a absorción de neutrones epitérmicos. Notar que la emisión del yodo es mucho más intensa cuando la muestra es agua. Esto se debe a que la dispersión de neutrones hacia el detector es mayor en ese caso debido al hidrógeno presente en la muestra.

ción γ durante la operación de una fuente de neutrones pulsada que, en el momento de la generación produce abundantes fotones y ruido electromagnético que interfieren con la señal que se desea detectar.

Para hacer los primeros experimentos, se seleccionaron el cloro, el nitrógeno, el hidrógeno y el azufre por ser componentes de contaminantes industriales (cloro), explosivos (hidrógeno y nitrógeno), drogas (cloro, hidrógeno y nitrógeno) y algunas armas químicas (hidrógeno, azufre y cloro). El hierro también fue estudiado debido a que las paredes de un “container” son de ese material así como los recipientes dentro de los cuales podrían encontrarse los contaminantes, explosivos e insumos de armamento químico.

En todos los casos se han irradiado volúmenes relativamente pequeños, menores a 200 cm^3 (y 200 g) e irradiaciones de entre 10 y 40 minutos, con la muestra a no más de 10 cm de un único detector, una frecuencia de pulsado que es la mitad del máximo posible por la fuente y un flujo de neutrones del orden de 10^3 neutrones térmicos por centímetro cuadrado y segundo. También se irradió colocando cadmio en el haz para poner de manifiesto que los gammas observados son producidos en su mayor parte por absorción de neutrones del rango térmico.

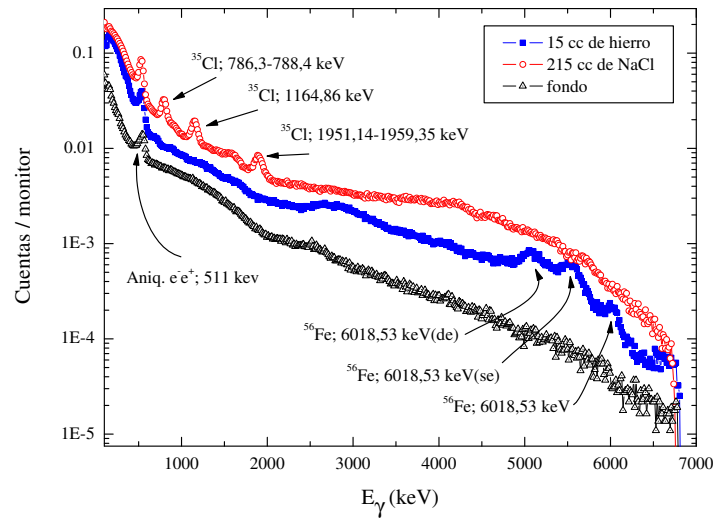


Figura 2.12: Espectros gamma prompt de NaCl y Fe. La muestra de NaCl estuvo constituida por dos cajas de sal de mesa de 1 kg cada una colocadas en serie sobre el haz de neutrones. Para estudiar las emisiones de hierro se empleó como muestra una placa de acero común de 8 mm de espesor:

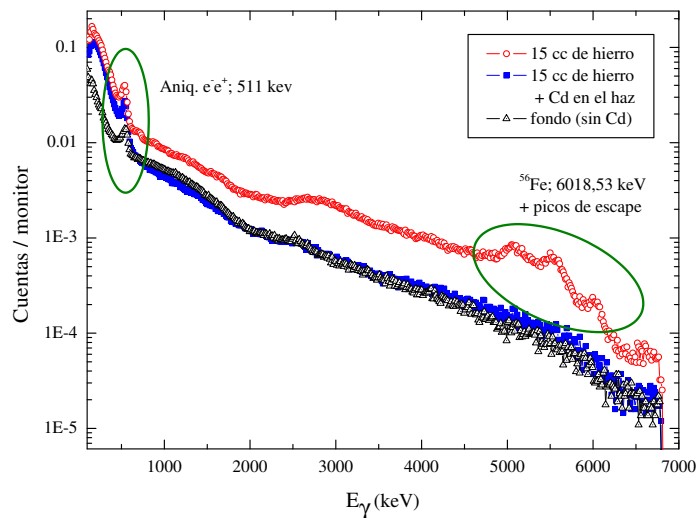


Figura 2.13: Espectros de gammas prompt de una placa de acero de 8 mm de espesor irradiada con haz directo y colocando un absorbente de cadmio.

Mediante un análisis de los espectros de altura de pulso obtenidos, se han calculado las áreas de las emisiones más intensas de los elementos de interés mencionados antes y se han obtenido tasas de conteo estimativas por unidad de tiempo y de masa para las

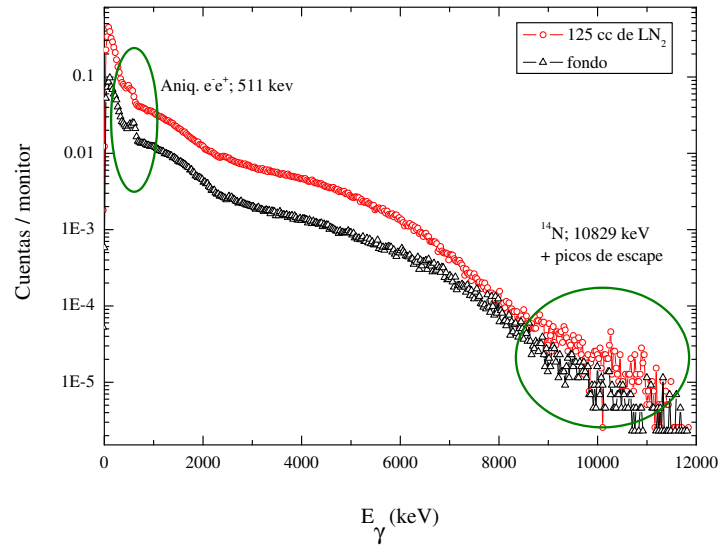


Figura 2.14: Espectro de gammas prompt de una muestra de nitrógeno líquido. El volumen total irradiado fue de 125 cc durante 40 minutos con un único detector a 10 cm de la muestra. Se compara con un espectro de fondo sin muestra). Se observa un mayor número de cuentas en las energías correspondientes a la emisión de 10,9 MeV del nitrógeno y sus picos de simple y doble escape.

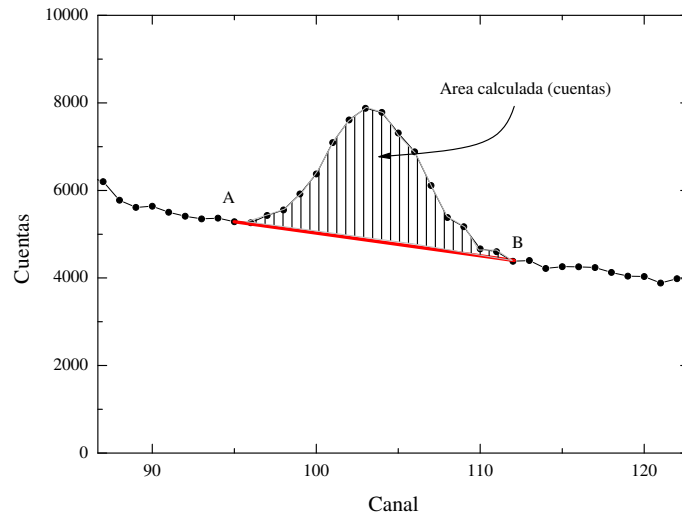


Figura 2.15: Se muestra una de las emisiones del cloro (1164,86 keV) y la recta por sobre la cual se calcula el área del pico empleando el algoritmo dado por la Expresión 2.1.

| Elemento | E_γ (keV) | $\left(\frac{\text{cuentas}}{\text{gramo segundo}}\right)$ |
|----------|------------------|--|
| H | 2223,25 | 0,631(72) |
| Cl | 786,3-788,4 | 0,2565(73) |
| Cl | 1164,86 | 0,1793(65) |
| Cl | 1951,14-1959,35 | 0,0825(48) |
| S | 840,99 | 0,0492(32) |
| Fe | 6018,53 | 0,0066(16) |

Tabla 2.1: Los valores de la Tabla permiten estimar la tasa de contaje por unidad de tiempo y de masa irradiada para el hidrógeno, el cloro, el azufre y el hierro para un flujo de $\sim 10^3 \frac{n}{\text{cm}^2 \text{s}}$ y un solo detector a 10 cm de la muestra.

condiciones experimentales abordadas (ver Tabla 2.1), es decir un flujo de neutrones relativamente pequeño y un solo detector a corta distancia de las muestras (10 cm).

DetECCIÓN NO INVASIVA MEDIANTE GAMMAS INSTANTÁNEOS: ASPECTOS TECNOLÓGICOS

Todo lo que existe en el universo es
fruto del azar y de la necesidad.

DEMÓCRITO

En este capítulo se evalúa el desempeño de la técnica desarrollada en configuraciones experimentales más similares a las de una situación real considerando aspectos tecnológicos implicados en la aplicación a la detección no invasiva de sustancias. Los resultados de la Sección 2.3.1 demuestran que en condiciones casi ideales, elementos tecnológicamente relevantes como cloro, nitrógeno e hidrógeno pueden ser detectados con un haz pulsado de neutrones térmicos y un centellador de NaI(Tl). El desarrollo pretendido en este trabajo considera que dichos elementos podrían, en un caso real, hallarse ocultos por blindajes de radiación gamma y de neutrones (deliverados o circunstanciales), encontrarse combinados con otros elementos y en cualquier posición respecto del detector. Se muestran a continuación experimentos que representan combinaciones de elementos, blindajes, cambios de posición, y el desempeño de la técnica en tales circunstancias.

3.1. Combinaciones elementales

Se realizaron experimentos tendientes a estudiar situaciones en las cuales las sustancias de interés no se encuentran en estado puro, sino cuando otros materiales se encuentran presentes y son irradiados junto al elemento buscado. De hecho la muestra empleada para observar las emisiones del cloro contiene también sodio, aunque la respuesta dominante proviene del primero.

Una de las situaciones más inmediatas que cabría esperar en una situación real es la influencia de las emisiones del hierro que podría encontrarse en las paredes de los contenedores portuarios. En la Sección 3.2 se muestran resultados de experimentos realizados específicamente para estudiar el comportamiento del hierro como blindaje.

En este sentido, se realizó un experimento en el que se irradió simultáneamente una muestra de nitrógeno y una de hierro. Para ello se empleó el detector múltiple, de cuatro centelladores de NaI(Tl) conectados en paralelo, que se describe en la Sección 1.1.2. La geometría empleada en este caso es la que se muestra en la Figura 3.1.

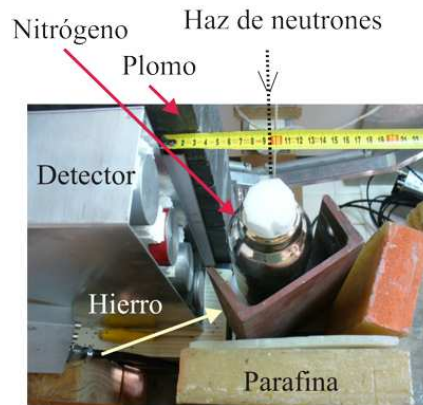


Figura 3.1: Geometría empleada para irradiar las muestras de nitrógeno y hierro simultáneamente y por separado. Se emplearon reflectores de parafina de 5 cm de espesor para incrementar la cantidad de neutrones térmicos en la zona de las muestras.

Para este experimento se operó el acelerador a 100 pps y el sistema constituido por las muestras y el detector se ubicó a aproximadamente 540 cm del moderador donde el flujo de neutrones térmicos incidente sobre la muestra era de aproximadamente $4,2 \times 10^3 \frac{n}{cm^2 s}$. Para la adquisición de los espectros se empleó una ventana temporal de habilitación desde $40 \mu s$ hasta 8 ms, lo que permitió observar la radiación γ -prompt por absorción de neutrones térmicos y con energías de hasta 90 eV. Hacia el lado del que provienen los neutrones, los detectores se blindaron con 10 cm de plomo para disminuir la incidencia de radiación gamma de *bremsstrahlung* y de activación en las paredes de la casilla.

El nitrógeno se empleó líquido dentro de un termo de vidrio de 8 cm de diámetro interno. Dado que el haz de neutrones era de 5 cm de diámetro, el volumen de nitrógeno irradiado fue de aproximadamente 125 cm^3 . La muestra de hierro era un fragmento de viga de perfil “tipo U” de 8 mm de espesor. Bloques de parafina de 5 cm de espesor se emplearon para reflejar neutrones hacia la zona de las muestras. Las irradiaciones

fueron de 5 minutos y en cada condición experimental se hicieron entre dos y trece irradiaciones consecutivas.

Antes de realizar la irradiación de las muestras, se calibró en energía-canal el sistema empleando una fuente de americio-berilio para aprovechar la emisión de 4,4 MeV del $^{12}\text{C}^*$ (ver Sección 1.3.1) debido a que luego se observaría el rango cercano a la emisión de 10,9 MeV del nitrógeno y se consideró adecuado calibrar al sistema en las energías más altas posibles.

Se realizaron en primer lugar irradiaciones con el nitrógeno y el hierro simultáneamente, luego se irradió el hierro solo y por último se reemplazó el nitrógeno por agua. Todos los espectros correspondientes a cada configuración se sumaron y normalizaron por la suma de sus monitores, para caracterizar cada situación con la mejor estadística posible (Figura 3.2).

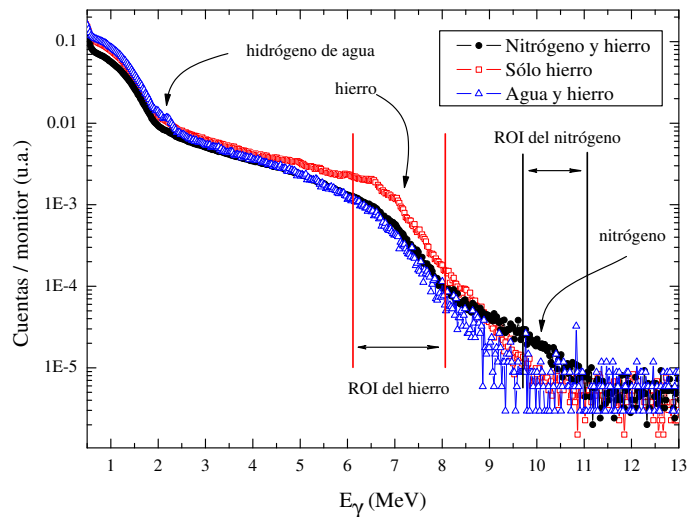


Figura 3.2: Espectros de altura de pulso irradiando simultáneamente hierro y nitrógeno, hierro y agua y también hierro solo. Se señalan las regiones de interés correspondientes al hierro y al nitrógeno. También se observa la emisión de 2,2 MeV en la irradiación simultánea de agua y hierro. Se empleó una ventana temporal de habilitación desde 40 μs hasta 8 ms.

En función de los espectros “suma” de la Figura 3.2 se seleccionaron las áreas o rangos de interés correspondientes al hierro y al nitrógeno, y con esta información así obtenida, se integraron los espectros de cada irradiación de 5 minutos dentro de dichos rangos, originando de este modo los datos para la Figura 3.3.

Lo que se manifiesta en los datos de la Figura 3.3 es que la capacidad de dispersión de neutrones por el agua es mayor que con el nitrógeno y por eso en la figura de la

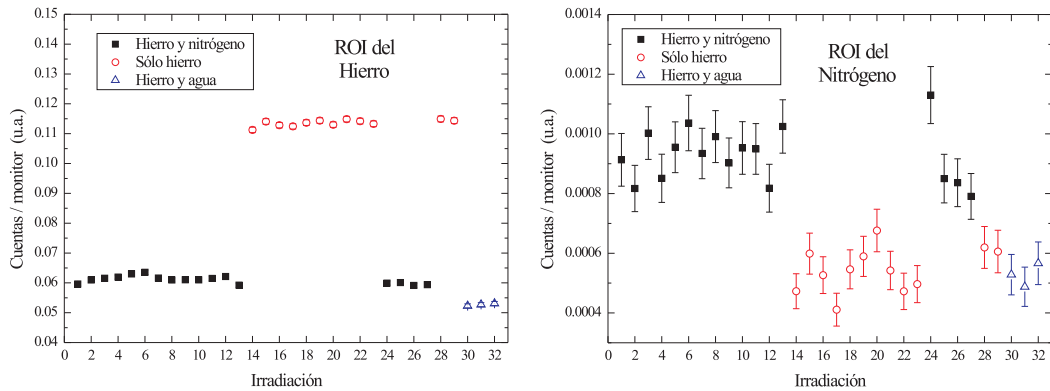


Figura 3.3: Se muestran la áreas bajo los espectros de altura de pulso en los rangos de interés del hierro (izquierda) y de nitrógeno (derecha). Cada punto corresponde a una irradiación de cinco minutos y las integrales se normalizaron por el monitor de cada irradiación.

izquierda se observa una disminución entre los puntos azules (triángulos) respecto de los negros (cuadrados), ya que el termo se colocó siempre delante del hierro. En cambio la región del nitrógeno no se ve afectada al intercambiar este último por agua. Dicha región es sólo sensible a la presencia del nitrógeno, hecho que es de interés pensando en la aplicaciones ya que teniendo caracterizada esta región de energía, un contaje distinto del fondo en una carga en la que no cabría esperar este elemento podría estar asociado a la presencia de explosivos o drogas. La emisión de 10,9 MeV del nitrógeno tiene entonces dos ventajas asociadas a su alta energía: por un lado sería muy difícil de blindar una vez los neutrones han sido absorbidos y por otro lado no existen otros gammas *prompt* de energía tan elevada.

Además de explorar la sensibilidad de una región particular del espectro se evaluó realizar un cociente entre dos áreas de interés. Este método tiene la ventaja de independizar la técnica, de la producción neutrónica de la fuente. En la Figura 3.4 se muestra el cociente de las áreas de nitrógeno y hierro para las configuraciones experimentales exploradas.

En el experimento anterior, si bien se estudió una combinación de sustancias, el nitrógeno se irradió en estado puro. Naturalmente no sería de esperar que se presentara de este modo en un escenario real, así que se diseñó un experimento que permitiera evaluar si era observable la presencia del este elemento aunque el mismo estuviera presente como compuesto de alguna sustancia; el material elegido fue la harina. En esta sustancia el nitrógeno se encuentra en las proteínas y, según el fabricante, contiene 10 g de proteína cada 100 g de harina. El nitrógeno constituye aproximadamente el 16 % de

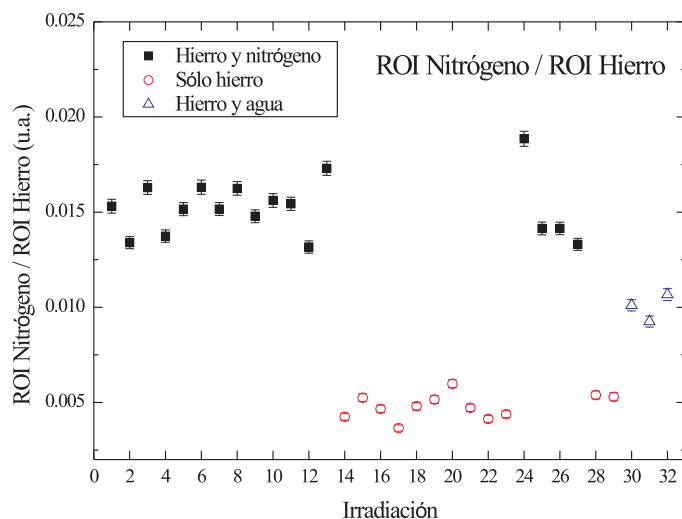


Figura 3.4: Cociente de áreas de nitrógeno y hierro. Un parámetro de este tipo tiene la ventaja de ser independiente de la producción neutrónica de la fuente. Los puntos muestran que mediante este cálculo se puede distinguir entre las tres configuraciones (a diferencia de las áreas por separado), en particular se observa que además es sensible a haber colocado agua o nitrógeno junto al hierro.

la proteína con lo cual se tiene que en un kilo de harina hay aproximadamente 16 g de nitrógeno.

Para este experimento el detector de cuatro NaI(Tl) se ubicó paralelo al haz de neutrones de modo tal que la muestra irradiada quedara enfrentada a los detectores tal como se presentaría en una situación de inspección no invasiva. El nitrógeno se colocó nuevamente dentro de un recipiente térmico de vidrio de 8 cm de diámetro interno, y a 20 cm del frente del detector. Rodeando parcialmente el nitrógeno se colocaron tres bultos de 1 kg de harina de trigo, de modo que el haz pudiera llegar al nitrógeno sin obstáculos. En la Figura 3.5 se muestra la geometría empleada. El acelerador se operó a 100 pps y las irradiaciones tuvieron una duración de 10 minutos.

El experimento cuya geometría se muestra en la Figura 3.5 consistió en irradiar ocho veces durante diez minutos el nitrógeno y la harina, sólo la harina y luego el fondo quitando las muestras del haz. Todos los espectros de altura de pulso se sumaron y normalizaron por el monitor. También en este caso la calibración energía-canal se realizó empleando la fuente de americio-berilio. En la Figura 3.6 se muestran los espectros suma, sobre las ocho irradiaciones en cada configuración.

Se calculó la integral sobre el área de interés correspondiente a la emisión de 10,9 MeV del nitrógeno y las energías en las que corresponde ubicar los picos de simple

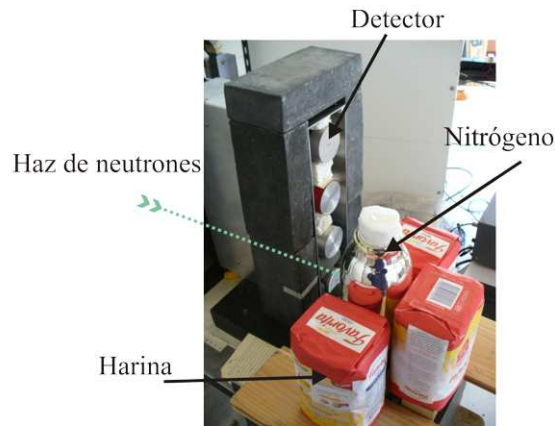


Figura 3.5: Geometría empleada para irradiar las muestras de nitrógeno y harina simultáneamente y sólo la harina para poner de manifiesto la presencia de nitrógeno como compuesto de esta sustancia.

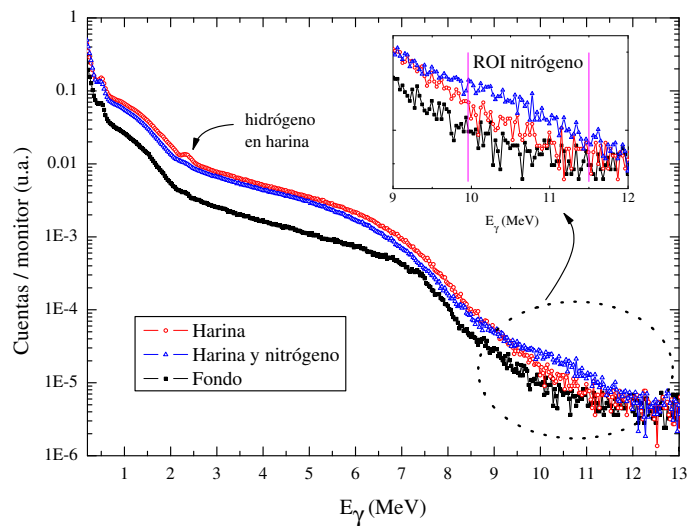


Figura 3.6: Espectros de altura de pulso para ocho irradiaciones de diez minutos en tres situaciones distintas: se irradió simultáneamente el nitrógeno y harina, luego sólo la harina y el fondo quitando las muestras del haz. Se señala la ROI que corresponde a la emisión de 10,9 MeV del nitrógeno y las cuentas debidas a simple y doble escape.

y doble escape. Dichas integrales, normalizadas por el monitor de cada irradiación se muestran en la Figura 3.7.

La cantidad de nitrógeno líquido irradiado por el haz de neutrones es aproximadamente de cien gramos. La cantidad irradiada sobre 1 kilo de harina sería como máximo

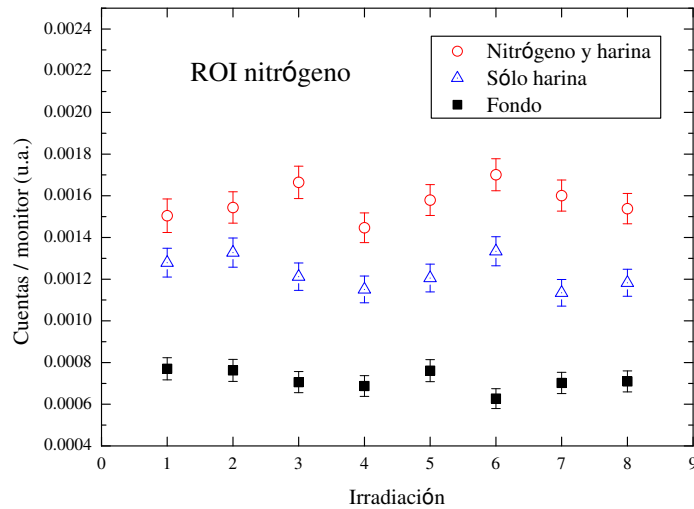


Figura 3.7: Para cada irradiación de fondo, harina y nitrógeno y sólo harina se integró el espectro en la región que corresponde a la emisión de 10,9 MeV y los picos de simple y doble escape. Se observa que aún cuando se quitó el nitrógeno líquido aparecen cuentas en la región considerada debido al nitrógeno en harina.

cercano a 16 gramos si el bulto fuera completamente bañado por el haz. Esto no ocurre en la geometría del experimento ya que el haz de neutrones tiene 5 cm de diámetro e incide sobre la cara de uno solo de los bultos de harina, de $10 \times 18 \text{ cm}^2$. Si no se tomara en cuenta la dispersión del haz al llegar a la muestra, el volumen irradiado sería de $\sim 180 \text{ cm}^3$ donde sería de esperar aproximadamente dos gramos de nitrógeno. Sin embargo la dispersión no puede ser despreciada ya que la cantidad de hidrógeno en la harina es alto y por lo tanto el volumen total irradiado podría ser mayor de modo que la cantidad de nitrógeno también mayor que dos gramos. En otras palabras la señal de nitrógeno en harina corresponde a una cantidad de entre 2 y 16 gramos.

3.2. Blindajes

Era de interés conocer si la técnica permite determinar la presencia de nitrógeno o cloro a través de un blindaje similar al que ofrece la pared de un “container” y cuál sería en ese caso la atenuación de la señal, tanto por absorción de neutrones del haz cuanto por la radiación γ -prompt que se desea detectar.

Se dispuso un arreglo experimental que permitiera determinar la disminución en la señal asociada a gammas *prompt* de cloro o nitrógeno debido a un blindaje de 3 mm

de acero. La geometría empleada se muestra en la Figura 3.8.

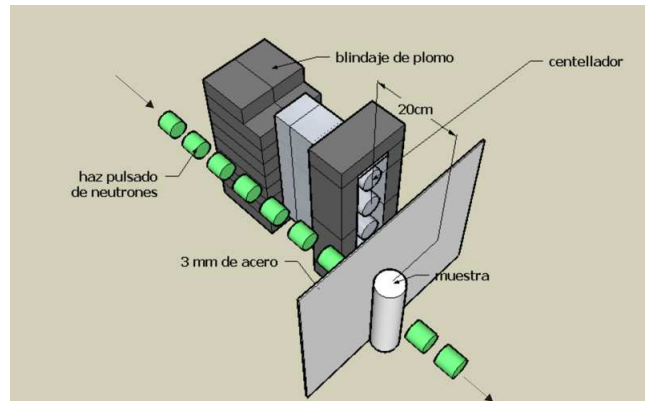


Figura 3.8: Esquema de la geometría empleada para evaluar el efecto de 3 mm de acero como blindaje para las emisiones del cloro y del nitrógeno.

Las muestras se colocaron a 20 cm del frente del detector de cuatro NaI(Tl) y se irradiaron durante siete minutos en la experiencia con el nitrógeno y cinco minutos cuando la muestra empleada fue el NaCl. Entre el detector y la muestra se colocó una lámina de acero de 3 mm de espesor que se presentaba como blindaje para los neutrones incidentes y para los fotones de las muestras que debían llegar al detector. La muestra de nitrógeno consistió nuevamente en un termo de vidrio de 8 cm de diámetro interno con nitrógeno líquido en su interior. Para estudiar el efecto del blindaje sobre las emisiones del cloro se colocaron dos kilos de NaCl como muestra. Para las irradiaciones del nitrógeno y también para el cloro las muestras se encontraban pegadas al acero.

A partir de los espectros de altura de pulsos para el nitrógeno y el cloro, se seleccionaron regiones de interés correspondientes a las emisiones más intensas que luego, en cada irradiación, se usaron para integrar y normalizar por el monitor. Para determinar el efecto que tenía el acero como blindaje se compararon las cuentas netas obtenidas si el blindaje se encontraba presente con el caso en que no lo estaba, es decir que en cada caso se restó el correspondiente fondo, que en el caso con blindaje significó irradiar sólo la placa de acero. En las Figuras 3.9 y 3.10 se muestran los espectros de altura de pulsos, con la muestra de NaCl y nitrógeno respectivamente, y se señalan las áreas de interés. En cada caso también se muestran las cuentas netas (normalizadas) con el blindaje de acero y removiendo el mismo.

De la comparación sobre los valores obtenidos para las cuentas netas irradiando con el blindaje y removiendo el mismo se estimó la atenuación de la señal para el caso del cloro y el nitrógeno. Tomando el promedio de los valores y calculando el

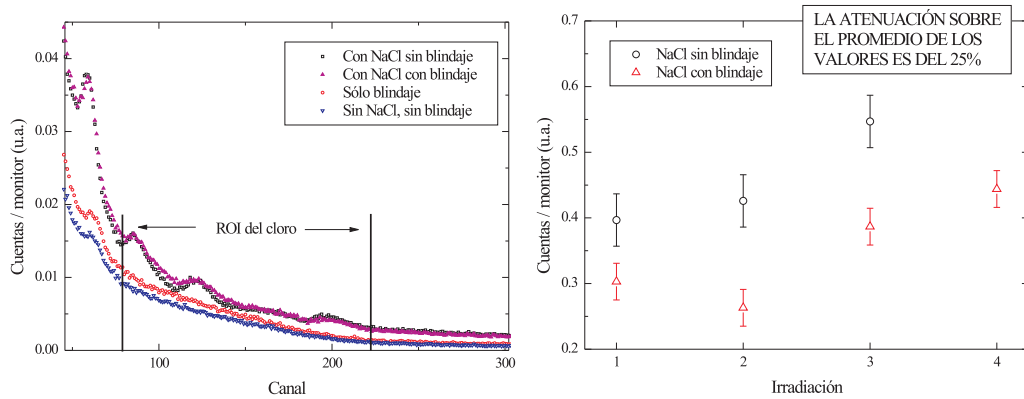


Figura 3.9: Espectros de altura de pulsos (izquierda) para la muestra de NaCl bajo el blindaje de 3 mm de acero, en donde se señala la región de interés con las principales emisiones del cloro. A la derecha se muestran las integrales que corresponden a las cuentas netas con el blindaje y removiendo el mismo.

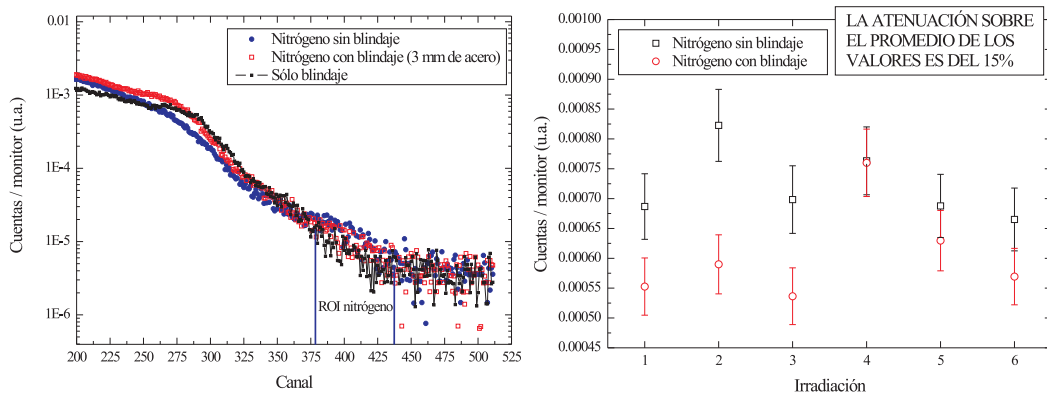


Figura 3.10: Espectros de altura de pulsos (izquierda) para la muestra de nitrógeno líquido bajo el blindaje de 3 mm de acero, en donde se señala la región de interés que contiene a la emisión de 10,9 MeV y los picos de simple y doble escape. A la derecha se muestran las integrales que corresponden a las cuentas netas con el blindaje y removiendo el mismo.

cociente se tiene que la atenuación es, en promedio, un 24 % para el cloro y un 16 % para las emisiones del nitrógeno. En otras palabras, 3 mm de acero son para el cloro aproximadamente un 60 % más atenuantes que para la emisión de nitrógeno.

Naturalmente la atenuación del haz de neutrones es la misma en ambos casos, lo que hace la diferencia es la energía de la radiación gamma, para el caso del cloro se tienen fotones con energías entre 0,8 y 2 MeV mientras que en el caso del nitrógeno son de 10,9 MeV. Considerando al acero como hierro se puede calcular una atenuación gamma en base al valor de tablas del coeficiente de absorción en masa [Hubell, 2004] y la densidad del hierro ($7,86 \text{ g/cm}^3$). Para 3 mm de hierro y considerando una energía de 1,372 MeV como valor medio de las emisiones del cloro, se tiene que la atenuación gamma es del 33 %. Para el nitrógeno el mismo cálculo para una emisión de 10,9 MeV arroja una atenuación del 21 %. También para los resultados calculados resulta que la señal del cloro se atenúa un 60 % más que la del nitrógeno.

3.3. Sensibilidad a la posición

La técnica de tiempo de vuelo permite registrar por medio de un codificador el instante, respecto de un tiempo cero, en el que un evento es registrado en un detector. Tal evento puede ser, en nuestro caso, la detección de un neutrón en un detector de ^3He o bien un fotón γ -prompt en un centellador. Si una fuente de neutrones produjera pulsos monoenergéticos de neutrones en un dado instante, entonces cada paquete de neutrones tardaría un tiempo bien definido en recorrer una determinada distancia hasta un absorbente. Colocando un detector γ cerca de la muestra, despreciando el tiempo que los fotones tardan en recorrer la distancia muestra-detector y registrando el instante en el que dichos fotones fueron detectados es posible inferir la distancia de la muestra a la fuente de neutrones, en otras palabras su posición.

Como se ha mostrado en las secciones 2.3 y 3.1, la técnica desarrollada ha mostrado ser útil para detectar la presencia de determinados elementos. Aprovechando que la fuente es pulsada y empleando el codificador de tiempo de vuelo se realizaron experimentos que demuestran la factibilidad de determinar la distancia de una sustancia respecto de la fuente de neutrones. Para realizar los experimentos en este sentido, se empleó el detector de cuatro centelladores descrito en la Sección 1.1.2.

Para las primeras pruebas se buscó poner de manifiesto que un espectro de tiempo de vuelo de neutrones obtenido sobre eventos de fotones γ se veía modificado si la muestra y el detector se ubicaban en distintas posiciones sobre el haz de neutrones, a diferentes distancias del moderador. La geometría que se armó para dichas pruebas se muestra en la Figura 3.11. El LINAC se operó a 100 pps y $25 \mu\text{A}$ empleando un moderador de polietileno de 4 cm de espesor. La muestra elegida fue el NaCl debido a la buena intensidad de su señal γ -prompt. Una caja de 1 kg se colocó a 600, 700 y 800 cm del moderador con el detector debajo, a una distancia no mayor a 10 cm desde el frente del mismo y el punto en que el haz incidía sobre la muestra.

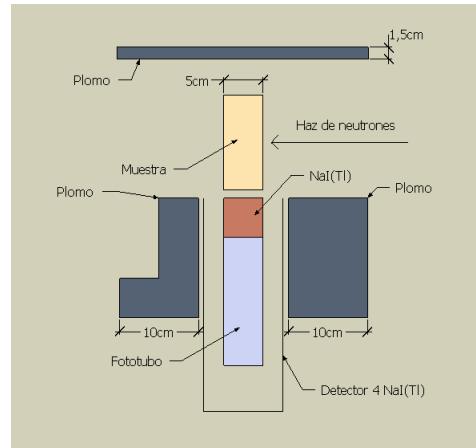


Figura 3.11: Geometría empleada para irradiar la muestra en tres posiciones separadas por un metro de distancia entre sí. La muestra, 1 kg de NaCl, y el detector se colocaron a 600, 700 y 800 cm del moderador donde se obtuvieron espectros de tiempo de vuelo.

Con la muestra a 600 cm del moderador, se adquirió un espectro de altura de pulsos irradiando la muestra durante cinco minutos. También un espectro sin muestra se registró durante el mismo tiempo. Dichos datos se emplearon para identificar la región de interés, en la que se encuentran las emisiones más intensas del cloro, de modo de discriminar los pulsos para procesarlos con el codificador de tiempo de vuelo. Una calibración energía-canal se realizó empleando la fuente de ^{60}Co con el LINAC en funcionamiento a efectos de realizar la calibración en las verdaderas condiciones de trabajo. En la Figura 3.12 se muestran los espectros mencionados y la región de interés (ROI) sobre la cual se discriminaron los pulsos.

Con los pulsos discriminados en la región de las emisiones del cloro se obtuvieron los espectros de tiempo de vuelo, de 4000 canales y $2 \mu\text{s}$ de ancho de canal (*dwell time*). El codificador se empleó habilitado por una ventana temporal apropiada entre pulsos de LINAC, desde $40 \mu\text{s}$ posteriores al γ -flash, hasta $8000 \mu\text{s}$. Cada irradiación de la muestra o el fondo tuvo una duración de diez minutos y se obtuvieron espectros como los que se muestran en la Figura 3.13, en ese caso con la muestra a 600 cm del moderador.

Si bien cada irradiación era de diez minutos, para lograr mejor estadística (sobre todo en las posiciones más alejadas del moderador) se realizaron hasta cuatro irradiaciones cuyos espectros se sumaron y normalizaron por el monitor que refiere a la producción neutrónica del acelerador. Para la muestra a 600, 700 y 800 cm del moderador se obtuvieron los espectros que se muestran en la Figura 3.14, donde los fondos co-

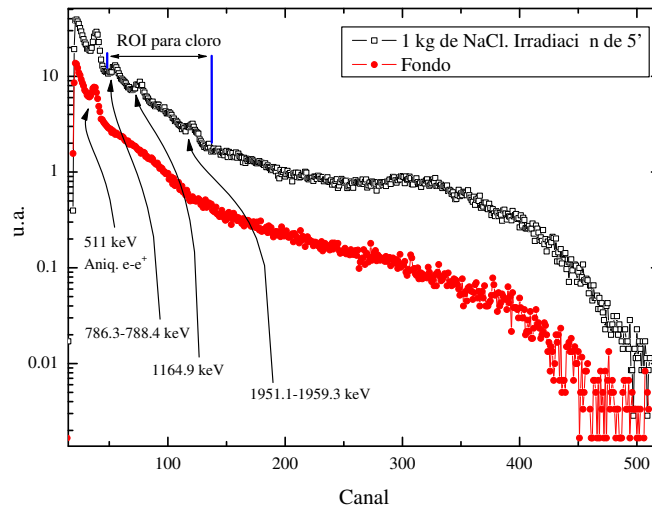


Figura 3.12: Espectros de altura de pulso irradiando la muestra durante cinco minutos en la posición a 600 cm del moderador. Se señala el rango de canales seleccionados con el discriminador para procesar con el codificador de tiempo de vuelo.

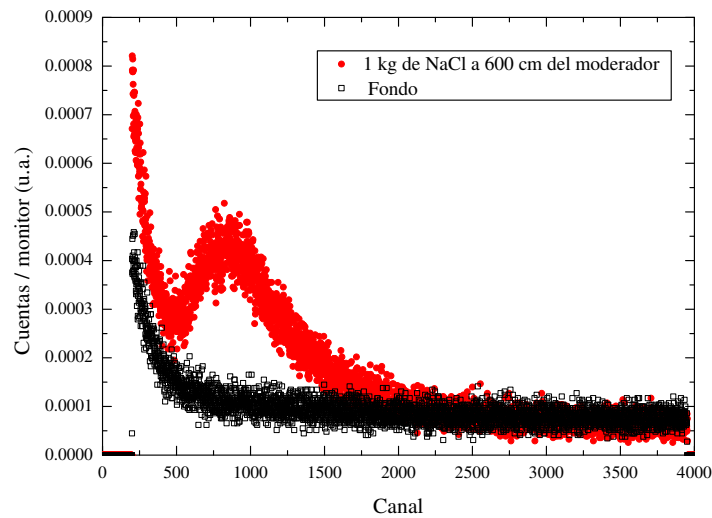


Figura 3.13: Espectros de tiempo de vuelo con la muestra en 600 cm. El acelerador se operó a 100 pps y el codificador de tiempo de vuelo se ajustó para registrar eventos en 4000 canales de $2 \mu\text{s}$. Los espectros con muestra y fondo mostrados corresponden a una irradiación de diez minutos.

respondientes fueron restados y se señala el máximo para apreciar el cambio en la distribución de tiempos en la medida que la irradiación se realiza en diferentes posi-

ciones.

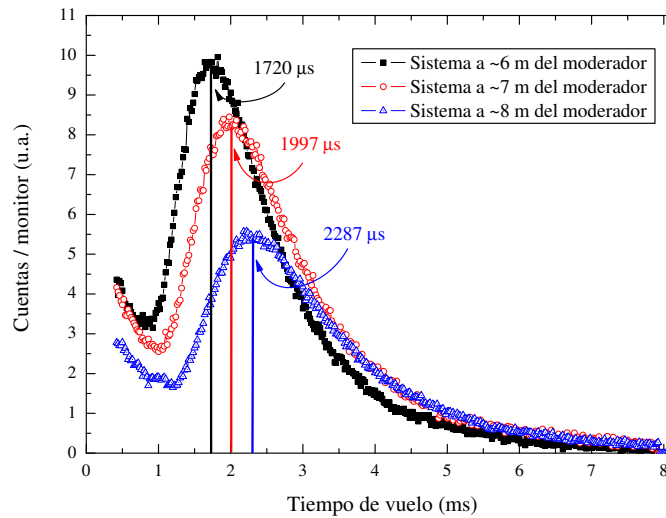


Figura 3.14: Se muestran los espectros de tiempo de vuelo obtenidos irradiando la muestra de NaCl en tres posiciones distintas respecto del moderador. La posición del detector respecto de la muestra se mantuvo idéntica en las tres oportunidades. Las posiciones de irradiación se encontraban separadas por un metro de distancia.

Las elección de las posiciones en las cuales se realizaron las irradiaciones obedece a un criterio tecnológico. Un “container” portuario posee, aproximadamente, una sección de tres metros de lado (290 cm de altura y 250 cm de ancho), así que se consideró importante determinar si un espectro de tiempo de vuelo mostraba cambios apreciables para movimientos de la muestra dentro de ese rango.

Como se observa en la Figura 3.14, la técnica es sensible frente a desplazamientos de la muestra del orden de un metro. En este caso el detector se encontraba en una posición fija respecto de la muestra, en lo que fue un experimento preliminar más que una prueba realista de la técnica. Sin embargo permite confirmar que al colocar una muestra a seis, siete u ocho metros el espectro de tiempo de vuelo se ve modificado a simple vista, basta observar la posición del máximo para afirmar que la resolución espacial, hasta aquí, es de al menos un metro, lo que representa un tercio del ancho de un “container”.

Basados en la misma geometría se hicieron otras pruebas. En las posiciones límites, a 600 y 800 cm del moderador, se movió la muestra sobre el detector y se la irradió en cuatro posiciones, además de la central que ya se había observado. Las posiciones elegidas son simétricas respecto del detector tal como se muestra en la Figura 3.15.

También en este caso se realizaron irradiaciones de diez minutos que luego al procesar los datos fueron sumadas y normalizadas por el monitor total. A los espectros

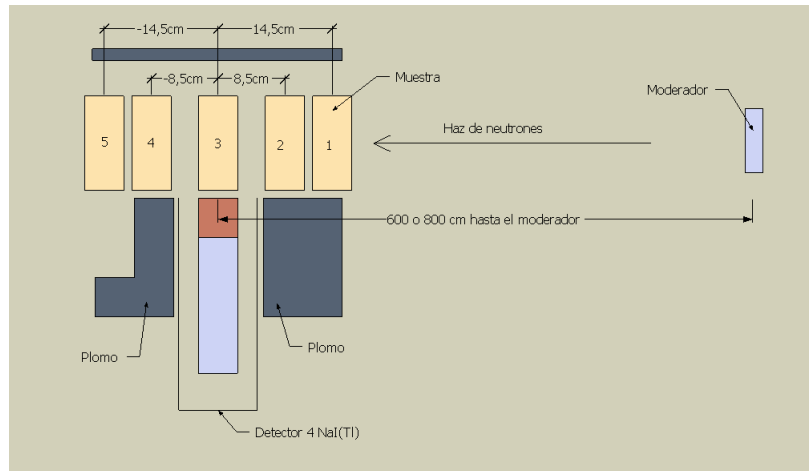


Figura 3.15: Geometría empleada para estudiar el efecto de pequeños desplazamientos de la muestra sobre el detector.

adquiridos irradiando la muestra se les restó el fondo. Los espectros de tiempo de vuelo obtenidos son los que se muestran en la Figura 3.16.

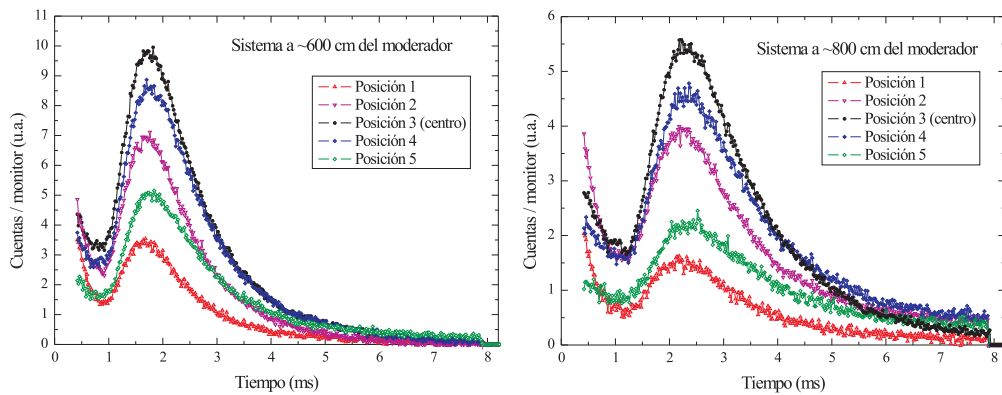


Figura 3.16: Espectros de tiempo de vuelo obtenidos al irradiar la muestra de NaCl en cinco posiciones sobre el detector (fijo). Todo el sistema se ubicó a 600 cm (izquierda) y a 800 cm (derecha) del moderador.

Dichos espectros muestran que la intensidad de la señal se ve modificada al mover la muestra sobre el detector. Esta variación es la combinación de al menos tres factores: la intensidad de la radiación gamma depende de la distancia entre la muestra y los centelladores, también existe un efecto de autoblandaje de la radiación gamma que va

de la muestra al detector y por último existe una colimación en la detección debido al blindaje de plomo utilizado para disminuir la incidencia de radiación gamma de fondo. Para notar más claramente el cambio de intensidad frente al pasaje de la muestra, se integraron los espectros de la Figura 3.16 para todo tiempo de modo tal que se obtiene un perfil de la intensidad gamma registrada por el detector afectada por el autoblindaje, la posición de la muestra sobre el detector y el blindaje de plomo (Figura 3.17).

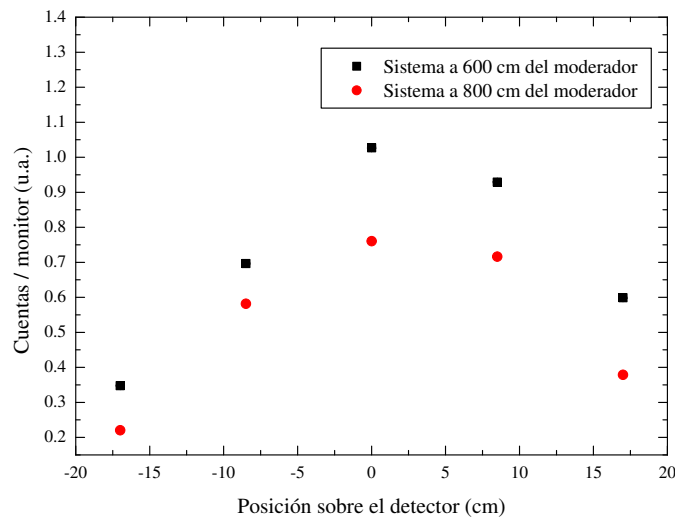


Figura 3.17: Se muestra la intensidad de la señal γ -prompt en función de la posición de la muestra sobre el detector. La prueba colocando todo el sistema, muestra y detector, a ~ 600 y ~ 800 cm del moderador y realizando desplazamientos de 8,5 cm de la muestra sobre el detector.

Pensando en una posible aplicación de la técnica, era importante determinar la relación existente entre el máximo del espectro de tiempo de vuelo y la posición de la muestra respecto del moderador. Para grandes desplazamientos, del orden de un metro, el cambio de posición del máximo se aprecia a simple vista. Sin embargo se propuso hallar una manera de obtener información de los espectros de modo tal de alcanzar mejores resoluciones espaciales.

Se estableció un método numérico para ajustar los espectros de tiempo de vuelo proponiendo las siguientes hipótesis y aproximaciones que los mismos se rigen por una expresión con dos parámetros de ajuste. Se consideró que la eficiencia ϵ_γ del detector de fotones es constante en el rango de energía en el cual se discriminan los pulsos. El modelo también supone que para la energía de los neutrones incidentes, la sección eficaz de absorción de la muestra es de tipo $1/v$. Y por último se propone que

los neutrones del espectro incidente tienen una distribución de energía de Maxwell correspondiente a un moderador a temperatura ambiente. La expresión que establece los valores que debe tomar el espectro en función del tiempo, $C(t)$, está dada por:

$$C(t) = \frac{P_1}{(t - t_R)^5} \exp \left[-\frac{P_2}{(t - t_R)^2} \right], \quad (3.1)$$

donde P_i son los parámetros de ajuste y t_R el tiempo de retardo electrónico. Los detalles matemáticos y físicos que llevaron a deducir la expresión 3.1 el lector podrá encontrarlos en el Apéndice B.

En la Expresión 3.1, el parámetro P_2 es el que permite deducir la distancia de vuelo, L , desde el moderador hasta la muestra ya que está dado por:

$$P_2 = \frac{m_n}{2kT} L^2 = \left(20,8 \frac{\mu s^2}{cm^2} \right) L^2, \quad (3.2)$$

donde k es la constante de Boltzmann, T la temperatura del moderador en grados Kelvin ($293,6^\circ K$) y m_n y la masa del neutrón.

A partir de un espectro medido es posible generar espectros “experimentales sintéticos” por el método de Montecarlo. Para cada canal de tiempo de un espectro experimental, se tiene un valor de cuentas normalizadas, $C_n(t)$, y su incerteza o error $e(t)$. La generación de un espectro sintético consiste en establecer un valor artificial de cuentas normalizadas a partir de $C_n(t)$ y $e(t)$. Para ello se emplea una subrutina de MATLAB que genera números aleatorios con una distribución normal, bajo el requerimiento de que tal distribución tenga valor medio $C_n(t)$ y desviación estándar e (ver Apéndice B).

A partir de cada espectro experimental se generó un conjunto de 500 espectros que se ajustaron por el método de cuadrados mínimos sobre los parámetros P_i y a los que se calculó el tiempo para el cual el espectro tiene un máximo, t_{max} . Finalmente en cada posición se obtuvo un vector de 500 valores para cada parámetro de ajuste y de t_{max} que fueron promediados. Por la Expresión 3.2 obtener un valor medio del parámetro P_2 es equivalente a obtener un valor medio de L . Todos los cálculos se realizaron con una rutina desarrollada y ejecutada en MATLAB. En la Figura 3.18 se muestra un ejemplo del espectro experimental, una curva de ajuste promedio y un histograma sobre los 500 valores de L calculados para el caso de la muestra a 600 cm del moderador.

Para cada posición en la que se colocó la muestra, se midió con cinta métrica la distancia respecto de la salida del tubo de vuelo. A partir de un plano del tubo de vuelo y la distancia parcial mencionada se estima la distancia al moderador L_{exp} . A

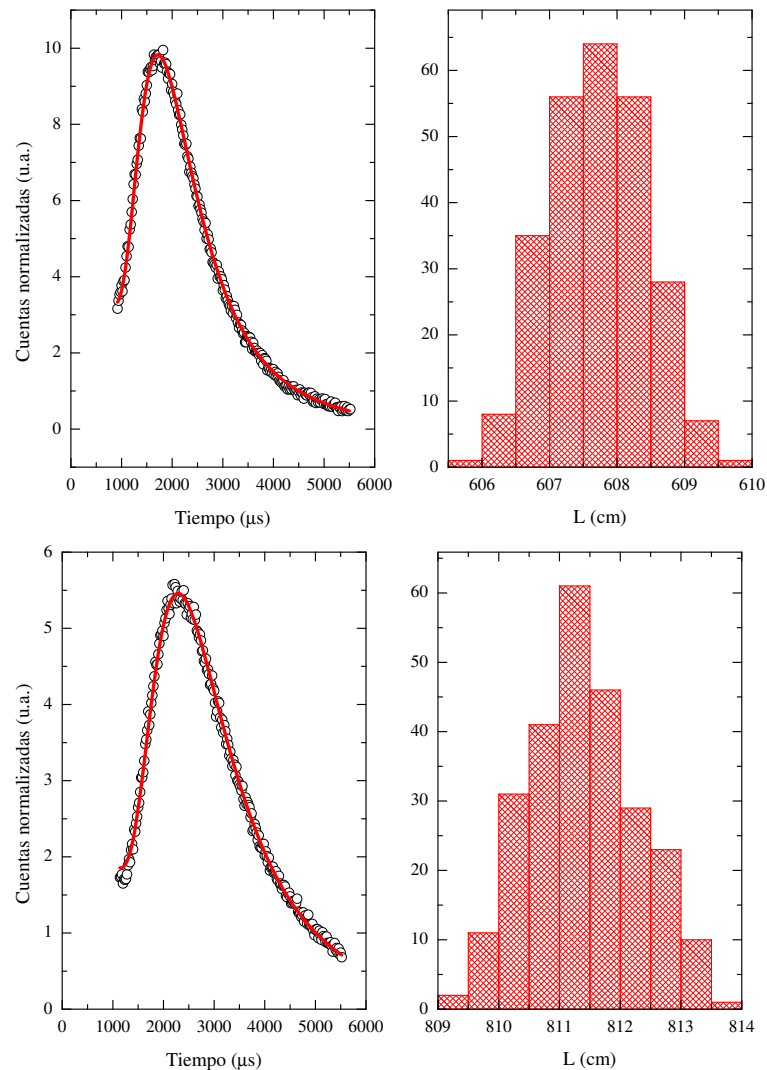


Figura 3.18: Se muestran los resultados de ajustar los espectros de tiempo de vuelo para las posiciones centrales a 600 cm (arriba) y 800 cm del moderador (abajo). La curva roja se calculó a partir de un promedio sobre los parámetros de ajuste obtenidos en cada espectro sintético. En la columna de la derecha se muestran los respectivos histogramas sobre las distancias de vuelo calculadas en quinientas “corridas”.

partir de las distancias de vuelo experimentales y que provienen del ajuste se generó la Figura 3.19.

La correlación entre distancias de vuelo ajustadas y experimentales es muy buena. El ajuste además arroja valores de L con incertezas (4 sigmas) entre 3 y 11 cm, teniendo en cuenta que la distancia de vuelo fue de entre 600 y 800 cm y que la muestra tenía

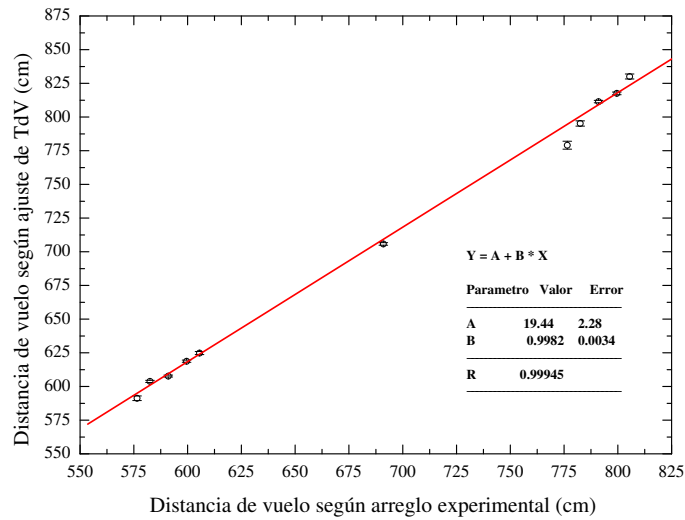


Figura 3.19: Longitudes de vuelo medidas con una cinta métrica se comparan con las calculadas a partir del ajuste mediante la Ecuación 3.1. Sobre los puntos se realizó una regresión lineal que muestra que las distancias de vuelo están correlacionadas, a menos de un corrimiento en la ordenada al origen de aproximadamente 20 cm de las distancias de vuelo numéricas respecto de las obtenidas manualmente.

un espesor de 5 cm, la resolución obtenida es excelente.

La identificación del máximo del espectro es sencilla desde el punto de vista del cálculo. Conociendo la relación entre dicho máximo y la distancia de vuelo L , es posible obtener de un modo directo dicha información a partir de un análisis más simple del espectro. En la Figura 3.20 se muestra la relación entre el tiempo que maximiza los espectros (región térmica) y las distancias de vuelo obtenidas del ajuste.

En un escenario tecnológico la geometría se podría presentar muy distinta, con el detector ubicado en una posición fija, y en una modalidad de “reflexión”. En tal caso los espectros de tiempo de vuelo se verían afectados en intensidad de señal por la posición de la muestra respecto del moderador (flujo de neutrones) y por su posición a su vez respecto del detector. El modelo de ajuste incluye una disminución del flujo neutrónico inversamente proporcional al cuadrado de la distancia entre la fuente y la muestra.

Según la medición manual de distancias y la información contenida en planos del tubo de vuelo, las posiciones centrales de irradiación eran de 591, 691 y 791 cm, las cuales hasta aquí fueron llamadas posiciones de 600, 700 y 800 cm al moderador. De modo tal que según los resultados del ajuste obtenido (ordenada al origen) existe una diferencia, sistemática, de aproximadamente 20 cm entre lo calculado a partir de los espectros y lo medido manualmente (ver Figura 3.19).

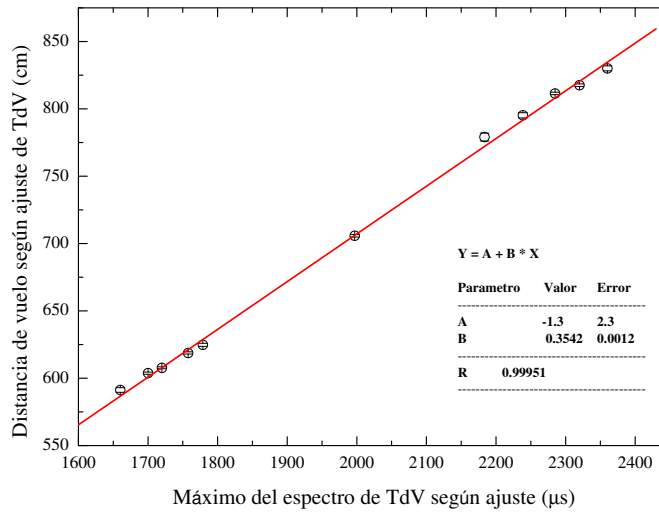


Figura 3.20: Relación entre las distancias de vuelo y el máximo del espectro de tiempo de vuelo. Conocida la relación entre estos dos parámetros previamente, se puede estimar en forma sencilla la posición de la muestra a partir de conocer el máximo del espectro de tiempo de vuelo.

3.3.1. Experimento realista

En el contexto de las posibles aplicaciones, se diseñó un experimento cuya geometría fuera más representativa de un caso real. Para ello se colocó el detector en posición horizontal de modo tal que el haz de neutrones pasara por encima de éste y las muestras pudieran ser colocadas en una posición enfrentada (ver Figura 3.21).

Delante del detector se colocaron 2 kg de NaCl en forma expandida, es decir una caja al lado de la otra, perpendiculares al haz de neutrones. La muestra se ubicó a 30 y a 80 cm del frente del detector y se hicieron irradiaciones de diez minutos, totalizando treinta y cuarenta minutos respectivamente. Con la muestra colocada también se realizaron en cada caso irradiaciones, los mismos tiempos, interponiendo un filtro de cadmio de 0,8 mm en el haz de neutrones para absorber los neutrones térmicos. En la Figura 3.22 se muestran todos los espectros de tiempo de vuelo mencionados y los resultantes de restar a las mediciones con haz directo, aquellas realizadas con el cadmio en el haz. Observando los espectros de la derecha, se nota un corrimiento del máximo del espectro en función del cambio en la posición de la muestra. El tiempo en que se ubica aproximadamente el máximo en cada caso es señalado con líneas verticales.

El frente del detector se encontraba ubicado a aproximadamente 570 cm del moderador. El tiempo que a un neutrón de 0,2 eV le lleva recorrer esa distancia es aproximadamente 900 μ s. Naturalmente neutrones menos energéticos tardarán más tiempo

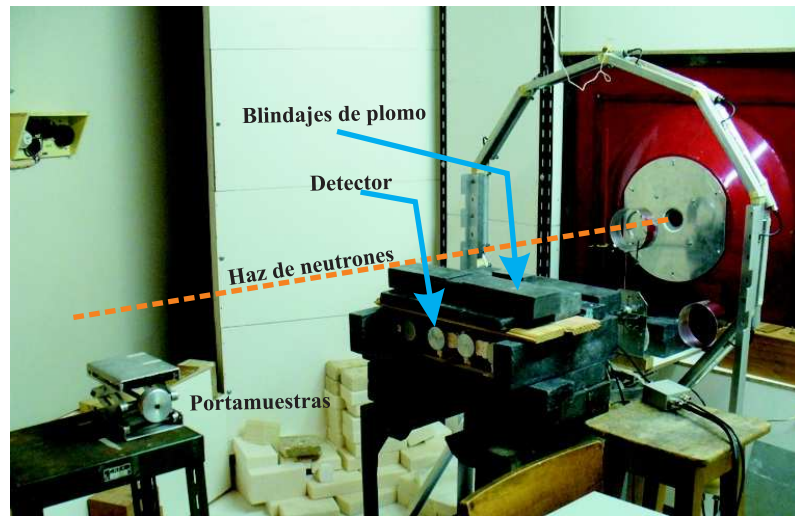


Figura 3.21: Arreglo experimental montado para probar la sensibilidad de la técnica a la posición de la muestra en condiciones de mayor realismo, con el detector en posición de reflexión y en una posición fija a un lado del haz de neutrones. La muestra, de 2 kg y 5 cm de espesor de NaCl, se colocó a 30 y a 80 cm del detector, esto es a unos 600 y 650 cm del moderador respectivamente.

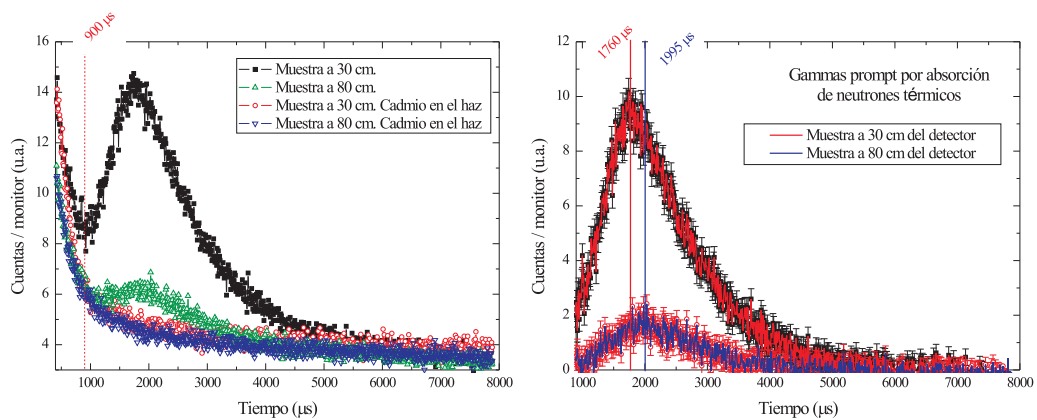


Figura 3.22: Espectros de tiempo de vuelo para la muestra de NaCl a 30 y 80 cm del detector, con haz directo e interponiendo un filtro de 0,8 mm de cadmio (izquierda). Los eventos por absorción de neutrones térmicos se obtuvieron restando el espectro con haz filtrado del registrado con haz directo en cada caso (derecha).

en recorrer tal distancia y por ende aún más si la distancia fuera mayor. Teniendo eso en cuenta, se ajustaron los espectros de tiempo para eventos gamma por absorción de

neutrones térmicos desde los $900 \mu\text{s}$ (ver Figura 3.22) de modo que sólo fueron considerados aquellos eventos producidos por neutrones de menos energía que $0,2 \text{ eV}$, o sea térmicos, y se empleó el mismo procedimiento de ajuste explicado antes. En la Figura 3.23 se muestra el resultado de los ajustes mediante la superposición sobre los espectros experimentales de una curva (roja) obtenida con el promedio sobre los parámetros de ajuste, en este caso sólo dos, y los histogramas que surgen de calcular la distancia de vuelo en cada ajuste de un espectro sintético.

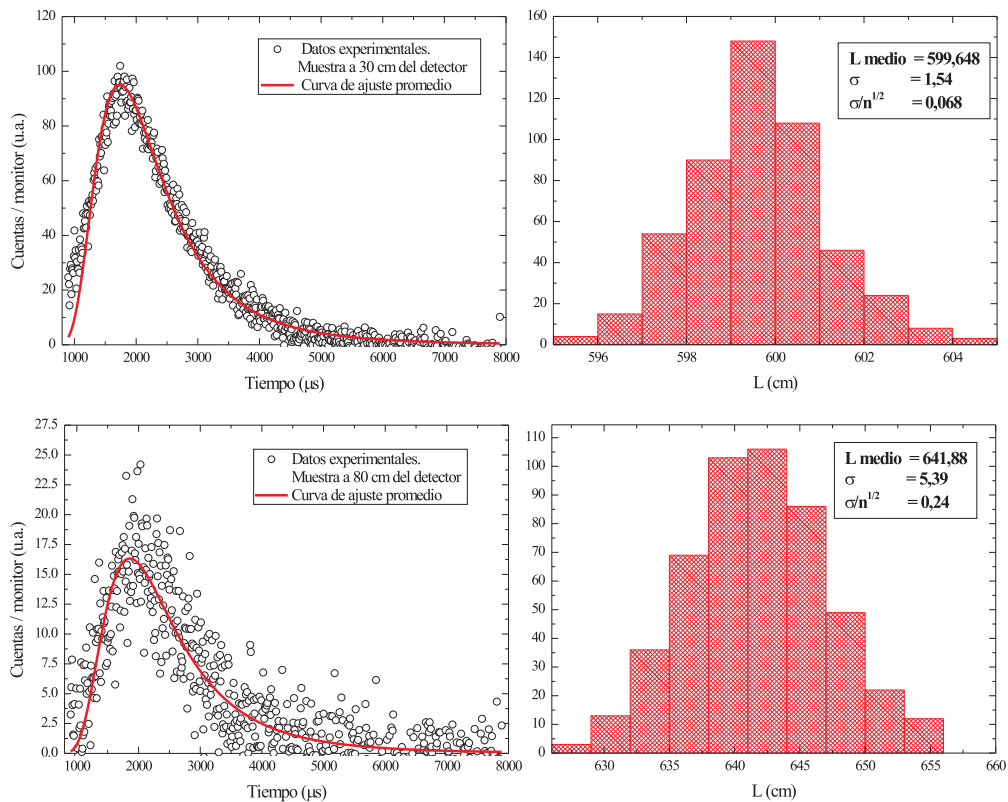


Figura 3.23: Eventos por absorción de neutrones térmicos en la muestra de NaCl a 30 y 80 cm del detector (aproximadamente 600 y 650 cm del moderador). A la izquierda de la figura se muestran los espectros experimentales y en cada caso una curva calculada a partir de promediar los parámetros de ajuste sobre 500 espectros sintéticos. A la derecha se muestra la distribución que se obtiene para la longitud de vuelo en cada caso.

3.4. Conclusiones

Se ha mostrado la sensibilidad de la técnica desarrollada para determinar el cambio en la posición de una muestra que absorbe neutrones y emite radiación γ -*prompt*. Las pruebas se realizaron con una muestra de NaCl, discriminando y enviando al codificador de tiempo de vuelo aquellos pulsos correspondientes a las emisiones más intensas del cloro. Inicialmente los experimentos estuvieron dirigidos a verificar el cambio en los espectros de tiempo de vuelo, manteniendo fija la posición del detector respecto de la muestra. Luego haciendo desplazamientos grandes (un metro) de muestra y detector, y pequeños de la muestra (~ 8 cm) se verificó la validez de un modelo de ajuste de espectros de tiempo de vuelo que permite determinar numéricamente la distancia entre la muestra y el moderador. Luego se implementó una geometría más representativa de un caso real, manteniendo el detector en una posición fija de reflexión e irradiando la muestra en dos posiciones separadas por una distancia de 50 cm. Para ambas ubicaciones la muestra se irradió usando un filtro de cadmio en el haz y los espectros resultantes, de eventos ocurridos por absorción de neutrones térmicos, se ajustaron nuevamente empleando el modelo probado con anterioridad obteniendo resultados satisfactorios en la determinación de la posición de la muestra respecto del moderador.

Espectroscopia gamma de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ con Ge(Li)

La casualidad favorece a las
mentes entrenadas.

LOUIS PASTEUR

Las intensidades de las emisiones características de un isótopo pueden depender de la energía del neutrón absorbido. En este Capítulo se muestran los resultados de un experimento en el que se estudiaron las emisiones γ -prompt del indio. Empleando la técnica de tiempo de vuelo se estudiaron los espectros de γ -prompt debidos a la absorción de neutrones térmicos, y en forma discriminada los espectros producidos por absorción de neutrones con energías entorno a la resonancia que el indio presenta en 1,45 eV. La relevancia de este trabajo radica en que se han hallado emisiones que no se encontraban entre los datos nucleares tabulados. Si bien la detección de In no es el objeto de esta Tesis, en este Capítulo, además de realizarse un aporte a las bibliotecas de datos nucleares, se muestran los resultados obtenidos luego de la implementación una técnica útil para la determinación de intensidades de emisiones gamma en diversas muestras de interés. Es de notar que la técnica implementada en el marco de este trabajo de Tesis permite realizar estudios seleccionando el rango de energía de los neutrones absorbidos.

4.1. Introducción

El indio metálico en su estado natural está compuesto por dos isótopos estables, el ^{113}In y el ^{115}In con una abundancia de 4 % y 96 % respectivamente. El núcleo de ^{115}In es un emisor β^- con una vida media de 5×10^{14} años. La sección eficaz neutrónica del indio tiene tres importantes resonancias por debajo de 10 eV, que corresponden al isótopo de mayor masa (Figura 4.1).

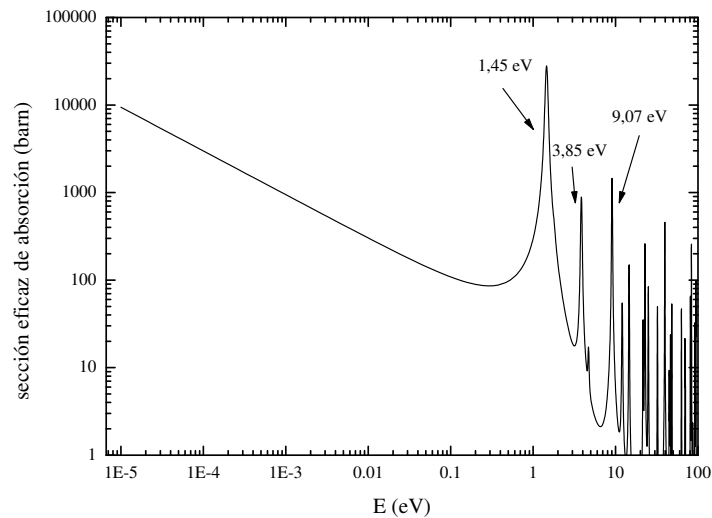


Figura 4.1: Sección eficaz de absorción del ^{115}In . Se señalan tres de las resonancias de absorción, en 1,45 eV, 3,85 eV y 9,07 eV [Smith et al., 1990], y se observa el comportamiento $1/v$ a baja energía.

Debido a este trabajo fue posible observar emisiones gamma *prompt* generadas a partir de la absorción de neutrones de energías entorno a la resonancia de 1,45 eV del ^{115}In , que no se encontraban en la bibliografía [Tartaglione *et al.*, 2008].

4.2. Antecedentes en el tema

Los primeros trabajos sobre emisiones gamma *prompt* del indio datan de la década del 50. Los autores de dichos trabajos realizaron esos experimentos empleando neutrones de reactores nucleares y detectores de radiación gamma de baja resolución, basados en cristales centelladores de NaI(Tl) [Hamermesh *et al.*, 1952 y Draper, 1958].

Luego la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ también fue estudiada para neutrones de energías cercanas a las resonancias de 1,45 eV, 3,85 eV y 9,07 eV, empleando como fuente de neutrones un LINAC y centelladores de NaI(Tl) para detectar los gammas producidos [Draper *et al.*, 1958]; en dicho trabajo se analizó el espectro gamma hasta los 280 keV. Años después con el surgimiento de detectores gamma de mayor resolución como el Ge(Li), nuevos esfuerzos fueron realizados para conocer con más precisión el espectro energético de la radiación gamma *prompt* del indio. Estos trabajos estuvieron orientados principalmente a deducir el esquema de niveles de energía del núcleo de ^{116}In y propiedades nucleares como spin y paridades. Entre los trabajos más importantes, ya con detectores de Ge(Li), se pueden mencionar los de: [Wahrer *et al.*, 1970] donde

se analizan los gammas prompt para energías desde 273 hasta 6400 keV [Lone *et al.*, 1970] y [Corvi *et al.*, 1974], que analizan sobre todo gammas de altas energías de la reacción y [Rabenstein *et al.*, 1972] y [Alexeev *et al.*, 1976], que se concentran en observar gammas prompt irradiando muestras con neutrones térmicos. Los resultados de éstas y otras publicaciones han sido compilados (para neutrones del rango térmico) por [Blachot, 2001].

4.3. Experimento y resultados

El experimento se realizó empleando los neutrones generados en el LINAC de nuestro Laboratorio, que fue operado a 100 pps y una corriente media de $25 \mu\text{A}$. El blanco del acelerador, el moderador y los reflectores de grafito se dispusieron según la configuración descrita en la Sección 1.2.1, y las irradiaciones se realizaron extrayendo neutrones por el tubo oblicuo con el haz colimado de 5 cm de diámetro. La muestra, una lámina de 10 cm de lado y 0,95 mm de espesor de indio natural (99,99 % de pureza), se colocó a 726 cm de la fuente de neutrones, formando su normal un ángulo de 45° con el haz incidente. Para la detección de la radiación gamma se empleó el detector de Ge(Li) descrito en la Sección 1.1.2. El detector se encontraba por debajo del haz de neutrones, a 14,3 cm del centro de la muestra y, para disminuir la radiación de fondo proveniente de reacciones *prompt* y activación de los alrededores se emplearon cuatro ladrillos de plomo de $5 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$ que junto una mesa de hierro que sostenía todo el montaje (Figura 4.2).

Los pulsos provenientes del detector fueron procesados empleando la electrónica que se describió en la Sección 1.2.1. Los espectros de tiempo de vuelo se registraron en 4096 canales de $2 \mu\text{s}$ de duración y los espectros de altura de pulso (PHA), en un multicanal Canberra Serie 35, empleando 2048 canales. En ambos casos los datos fueron transferidos a una PC para su procesamiento.

En un experimento de tiempo de vuelo detectando gammas *prompt* provenientes de una muestra, la selección de una ventana temporal equivale a seleccionar un rango de energías de los neutrones que han sido absorbidos (Ecuación 1.4). Si bien el objetivo central de este experimento fue observar los gammas *prompt* generados en el indio por absorción de neutrones entorno a la resonancia de 1,45 eV, en primer lugar se observó un espectro amplio de tiempos de emisión de los gammas *prompt*. Luego, observando el espectro antes mencionado, se seleccionaron los rangos de tiempo (energía) más acotados para adquirir los espectros de altura de pulsos.

En la Figura 4.3 se muestra el espectro de tiempo de vuelo obtenido procesando todos los pulsos del Ge(Li) para todos los fotones cuya energía fuera mayor a 50 keV.

En el espectro de la Figura 4.3 se observan importantes máximos o, en otras pala-

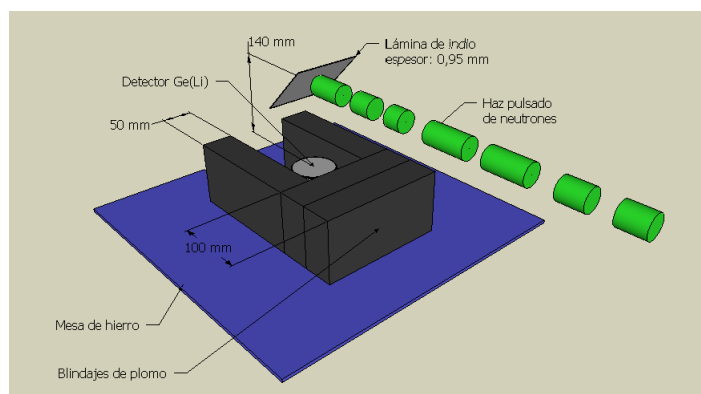


Figura 4.2: Configuración experimental. Una lámina de indio se colocó en el haz pulsado de neutrones. Debajo de la muestra, fuera del haz, se ubicó el detector de Ge(Li). El detector se blindó parcialmente con plomo para reducir la incidencia de radiación gamma de los alrededores. La mesa de hierro que sostuvo el montaje también contribuyó al blindaje.

bras, tiempos para los cuales se producen mayor cantidad de gammas desde la muestra. Dichos máximos corresponden a emisiones gamma producidas por absorciones de neutrones de energías entorno a las resonancias de 9,07, 3,85 y 1,45 eV del ^{115}In (tiempos cortos), mientras que para tiempos más largos se observa un máximo debido a la distribución “Maxwelliana” del espectro de energía de los neutrones incidentes. Estos son neutrones que pertenecen al rango térmico de energías.

Como se muestra en la Figura 4.3, dos rangos temporales fueron seleccionados, dentro de los cuales los gammas fueron analizados en altura de pulso con el multicanal. La *gate* temporal A, desde 700 a 6980 μs permitió adquirir espectros de aquellos gammas *prompt* producidos por la absorción de neutrones del rango térmico (0,0056 a 0,57 eV). Por su parte, por medio de la *gate* temporal B se observó y clasificó los gammas *prompt* producidos por absorciones de neutrones de energías entorno a la resonancia de 1,45 eV (0,9 a 2,43 eV).

Las mediciones empleando la *gate* temporal B además fueron realizadas colocando una lámina de cadmio de 1,12 mm de espesor a la salida del tubo de vuelo, para evitar que neutrones térmicos alcanzaran la muestra. Además, para ambas *gates*, se tomaron regularmente mediciones de fondo, removiendo la muestra del haz. Estos espectros de fondo fueron restados de los espectros obtenidos en presencia de la muestra.

En todos los casos además se normalizaron los espectros por las cuentas del detector de referencia o “monitor”. Dicho detector cuenta neutrones durante una irradiación de manera tal de tener en cuenta las fluctuaciones en la producción neutrónica del

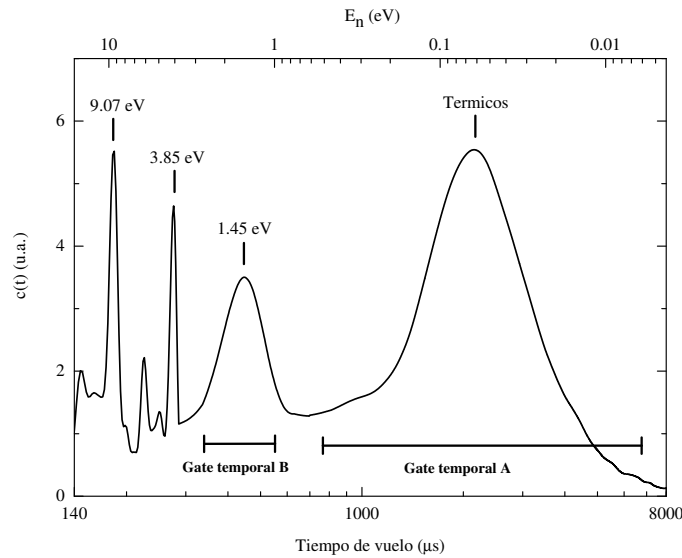


Figura 4.3: Espectro de tiempo-de-vuelo de neutrones obtenido empleando los gammas producidos por la captura de los neutrones en el indio como señal de stop en el codificador de tiempo de vuelo. Se empleó para esta medición una ventana o “gate” temporal amplia entre pulsos de LINAC. Se observan las resonancias de menos energía del indio y una componente Maxwelliana para tiempos más largos (neutrones de menor energía). Se indican las gates temporales, A y B empleadas luego para realizar espectros de altura de pulsos sólo de aquellos gammas que fueran detectados dentro de dichos intervalos de tiempo.

acelerador (ver Sección 1.2.1).

Para procesar los datos obtenidos se tuvo en cuenta la eficiencia del detector de Ge(Li) provista por el fabricante y verificada en nuestro laboratorio antes de realizar este experimento (Sección 1.1.2). Además el sistema de adquisición gamma fue calibrado en energía empleando fuentes de ^{133}Ba , ^{137}Cs y ^{60}Co . La adquisición de los espectros de calibración se realizó quitando la muestra del haz y adquiriendo con el acelerador en funcionamiento normal. Se realizó una medición al comienzo y al final de cada día para controlar la estabilidad del sistema.

La relación entre canal y energía fue lineal entre 50 y 1500 keV, siendo el rango energético de interés para esta muestra en particular de 50 a 500 keV. En la Figura 4.4 se muestran los espectros de altura de pulso obtenidos para las mediciones en las distintas gates temporales luego de calibrar el sistema y corregir los mismos por eficiencia y descontar el fondo.

Puede verse que los espectros de energía de los gammas emitidos por la muestra dependen de la energía de los neutrones absorbidos. Para la *gate* temporal A, corres-

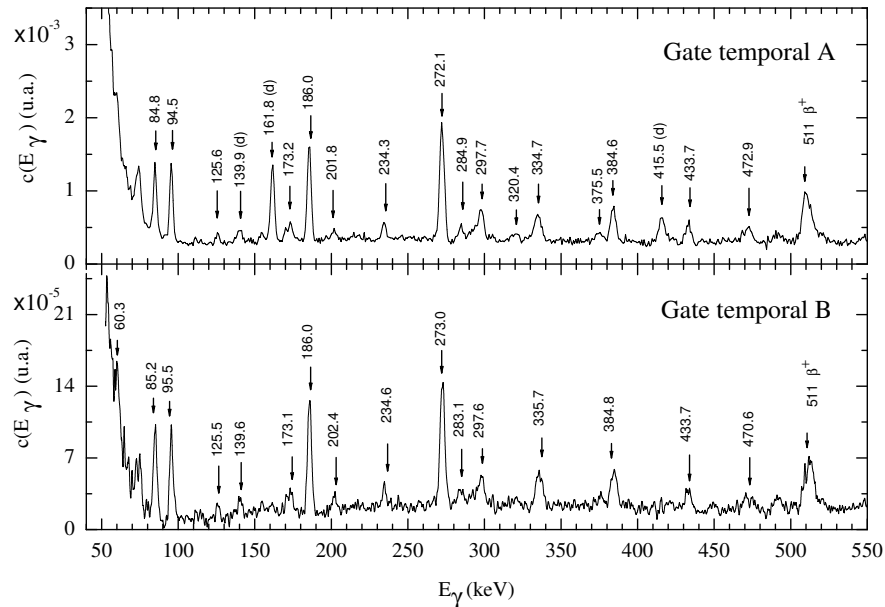


Figura 4.4: Espectros PHA. *Arriba:* emisiones gamma prompt y de decaimiento (líneas indicadas con (d) medidas durante un intervalo temporal que considera los tiempos de llegada a la muestra de neutrones del rango térmico (gate A). *Abajo:* espectro de altura de pulsos de aquellos gammas prompt ocurridos durante un intervalo temporal que coincide con la llegada a la muestra de neutrones con energía en torno a 1,45 eV.

pondiente a neutrones térmicos, se observan tres emisiones originadas en el decaimiento β^- , 139,9 keV, 161,8 keV y 415,5 keV. Dos de estos picos, que han sido señalados con la letra (d) en la Figura 4.4, desaparecen para el espectro correspondiente a los neutrones cuya energía se encuentra en torno a 1,45 eV. Según la referencia [Firestone, 1996], las emisiones de 140 y 415 keV se originan en el decaimiento (de 54 min de vida media) del ^{116}In al ^{116}Sn excitado, sin embargo en el espectro que corresponde a la *gate B*, la emisión de 415 keV ha desaparecido. Esto sugiere que la emisión que se observa de 139,6 keV puede ser atribuida a un gamma *prompt* por absorción de neutrones de 1,45 eV.

En ambos espectros se observa la emisión más intensa en ~ 272 keV. Es por esa razón que se ha elegido el área de ese pico como referencia para calcular las intensidades relativas de las demás líneas. Las áreas se calcularon integrando los picos de modo tal de descartar el área por debajo de una poligonal entre los límites de integración, con el fin de descontar las contribuciones por efecto Compton.

Los valores de intensidad obtenidos fueron corregidos teniendo en cuenta la absorción de neutrones de energías dadas por las *gates* temporales (térmicos y entorno a 1,45 eV), y también por la atenuación de gammas en la muestra (Apéndice A). Las intensidades relativas se compararon con datos de otros autores [Rabenstein *et al.*, 1972; Alexeev *et al.*, 1976]. Para neutrones térmicos se hizo esto con el fin de validar el método de cálculo de intensidades y el procedimiento de corrección por atenuación llevado a cabo. En la Figura 4.5 se muestran las intensidades relativas obtenidas y se las compara con los datos tabulados [Rabenstein *et al.*, 1972; Alexeev *et al.*, 1976].

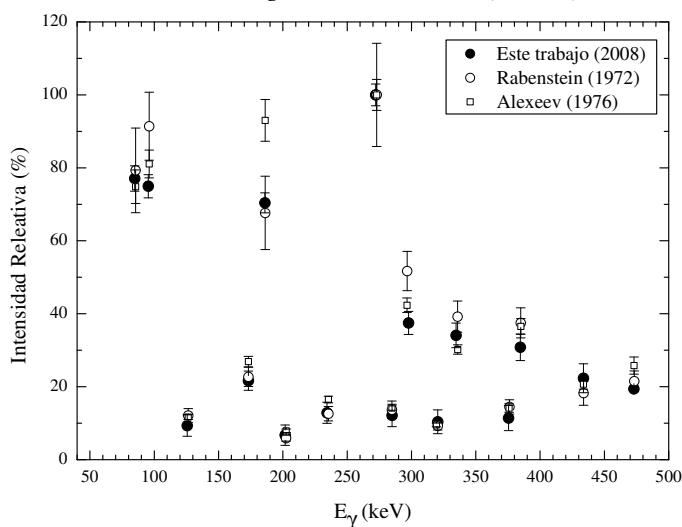


Figura 4.5: *Gamma prompt* por absorción de neutrones térmicos. Se comparan las intensidades relativas obtenidas con otros datos publicados [Rabenstein *et al.*, 1972] y [Alexeev *et al.*, 1976]. Se observa un buen acuerdo entre los resultados obtenidos en este trabajo y los de trabajos previos, lo que valida la técnica de espectrometría empleada y el método de determinación de áreas.

Los datos mostrados en la Figura 4.5 referentes a otros autores, fueron obtenidos con detectores de mayor resolución. Es por eso que para realizar la comparación, los datos originales fueron condensados sumando las intensidades de aquellos picos no resueltos por nuestro sistema. La concordancia observada entre los datos propios y los de otros autores es muy buena.

El objetivo principal del trabajo era extender el conocimiento sobre las emisiones gamma *prompt* del indio, como resultado de la absorción de neutrones de energías entorno a 1,45 eV, ya que los últimos datos disponibles, obtenidos con un Ge(Li), tienen como límite inferior la emisión de 273 keV [Wharer, 1970]. En la Figura 4.6 se muestran las intensidades relativas obtenidas, y desde 273 keV hasta 500 keV se compara con los datos de la referencia citada. La corrección por atenuación de neutrones y

gammas se hizo también para estos datos.

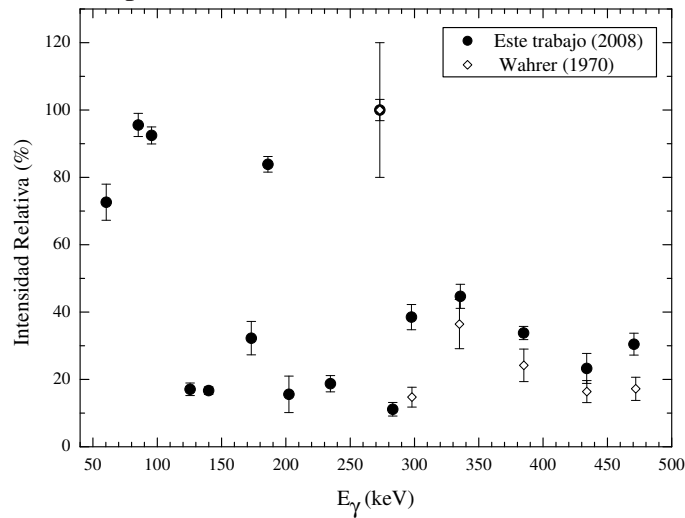


Figura 4.6: Gammas prompt por absorción de neutrones entorno a la resonancia de 1,45 eV en indio. Las intensidades relativas calculadas tienen buen acuerdo con datos previamente publicados [Wahrer, 1970]. El menor valor de energía citado en dicha referencia es de 273 keV, sin embargo en este trabajo se presentan emisiones desde 60 keV.

Los valores obtenidos de intensidad relativa fueron convertidos a intensidades absolutas en unidades de gammas *prompt* emitidos por cada 1000 neutrones absorbidos del rango de energía correspondiente. Para realizar dicha conversión para el caso de absorciones de neutrones térmicos se empleó como referencia la intensidad absoluta para la emisión de 273 keV, (204 ± 10 fotones por cada 1000 neutrones absorbidos) reportada en [Rabenstein *et al.*, 1972]. Para convertir las intensidades relativas en el caso de neutrones entorno a la resonancia de 1,45 eV, se calculó la tasa de absorción para neutrones en la gate B (N_{absB}) como función de dicha tasa para la gate A (N_{absA}) calculando, a partir del espectro del haz incidente (Sección 1.2.1), la relación de población entre neutrones de energías comprendidas por dichas *gates*. La relación entre tasas de absorción obtenida es $N_{absB}/N_{absA} = 0,092 \pm 0,011$, donde la incerteza tiene en cuenta correcciones por tiempo muerto en el detector de neutrones, la eficiencia del detector, el espesor de la muestra y la incerteza al determinar los límites de las *gates* A y B. En la Tabla 4.1 se muestran las intensidades relativas y absolutas obtenidas.

| Térmicos | | | Res. 1.45 eV | | |
|--------------------------|-----------------|-------------------|------------------|-----------------|-------------------|
| E_γ (keV) | I_γ Rel. | I_γ Abs. * | E_γ (keV) | I_γ Rel. | I_γ Abs. * |
| - | - | - | 60.3(15) | 0.726(53) | 110(16) |
| 84.8(10) | 0.770(34) | 157(10) | 85.2(15) | 0.955(34) | 145(20) |
| 95.4(12) | 0.749(31) | 152(9) | 95.5(11) | 0.924(25) | 140(19) |
| 125.6(16) | 0.093(29) | 19(6) | 125.5(14) | 0.170(18) | 25(4) |
| 139.9(19) ^(d) | - | - | 139.6(17) | 0.166(11) | 25(3) |
| 161.8(14) ^(d) | - | - | - | - | - |
| 173.2(26) | 0.216(26) | 44(5) | 173.1(26) | 0.322(49) | 49(10) |
| 186.0(15) | 0.704(27) | 143(8) | 186.0(15) | 0.838(23) | 127(17) |
| 201.8(15) | 0.067(27) | 13(5) | 202.4(11) | 0.155(54) | 23(8) |
| 234.3(16) | 0.128(28) | 26(6) | 234.6(12) | 0.187(24) | 28(5) |
| 272.1(18) | 1.000(29) | 204(11) | 273.0(17) | 1.00(3) | 152(21) |
| 284.9(13) | 0.121(30) | 24(6) | 283.1(23) | 0.111(20) | 16(3) |
| 297.7(21) | 0.374(31) | 76(7) | 297.6(28) | 0.385(37) | 58(9) |
| 320.4(34) | 0.103(32) | 21(6) | - | - | - |
| 334.7(30) | 0.340(33) | 69(7) | 335.7(27) | 0.446(35) | 68(10) |
| 375.5(30) | 0.114(34) | 23(7) | - | - | - |
| 384.6(21) | 0.308(36) | 62(8) | 384.8(24) | 0.337(19) | 51(7) |
| 415.5(20) ^(d) | - | - | - | - | - |
| 433.7(18) | 0.223(39) | 45(8) | 433.9(21) | 0.232(44) | 35(8) |
| 472.9(25) | 0.1940(47) | 39(2) | 470.6(42) | 0.304(32) | 46(7) |

Tabla 4.1: Intensidades de emisiones gamma prompt de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ para neutrones de energías de rango térmico y entorno a 1.45 eV, relativas a la emisión de 273 keV. Emisiones por decaimientos β^- se indican con (d).

* Fotones por cada 1000 capturas neutrónicas empleando como referencia el área de la emisión de 273 keV reportada en [Rabenstein et al., 1972].

4.4. Análisis de resultados

La técnica de espectroscopía empleada y el procesamiento de datos quedaron validados a partir de la comparación realizada para gammas *prompt* por absorción de neutrones térmicos con datos de trabajos previos en el tema (Figura 4.5). En la Figura 4.6 también se muestra un buen acuerdo con los datos de (Wharer, 1970) para gammas *prompt* de energías mayores a 273 keV producidos por absorción de neutrones de energías entorno a 1,45 eV.

Nueve emisiones con energías menores a 273 keV fueron observadas debidas a la absorción de neutrones entorno a la resonancia de 1,45 eV. Tres de esas líneas (60,3 keV, 95,5 keV y 186 keV) fueron reportadas muchos años atrás por (Draper *et al.*, 1958) usando un detector de NaI(Tl). Las otras seis emisiones (85,2 keV, 125,5 keV, 139,6 keV, 173,1 keV, 202,4 keV y 234,6 keV) no se encontraron en la literatura relevada para absorción de neutrones epitérmicos en indio. Si bien las energías de todas las líneas observadas para absorción de neutrones epitérmicos coinciden con aquellas ya conocidas para absorción de neutrones térmicos, como se puede observar en la Tabla 4.1 sus intensidades relativas difieren.

4.5. Conclusiones

Se ha implementado una técnica útil para la caracterización de las intensidades relativas de emisiones gamma *prompt* y su dependencia con la energía de los neutrones absorbidos por una muestra. En este trabajo se aplicó dicha técnica al estudio de una resonancia del indio, pero puede ser aplicada también a otros elementos.

Si bien los resultados no son aplicables directamente en lo que se refiere a los objetivos de este trabajo, la información obtenida ha permitido aportar datos a las bibliotecas de datos nucleares no reportados con anterioridad.

DetECCIÓN DE MATERIAL NUCLEAR: URANIO ALTAMENTE ENRIQUECIDO Y NATURAL

Aquí no valen Doctores,
sólo vale la experiencia,
aquí verán su inocencia
esos que todo lo saben-
por que esto tiene otra llave
y el gaucho tiene su cencia.

Martín Fierro

JOSÉ HERNANDEZ

Los materiales nucleares constituyen uno de los principales ítems entre los requerimientos que debe satisfacer un sistema de detección para instalaciones de control de cargas. Los más importantes son aquellos con los cuales, contando con cantidades relativamente chicas (entre 12 y 50 kg), se podría fabricar un artefacto explosivo de fisión, éstos son el uranio altamente enriquecido ($\geq 93,3\%$) en ^{235}U o el ^{239}Pu . El uranio natural es el insumo principal para el funcionamiento de cierto tipo de centrales nucleoelectricas, lo que lo convierte en estratégico y también objeto de búsqueda en grandes cargamentos. Este Capítulo describe los experimentos y los resultados obtenidos en lo que hace al desarrollo de una técnica que permite la detección de este tipo de materiales empleando una fuente pulsada de neutrones.

5.1. Fisión nuclear por absorción de neutrones

Una reacción $X(a, b)Y$ se conoce como fisión si las masas de los productos, b e Y , son comparables. Si bien algunos núcleos fisionan espontáneamente, en otros casos la fisión se produce si al núcleo le es entregada la energía suficiente ya sea por captura de un neutrón, o la incidencia de protones, iones e incluso fotones γ . En el proceso de

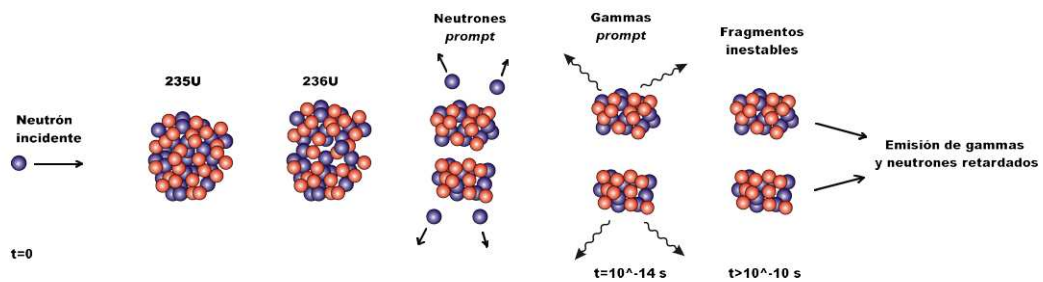


Figura 5.1: Se muestra un esquema del proceso de fisión por absorción de un neutrón en un núcleo de ^{235}U .

fisión, el núcleo blanco pasa por una fase de núcleo compuesto [Meyerhof,1967] luego de la cual se divide en dos o más (fragmentos de fisión) con la emisión de neutrones instantáneos (*prompt neutrons*).

Durante el proceso de fisión se liberan entre dos y cinco neutrones instantáneos, dependiendo del isótopo y de la energía de la partícula incidente. Si se emplean neutrones térmicos, el promedio de neutrones instantáneos emitidos por fisión es de 2,42 para el ^{235}U y 2,88 para el ^{239}Pu [Fetter, 1990].

Los fragmentos de fisión (FF) no son estables debido a que en el proceso ambos conservan la relación neutrón-protón del núcleo compuesto original lo cual los ubica próximos al valle de estabilidad, pero con un exceso de neutrones que favorece la emisión de los neutrones instantáneos mencionados. Por otra parte se producen decaimientos γ y β^- que llevan a los FF a acercarse a la línea de estabilidad. Son los decaimientos β^- de algunos FF los que dan lugar a la emisión de lo que se conoce como neutrones retardados (Figura 5.1).

Dado que los neutrones retardados son emitidos inmediatamente a continuación del decaimiento β^- , su tasa de emisión sigue una ley exponencial similar a la del núcleo padre. Estos neutrones no tienen un espectro de energía sencillo ya que provienen de diferentes isótopos; el valor medio es aproximadamente 450 keV. La cantidad de neutrones retardados producidos por fisión es mucho menor que los instantáneos, siendo 0,016 para ^{235}U irradiado con neutrones térmicos [Fetter, 1990].

Cuando el proceso de fisión finaliza se ha liberado en promedio una energía de aproximadamente 210 MeV, teniendo en cuenta las partículas β y γ emitidas, de las cuales 170 MeV corresponden a los FF y los neutrones emitidos. En la Tabla 5.1 se muestran los valores de energía promedio liberadas en la fisión de un núcleo de ^{235}U [Meyerhof, 1967].

| | |
|--|------------------|
| Energía cinética de los FF ($A \approx 95$ y 140) | 165 ± 5 MeV |
| Energía cinética de neutrones <i>prompt</i> y retardados | 5 MeV |
| Gammas <i>prompt</i> (≈ 5 gammas) | 6 ± 1 MeV |
| Partículas β (≈ 5 betas) | $8 \pm 1,5$ MeV |
| Antineutrinos | $12 \pm 2,5$ MeV |
| Gammas de decaimiento | 6 ± 1 MeV |
| Energía total liberada (Q) | 204 ± 7 MeV |

Tabla 5.1: Energías promedio liberadas en la fisión del ^{235}U .

5.2. Aspectos generales de los experimentos

Para la realización de estos experimentos se empleó el LINAC como fuente pulsada de neutrones. El acelerador se operó a 100 pps, $25\mu\text{A}$ de corriente media y los neutrones producidos fueron moderados según se explicó en la Sección 1.2.1 (empleando dos placas de polietileno de 2 cm de espesor). El haz de neutrones fue colimado de modo de reducir su diámetro desde 16 cm en la posición del moderador a sólo 5 cm a la salida del tubo de vuelo, a 5 metros del moderador aproximadamente.

La muestra empleada consiste en un conjunto de cuatro placas rectangulares de una aleación de Uranio de Alto Enriquecimiento (UAE) y aluminio (de ahora en más mencionado como UAE). Cada placa es de 5×10 cm² y 1 mm de espesor, 18 % en peso de ^{235}U y forman parte de piezas no usadas del viejo combustible del reactor RA-6 de Bariloche con un grado de enriquecimiento en ^{235}U del 90 %. Las cuatro placas fueron unidas con cinta adhesiva de modo que la muestra final era una pieza de 152,82 g en total, 27,5 g correspondientes a isótopo ^{235}U . La dosis intrínseca de la muestra en contacto era de $20 \mu\text{Sv/h}$, debido en gran parte a una emisión gamma espontánea (186 keV) del ^{235}U .

Para los experimentos de detección de uranio natural se empleó parte de un manojó combustible tipo Atucha I limitado a 50 cm. La muestra se armó a partir de trece vainas de zircaloy que en su interior contienen las pastillas de UO_2 sin enriquecimiento (0,71 % de ^{235}U). Cada vaina tiene una longitud de 50 cm y se mantuvieron unidas mediante dos cabezales agujereados fabricados originalmente para ese fin (Figura 5.2)

Debido a que los neutrones instantáneos producidos en la fisión nuclear del uranio son de alta energía, se ha empleado en la mayoría de los experimentos el detector descrito en la Sección 1.1.1. Los detectores de ^3He se conectaron en paralelo a una línea de detección compuesta por un preamplificador, un amplificador y una tarjeta codificadora de TdV en una PC (según se describió en la Sección 1.2.1). Los espectros fueron



Figura 5.2: Muestra empleada para los experimentos de detección de uranio natural. Consiste en trece vainas de un manojo combustible tipo Atucha I limitado a 50 cm. Cada vaina tiene una longitud de 50 cm y un diámetro externo de aproximadamente 1 cm. En su interior contienen pastillas de UO_2 sin enriquecimiento.

registrados en 2000 canales de $4 \mu s$ cada uno empleando una ventana temporal amplia luego de cada pulso del acelerador. En cada condición experimental, las irradiaciones tuvieron una duración de cinco minutos (30000 pulsos de LINAC).

5.3. Evaluaciones preliminares

Los primeros estudios con la muestra de UAE se orientaron a evaluar el desempeño general del detector y verificar que los eventos detectados se debieran a neutrones de fisión por absorción de neutrones térmicos. La geometría experimental utilizada se muestra en la Figura 5.3.

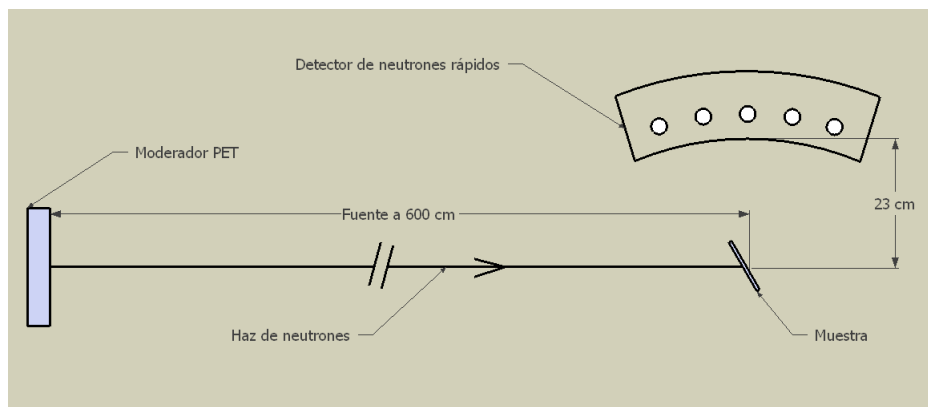


Figura 5.3: Arreglo experimental montado para verificar el correcto funcionamiento de la técnica basada en la detección de neutrones rápidos. Se irradiaron muestras de UAE, aluminio puro y plomo. También se irradió la muestra de UAE colocando un filtro de cadmio en el haz.

Dado que la muestra es una aleación de UAE y aluminio, para evaluar en los experimentos correctamente los eventos de fondo se debía conocer la respuesta del aluminio sin uranio. Para ello se estudió el comportamiento bajo irradiación de una placa de aluminio puro de geometría similar a la muestra con uranio.

Además de contar con una manera de medir el fondo era preciso descartar que los eventos asociados a neutrones de fisión no fueran en realidad debidos a dispersión de neutrones epitérmicos en los núcleos de uranio. Para simular ese efecto se irradió un paralelepípedo de plomo de 5 cm de espesor y $10 \times 20 \text{ cm}^2$ de sección rectangular. Tanto los resultados de irradiar la muestra de UAE, como de las irradiaciones del aluminio y el plomo se muestran en la Figura 5.4.

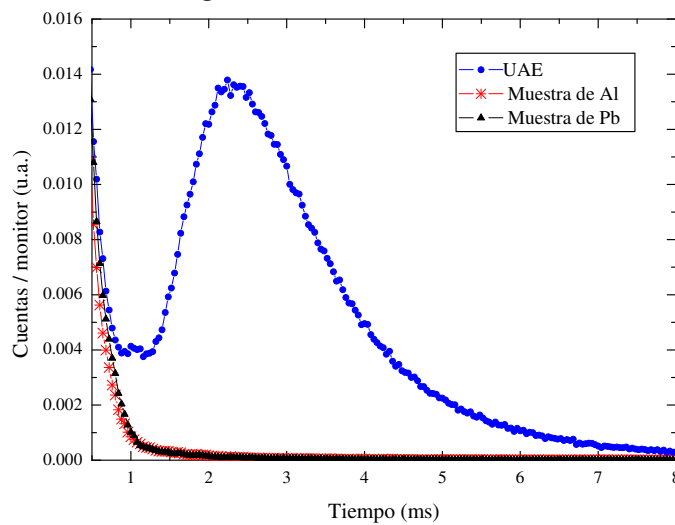


Figura 5.4: Espectros de TdV obtenidos irradiando la muestra de UAE, aluminio y plomo durante 20 minutos (cuatro irradiaciones consecutivas de cinco minutos).

También se hizo una irradiación de la muestra de UAE interponiendo en el haz una lámina de cadmio de 0,8 mm de espesor. Esta prueba se realizó para probar que los eventos de fisión detectados se debían en forma dominante a la absorción de neutrones térmicos. El resultado se puede ver en la Figura 5.5.

Según los resultados de la Figura 5.4, el aluminio no produce señal apreciable en el detector, del mismo modo que tampoco lo hace la muestra de plomo así que los eventos observados al irradiar la muestra son originados en fisiones de los núcleos de ^{235}U .

Por otro lado, del análisis de la Figura 5.5 se desprende que los neutrones de fisión se producen mayoritariamente debido a la absorción de aquellos neutrones con energía “subcadmio”, es decir menor a 0,55 eV.

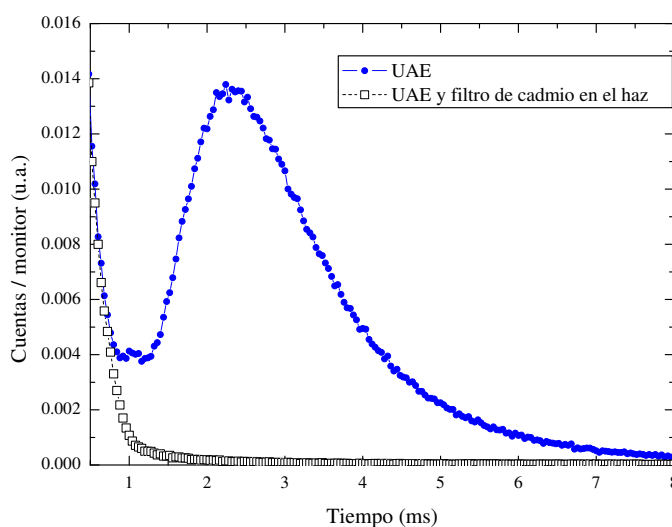


Figura 5.5: La muestra de UAE también se irradió colocando un filtro de cadmio en el haz de neutrones. El espectro de la figura demuestra que los neutrones detectados provienen de la muestra de UAE se producen por absorción de neutrones térmicos.

5.4. Detección de neutrones instantáneos: pruebas de factibilidad

Detección de uranio de alto enriquecimiento

En la Sección 5.3 se montaron experimentos para estudiar el desempeño del detector y probar los conceptos involucrados en la detección de UAE mediante la observación de los neutrones instantáneos de fisión producidos al irradiar el material con neutrones térmicos. Una situación real de detección podría involucrar una situación muy diferente de la representada por dichos experimentos preliminares. La geometría sería el aspecto que más inmediatamente podría sufrir una alteración, principalmente debido a la posición del detector respecto del material a detectar. Sin embargo sería de esperar que dicho material también se encontrara bajo algún tipo de blindaje que ocasional o deliberadamente colocado entre la sustancia, el detector y por supuesto el haz de neutrones, entorpeciera la detección. Esta Sección se dedica a estudiar diferentes aspectos de factibilidad de la técnica desarrollada en condiciones que, aún a escala de laboratorio, se aproximan a casos hipotéticos de geometría y blindaje.

La técnica de tiempo de vuelo utilizada de la manera adecuada permite discernir el cambio en la posición de una muestra irradiada con una fuente pulsada de neutrones,

aún manteniendo fija la posición del detector. Además del aspecto de la sensibilidad a la posición, se explora la respuesta de la muestra de UAE bajo diferentes condiciones, simples pero representativas, de blindajes de alto y bajo número atómico.

Se montó una geometría experimental que buscó representar una situación tecnológicamente factible en la que una lámina de acero de 3 mm, similar a la que podría conformar la pared de un contenedor portuario, se interpone en una posición fija entre la muestra y el conjunto formado por el haz de neutrones y el detector. El primer experimento realizado con esta configuración consistió en medir el espectro de “tiempo de vuelo” irradiando la muestra en dos posiciones distintas respecto del detector (Figura 5.6).

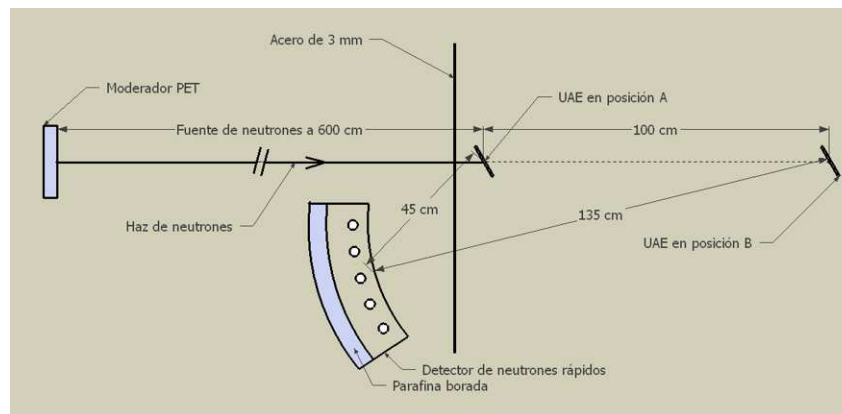


Figura 5.6: Sensibilidad a la posición de la muestra. En la figura se muestra el arreglo experimental utilizado para demostrar que con la técnica propuesta es posible distinguir entre posiciones distintas de la muestra sobre el haz de neutrones. El detector se mantuvo en una posición fija y la muestra se irradió a 45 y 135 cm del detector (Posiciones A y B respectivamente).

La muestra de UAE se irradió a 45 cm (posición A) y a 135 cm (posición B) del detector (esto es a 600 y a 700 cm de la fuente de neutrones respectivamente), durante 20 minutos. Del mismo modo se tomaron en ambas posiciones mediciones de fondo, irradiando en las mismas condiciones la muestra de aluminio. Los resultados de la irradiación en ambas posiciones se pueden ver en la Figura 5.7. En ambos espectros de tiempo de vuelo, el fondo fue restado para hacer más evidente el efecto del movimiento, aunque con los espectros crudos también es posible notarlo. Lo que se advierte al ver la Figura 5.7 es que de mover la muestra casi un metro sobre el haz de neutrones, el máximo del espectro pasó de estar en 2 ms (posición A) a 2,3 ms (posición B).

Usando básicamente la misma configuración experimental (Figura 5.8) se estudiaron diferentes condiciones de blindaje (dos de las mismas en combinación con la pared

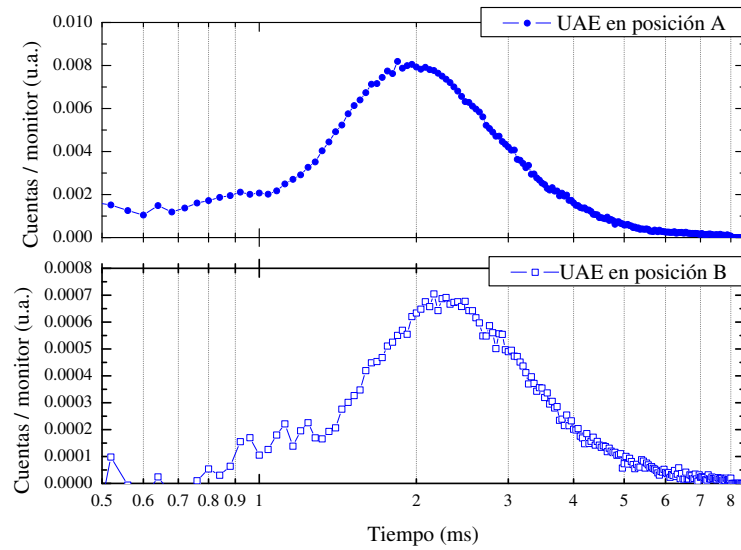


Figura 5.7: Espectros de TdV de la muestra de UAE en las posiciones A (45 cm del detector) y B (135 cm del detector). Un cambio de posición de un metro a lo largo del haz de neutrones se traduce en un cambio de 300 μ s en la posición del máximo del espectro. En ambos espectros se restó el espectro de fondo (muestra de aluminio).

de acero) con la muestra colocada a 45 cm del detector (posición A).

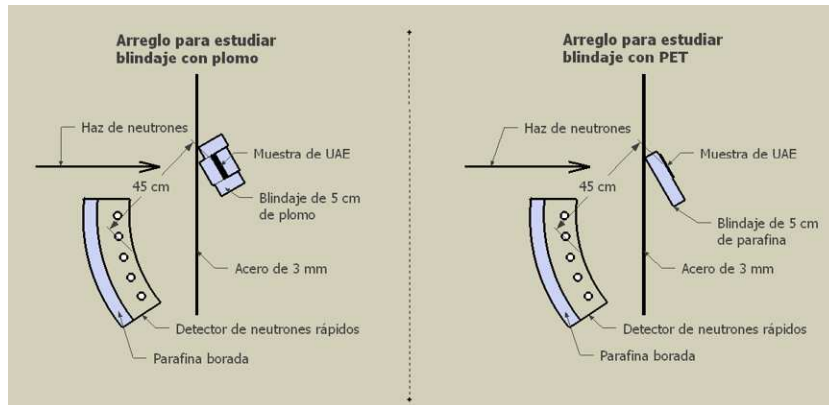


Figura 5.8: Arreglo experimental montado para evaluar la respuesta de la muestra de UAE irradiando la misma bajo distintas condiciones de blindaje. Se la irradió cubierta por 5 cm de plomo y también detrás de 5 cm de polietileno.

En primer lugar la muestra de UAE se irradió oculta bajo un blindaje de plomo de 5 cm de espesor y del mismo modo se obtuvo el fondo de esta medición irradiando la muestra de aluminio en lugar del UAE (Figura 5.9). Las pruebas con plomo se

realizaron pensando en dos posibles casos por los que sería el blindaje elegido para ocultar el uranio. Una situación podría ser que se buscara blindar la radiación γ saliente generada espontáneamente por el ^{235}U y otros posibles isótopos minoritarios para no ser detectados por un sistema fronterizo pasivo detector de fotones. El otro escenario considera el caso de un manifiesto de carga con productos de alto número atómico y un sistema de control radiográfico. En este caso un operador que espera ver contornos “oscuros” en la imagen, podría no advertir la presencia del uranio, con o sin blindaje propio.

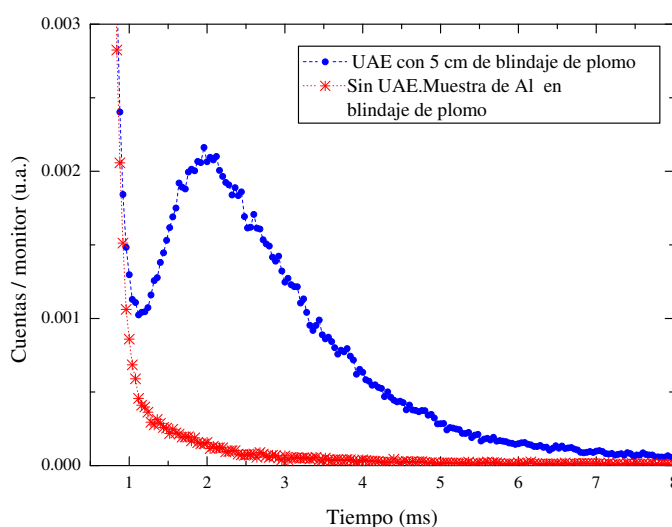


Figura 5.9: Espectro de TdV de la muestra de UAE oculto bajo 5 cm de plomo, comparado con el de una muestra de Al bajo el mismo blindaje. Ambos espectros se obtuvieron luego de cuatro irradiaciones consecutivas de cinco minutos.

Luego del experimento con el blindaje de plomo se realizó un cambio en la configuración quitando el plomo y colocando una placa de polietileno de 5 cm de espesor pegado a la muestra de UAE y ocultando la misma de la vista del detector (Figura 5.10). Se debe hacer notar que esta situación es particularmente desfavorable ya que no hay reflector de neutrones de fisión producidos hacia el lado contrario al detector. En un caso de ocultamiento deliberado se podría esperar que la muestra estuviera completamente rodeada de moderador. Por otro lado el polietileno es uno de los materiales hidrogenados con mayor cantidad de átomos de hidrógeno por unidad de volumen. Este tipo de material sería probablemente el más adecuado si se quisiera ocultar una sustancia de un haz de neutrones térmicos, ya que la dispersión del haz daría como resultado un flujo menor sobre la muestra.

Los espectros de tiempo de vuelo de las figuras previas son el resultado de irradiar

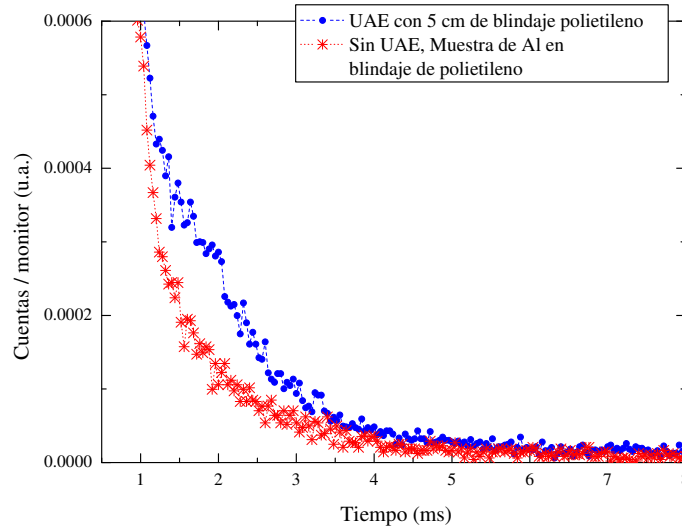


Figura 5.10: Espectro de TdV de la muestra de UAE colocada detrás de 5 cm de polietileno, comparado con un espectro de fondo (muestra de aluminio bajo el mismo blindaje). Ambos espectros se obtuvieron luego de cuatro irradiaciones consecutivas de cinco minutos.

la muestra cuatro veces consecutivas durante cinco minutos de duración. Sin embargo para los experimentos sobre blindajes de plomo y polietileno la muestra se irradió en más oportunidades (siete y seis ocasiones respectivamente).

Dado que la posición de la muestra es conocida y, despreciando los tiempos de vuelo de los neutrones de fisión hacia el detector y de moderación antes de producir un pulso en el tubo de helio, es posible estimar el instante correspondiente de llegada a la muestra de un neutrón de 0,2 eV. Este valor de energía que puede parecer caprichoso corresponde al máximo local de la sección eficaz de absorción en cadmio y se toma, en este caso, como corte entre neutrones térmicos y epitérmicos. Usando dicho valor de referencia se calcula un canal de tiempo a partir del cual todos los neutrones se consideran térmicos y por lo tanto capaces de producir reacciones de fisión en la muestra. Integrando los espectros de tiempo de vuelo de cinco minutos desde el “tiempo de corte” se obtienen los valores que se muestran en la Figura 5.11, donde son comparados con el límite superior del fondo calculado como promedio de integrales (usando los mismos límites de integración) más tres veces la desviación estándar de dicho promedio.

En otro estudio sobre blindajes, se armó una configuración análoga al caso del plomo (Figura 5.8) pero rodeando la muestra con paquetes de harina de trigo. Cada bulto era de 1 kg, de aproximadamente 9 cm de espesor y la muestra de UAE quedó comple-

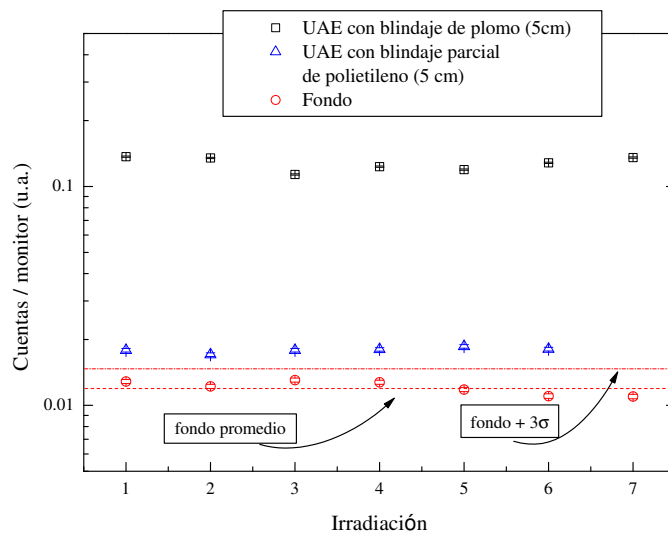


Figura 5.11: Se muestran los valores calculados al integrar cada espectro de tiempo de vuelo (obtenidos irradiando la muestra durante 5 minutos) desde el tiempo correspondiente a la llegada a la muestra de un neutrón de 0,2 eV. Se analizan de este modo los casos en que la muestra de UAE se ocultó con plomo y polietileno.

tamente oculta entre los 4 kg de harina. Circunstancialmente, en esta oportunidad no se colocó la pared de acero entre el detector y la muestra. Al igual que la muestra de aluminio para la medición del fondo, el espectro con UAE oculto en harina se obtuvo luego de cuatro irradiaciones consecutivas de cinco minutos (Figura 5.12).

Tanto para el blindaje de polietileno como con harina se calculó la diferencia entre el espectro con UAE y su fondo (Figura 5.13). Se observa un número mayor de cuentas con el blindaje de harina que con el polietileno, hasta tres veces más neutrones. Esto se puede deber a dos factores: por un lado la menor densidad de la harina permite la llegada de mayor cantidad de neutrones térmicos del haz al UAE, además la geometría del blindaje de harina que rodea completamente la muestra y de esta manera refleja parte de los neutrones rápidos que de otra manera hubieran escapado en dirección contraria a la posición del detector.

Dentro de esta etapa de pruebas de factibilidad se diseñó un experimento de tipo mixto. Uno de los objetivos era poner de manifiesto la verdadera importancia de recubrir los detectores en cadmio para la detección de neutrones instantáneos. El otro objetivo fue implementar un ocultamiento de material nuclear con objetos que fueran combinación de materiales de alto número atómico y moderadores/dispersores de neutrones. La combinación buscada se encuentra por ejemplo en un gabinete de una computadora de escritorio, donde la carcasa es metálica (pueden ser de chapa, acero o

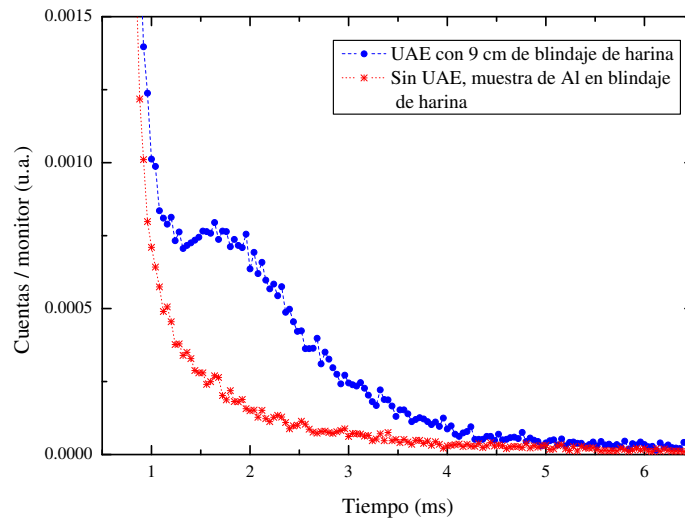


Figura 5.12: Espectro de TdV de la muestra de UAE colocada entre cuatro paquetes de harina de 9 cm de espesor, comparado con un espectro de fondo (muestra de Al bajo el mismo blindaje). Ambos espectros se obtuvieron luego de cuatro irradiaciones consecutivas de cinco minutos.

aluminio), y la placa madre y los componentes electrónicos de material hidrogenado (plásticos) y de bajo número atómico (silicio, etc).

Seis detectores de ^3He se conectaron en paralelo a un preamplificador. Colocados en forma vertical, se repitió el concepto geométrico de las Figuras 5.6 y 5.8 donde una placa de acero de tres milímetros se interpone entre la “muestra” o la carga a irradiar, y el conjunto formado por el haz de neutrones y los detectores. Entre los detectores y el acero se colocó (pegado a los detectores) una placa de 3 cm de polietileno para moderar los neutrones de fisión, mientras que por detrás otra placa de 5 cm cumplió la función de reflector. Una lámina de cadmio de 0,8 mm de espesor admitía ser colocada rodeando los detectores y el moderador.

Cuatro gabinetes se colocaron perpendiculares al haz de neutrones, por detrás de la pared de acero y a 24 cm de los detectores (Figura 5.14).

Entre los dos primeros gabinetes se colocó la muestra de UAE (a 42 cm del detector) y se realizaron irradiaciones de cinco minutos. El procedimiento se llevó a cabo también removiendo la lámina de cadmio que rodeaba los detectores. Tanto con cadmio como sin éste, se tomaron mediciones de fondo removiendo la muestra e irradiando sólo los gabinetes en irradiaciones de cinco minutos. Los espectro de tiempo de vuelo, sobre cuatro irradiaciones en cada caso, se muestran en la Figura 5.15.

Como se vuelve evidente por el resultado de la Figura 5.15, una lámina de cadmio es de fundamental importancia para observar neutrones de fisión instantáneos. De otra

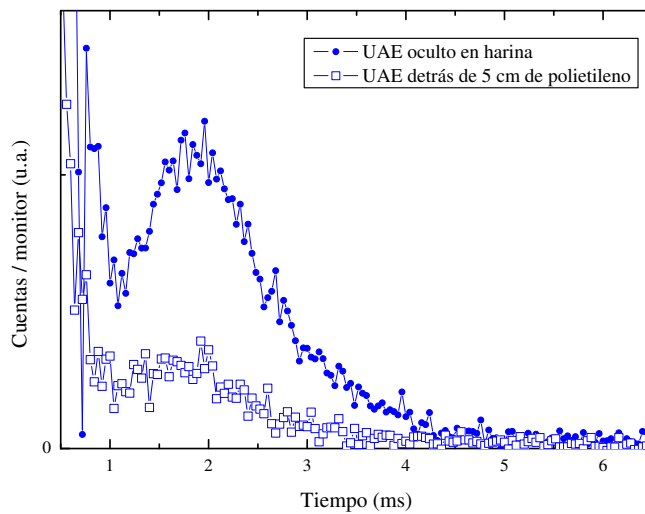


Figura 5.13: Neutrones netos detectados debidos a fisiones en la muestra de UAE blindada por 9 cm de harina y también por 5 cm de polietileno. El blindaje de harina rodea completamente la muestra mientras que el polietileno sólo oculta el UAE de la vista del detector y el haz. El área bajo la curva, desde el tiempo correspondiente a neutrones de 0,2 eV, es aproximadamente tres veces mayor en el espectro donde la muestra se encuentra oculta bajo harina.

manera los neutrones del haz que resultan dispersados por el volumen a interrogar producen una señal de tal magnitud en los detectores que resulta virtualmente imposible determinar la presencia del material físil.

Manteniendo la geometría y la lámina de cadmio rodeando los detectores, el UAE se reubicó para quedar ubicado entre el segundo y el tercer gabinete, de modo tal que el detector y la muestra quedaron separados por 60 cm, y donde se interponen 3 mm de acero y dos gabinetes completos (carcasa y placa-madre). Sumando y normalizando cuatro espectros de cinco minutos de irradiación, se obtuvieron los resultados de la Figura 5.16 para el UAE oculto por uno o dos gabinetes de computadora.

Considerando como límite inferior el tiempo que le toma a un neutrón de 0,2 eV llegar al gabinete más cercano al moderador, se integraron los espectros de tiempo de vuelo de todas las irradiaciones con muestra y del fondo (sólo gabinetes, sin muestra de UAE). Sobre los valores para el fondo se calculó el valor medio y la desviación estándar para considerar a partir de ese dato el límite de detección dado por tres desviaciones estándar por sobre el valor medio (Figura 5.17).

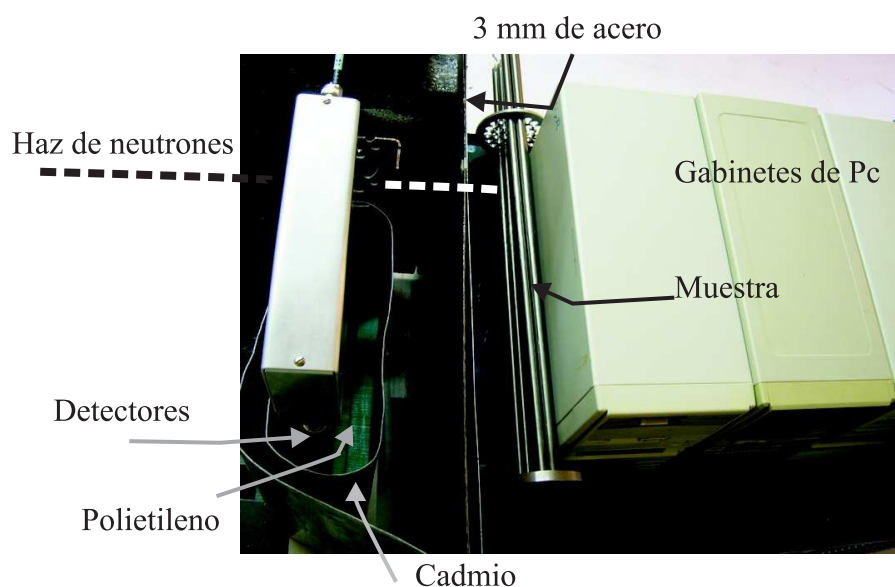


Figura 5.14: Geometría empleada para irradiar muestras de uranio natural y enriquecido ocultos detrás de 3 mm de acero y uno o dos gabinetes de computadoras completos (carcasa y placa madre). Se muestra el detector de neutrones rápidos desmontable. Tiene 6 detectores de ^3He , 3 cm de moderador (hacia la muestra) y el conjunto está rodeado por una placa de cadmio de 0,8 mm de espesor que puede ser removida.

Detección de uranio natural

En otro experimento de factibilidad se realizaron las pruebas de detección de vainas de combustible nuclear tipo Atucha I descritas en la Sección 5.2. Trece de dichas vainas, con una cantidad total de 6,05 kg de UO_2 se irradiaron también empleando la pared de acero y los gabinetes de computadora. De acuerdo a las especificaciones del fabricante, la cantidad total de isótopo de ^{235}U es 38,376 g, aunque en el mejor de los casos, debido a la geometría del haz y de la muestra se irradió solo la décima parte de esa cantidad. Al igual que lo realizado con el UAE, se utilizó el manojito detrás de uno o dos gabinetes realizando en cada caso irradiaciones de cinco minutos, del mismo modo que las irradiaciones para obtener el fondo, irradiando la misma geometría sin las vainas. Para cuatro irradiaciones consecutivas se obtuvieron los espectros que se muestran en la Figura 5.18.

Al igual que se hizo para el UAE, los espectros de tiempo de vuelo para las vainas se integraron desde el tiempo que corresponde a un neutrón de 0,2 eV llegando al primer gabinete, del mismo modo que los fondos para los cuales se calculó el valor medio y el límite de detección de tres desviaciones estándar (Figura 5.19).

Lo que se desprende de los últimos resultados es que la técnica desarrollada para la

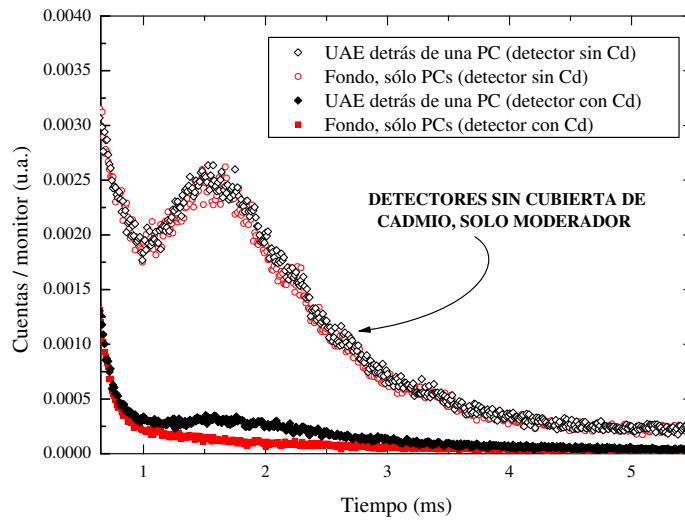


Figura 5.15: Se irradió la muestra de UAE a través de un blindaje de 3 mm de acero (simulando la pared de un “container”) y el gabinete de una computadora de escritorio. Se hicieron cuatro irradiaciones de cinco minutos en cada caso, empleando una lámina de cadmio para disminuir el fondo y removiendo la misma para observar la diferencia.

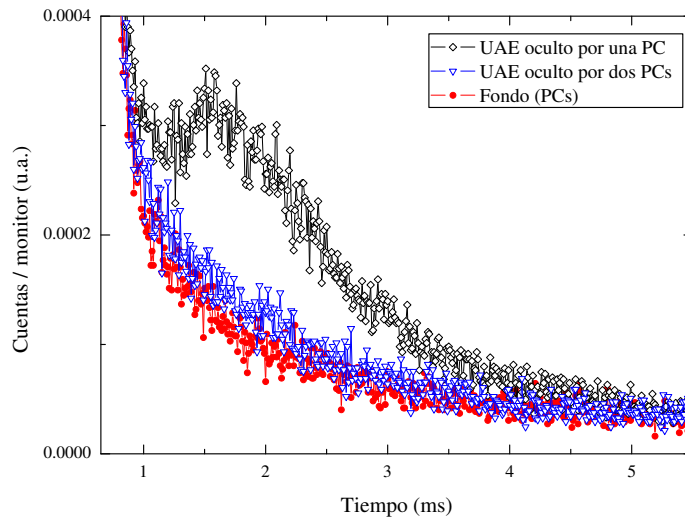


Figura 5.16: Espectros de “tiempo de vuelo” obtenidos con la muestra de UAE a 42 y 60 cm del detector; oculta detrás de una y dos PCs respectivamente (además de 3 mm de acero). En todos los casos se trata de la suma de cuatro irradiaciones de cinco minutos.

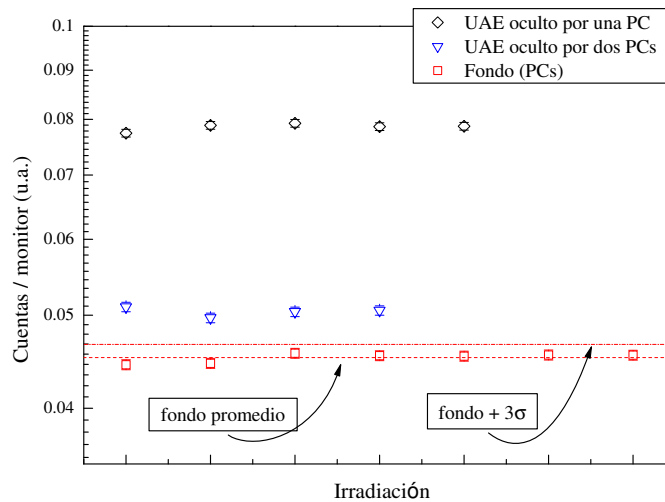


Figura 5.17: Integrales de los espectros de tiempo de vuelo para la muestra oculta por uno y dos gabinetes de computadora más una pared de acero de 3 mm. El límite inferior de integración corresponde al tiempo que a un neutrón de 0,2 eV le tomaría llegar al gabinete más próximo. Cada punto corresponde a una irradiación de cinco minutos.

detección de neutrones instantáneos de fisión también es útil si una pequeña cantidad de UAE o uranio natural se encuentran disimulados entre objetos que combinan tanto materiales absorbentes de radiación gamma como dispersores de neutrones térmicos. Además cabe destacar que la relación entre neutrones de fisión detectados y el fondo es casi un 50 % superior, a igual blindaje y distancia al detector, en el caso del UAE (sólo 27 g) que para las vainas de combustible, de masa muy superior pero solamente un 0,7 % de ^{235}U .

La factibilidad de la detección de material nuclear por medio de neutrones instantáneos de fisión irradiando una carga con neutrones térmicos es muy alta. En todos los casos de blindajes estudiados, tanto con materiales hidrogenados, de alto número atómico y mixtos, los límites de detección, establecidos en tres desviaciones estándar del fondo, fueron superados. Inclusive a distancias entre el detector y la muestra de hasta 60 cm con obstáculos que se interponen tanto a la llegada de los neutrones del haz incidente como en el arribo al detector de los neutrones de fisión (en el segundo aspecto con la ventaja de ser de alta energía y más difícil su absorción en un medio). Agregado al hecho de poder establecer si el material se encuentra o no presente, la técnica brinda la posibilidad de determinar la posición de la que provienen los neutrones de fisión con, al menos, 90 cm de resolución (ver Figura 5.7) lo cual constituye la tercera parte del ancho total de un contenedor portuario de cargas.

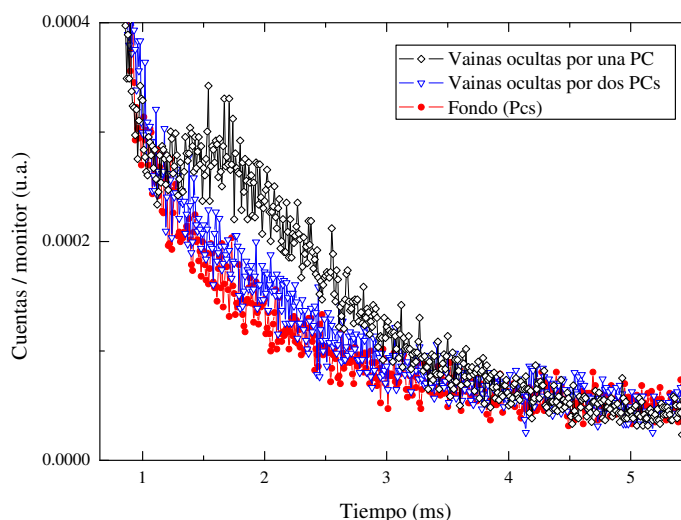


Figura 5.18: Espectros de tiempo de vuelo obtenidos irradiando parte de un manojó de vainas de elemento combustible tipo Atucha I a través de un blindaje compuesto por 3 mm de acero, uno y dos gabinetes de computadora hasta un máximo entre la muestra y el detector de 60 cm. Todos los espectros son sumas de cuatro espectros obtenidos en irradiaciones de cinco minutos.

Buena parte de los resultados que se han mostrado en las Secciones 5.3 y 5.4 pertenecen a un trabajo ya aceptado para su publicación en una revista internacional especializada [Tartaglione, 2008].

5.5. Detección mediante neutrones retardados

En la sección 5.1 se explicó acerca del origen de los neutrones retardados que se producen luego de la irradiación de UAE con neutrones de baja energía. Dado que son los materiales físis los únicos que responden de esta manera, se estudió la factibilidad de aprovechar este fenómeno como concepto de aplicación de una técnica para la detección de materiales de este tipo, en particular UAE.

Se realizaron experimentos empleando dos modalidades distintas de detección. En un caso se utilizó el detector de neutrones rápidos ya descrito, empleado antes para la detección de neutrones instantáneos y la geometría experimental mostrada en la Figura 5.3. En este caso el procedimiento consistió en contar con un escalímetro, los eventos producidos durante 40 o 50 segundos en intervalos de 10 segundos cada uno luego de una irradiación con el LINAC. El tiempo de irradiación de la muestra fué en algunos casos de 5 minutos y en otros 20 minutos. El fondo se obtuvo irradiando

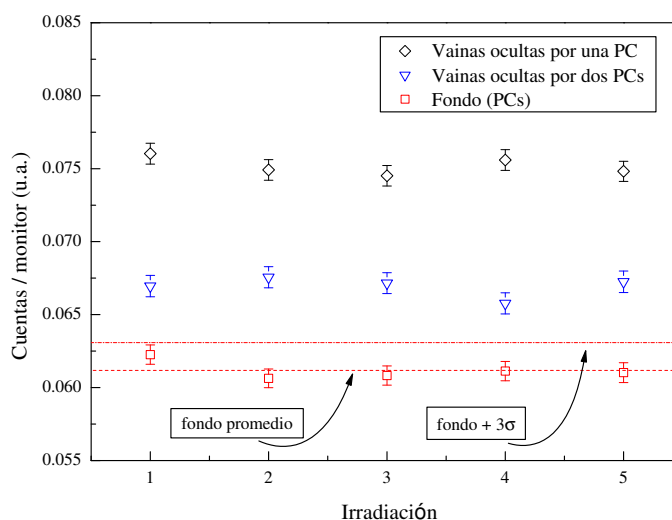


Figura 5.19: Integrales de los espectros de tiempo de vuelo para la muestra oculta por uno y dos gabinetes de computadora más una pared de acero de 3 mm. El límite inferior de integración corresponde al tiempo que a un neutrón de 0,2 eV le tomaría llegar al gabinete más próximo. Cada punto corresponde a una irradiación de cinco minutos.

durante dos series de 20 minutos la muestra de aluminio puro ya descrita. En la Figura 5.20 se muestra el número de eventos por cada intervalo de 10 segundos luego de una irradiación de la muestra durante 20 minutos. El fondo mostrado para cada intervalo temporal está dado por el valor medio calculado sobre dos series de 20 minutos.

Si se consideran los eventos integrados en 20 o 40 segundos después de la irradiación el contraste entre fondo y “muestra” se vuelve más notorio (Figura 5.21). Estos resultados muestran que es posible también observar neutrones retardados con el mismo detector con el que se observan los neutrones instantáneos y que no es necesario irradiar durante largos períodos de tiempo o esperar mucho tiempo después de la irradiación para notar la presencia de una pequeña cantidad de UAE.

En otra serie de experimentos en cambio, se empleó un único detector de neutrones de ^3He (Sección 1.1.1) colocado a 20 cm de la muestra. Dicho detector tenía además una placa de polietileno de 2 cm de espesor a modo de reflector de neutrones colocada por detrás, en dirección contraria a la posición de la muestra (Figura 5.22). En este experimento, la muestra se ocultó entre dos placas de polietileno de 5 cm de espesor. Como antes, para medir el fondo la muestra fue reemplazada por aluminio puro.

En cada caso, con muestra de UAE o aluminio, se realizaron ocho irradiaciones de cinco minutos. Luego de cada irradiación, se adquirió un espectro en modo tiempo

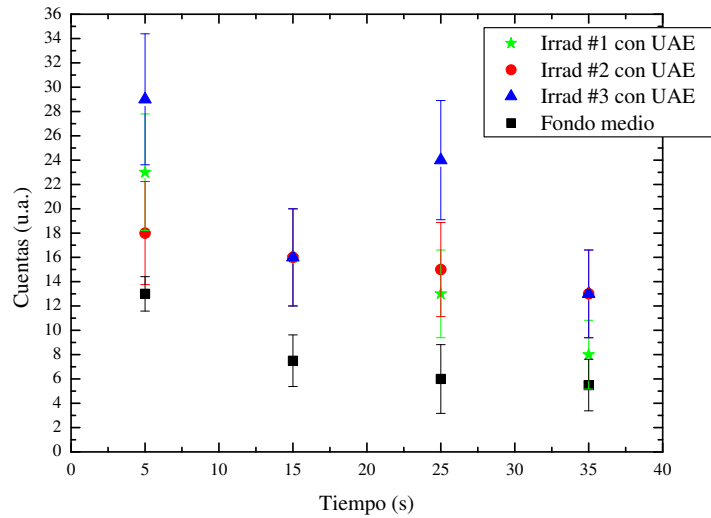


Figura 5.20: Se irradió la muestra de UAE en tres oportunidades, durante 20 minutos. Lo mismo se hizo con la muestra de aluminio dos veces para evaluar el fondo. En la figura se muestran las cuentas cada 10 segundos, desde que termina la irradiación hasta 40 segundos después. Los puntos correspondientes al fondo se obtuvieron promediando las dos irradiaciones de la muestra de aluminio.

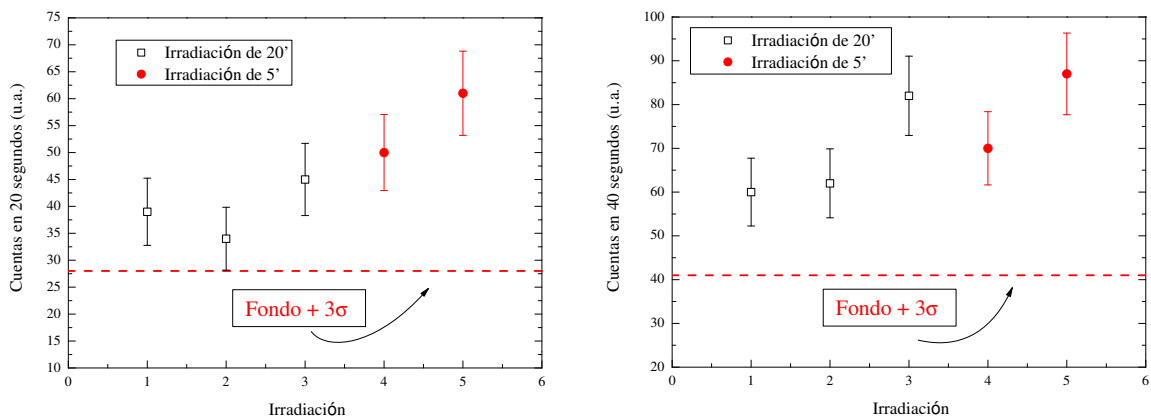


Figura 5.21: Las cuentas integradas sobre un tiempo de 20 segundos (izquierda) y de 40 segundos (derecha) para irradiaciones de la muestra de 20 y 5 minutos. Se muestra también en línea punteada el valor integrado promedio de fondo más tres veces la desviación estándar.

(MCS) de 1500 canales de 0,1 s de duración cada uno, empleando el codificador de tiempo de vuelo (Figura 5.23).

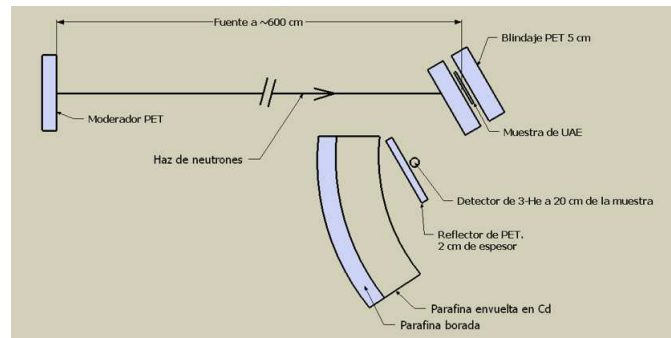


Figura 5.22: Geometría empleada para medir neutrones retardados con un detector de ^3He desnudo.

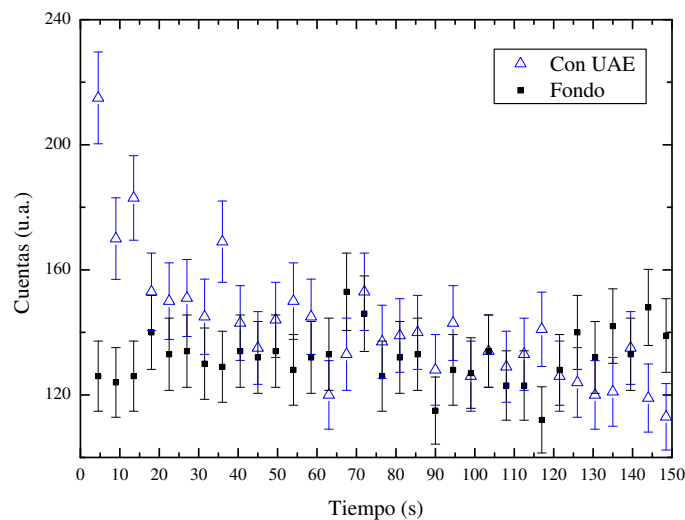


Figura 5.23: Espectro de decaimiento por neutrones retardados medidos con un detector de ^3He sin moderador, solo con un reflector de polietileno de 2 cm de espesor colocado por detrás. Se muestran las cuentas sumadas y agrupadas en divisiones de 4,5 s para las ocho irradiaciones con la muestra de UAE y de aluminio (Fondo). La muestra de UAE o el aluminio se colocó entre dos placas de polietileno de 5 cm de espesor a modo de blindaje neutrónico. Se observa que luego de 50 s la cantidad de neutrones detectados no supera en promedio las cuentas del fondo.

Una pregunta que surgió durante este experimento es si existe un tiempo óptimo durante el cual contar neutrones retardados después de una irradiación de modo de lograr el mejor contraste con el fondo. Claro que cuanto más corto fuera este tiempo contribuiría a agilizar la detección de material nuclear en una instalación aduanera de

tipo industrial. Para tratar de contestar la pregunta planteada se procedió de la siguiente forma con los datos: cada espectro de decaimiento, tanto en presencia de UAE o de fondo, se integró acumulativamente desde el instante inicial t_0 (finalizada la irradiación) hasta un tiempo t_f posterior, donde t_f son todos los tiempos entre 0,2 y 150 segundos y el paso de integración es de 0,1 s (*dwell time* de los espectros de tiempo). Se definió una Figura de Mérito (FOM) que en base a los datos permitiera contestar la pregunta planteada. Dicha FOM se define como:

$$FOM = \frac{\bar{M} - \bar{F}}{\sqrt{\sigma_M^2 - \sigma_F^2}}, \quad (5.1)$$

donde \bar{M} y \bar{F} se refiere al valor medio de cuentas por UAE y fondo respectivamente, sobre ocho series en cada caso y las σ_i se refieren a la desviación estándar para el caso del UAE, y la desviación estándar de la muestra para el caso del fondo. Este FOM tal como está definido es función del tiempo de integración después de una irradiación, y estaría indicando el comportamiento, en promedio, de un único detector (Figura 5.24).

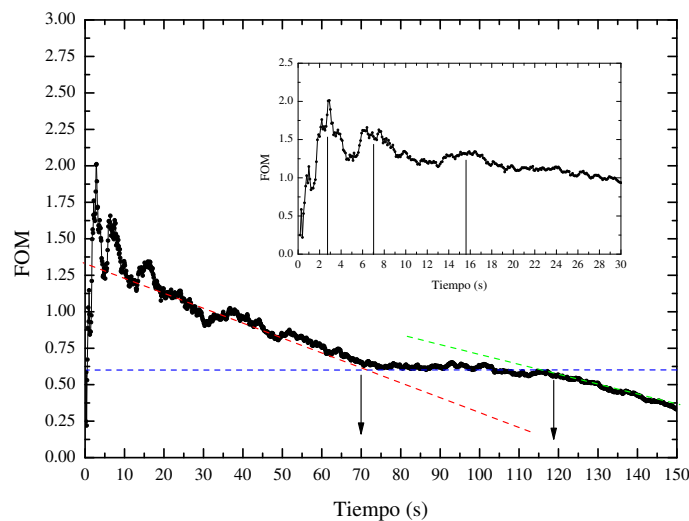


Figura 5.24: Se muestra una figura de mérito que permite ver cuánto tiempo conviene contar neutrones retardados con un solo detector luego de una irradiación para obtener el mejor contraste con el fondo. Cada espectro de tiempo se integró sobre rangos crecientes de tiempo. Los resultados, para rangos de tiempo iguales, en las series correspondientes a la irradiación de la muestra y al fondo se promediaron y de esta forma se calculó FOM.

En las Figura 5.24 se señalan con líneas punteadas diferentes rangos en que la curva en cuestión presenta un comportamiento o tendencia característica. Un primer rango

(rojo) va desde 1 hasta aproximadamente 70 segundos, una segunda zona (azul) de 70 a 120 y otra de 120 en adelante (verde). Analizando la curva de la FOM se observa que el cociente entre los valores que toma la curva para los primeros dos máximos (que ocurren aproximadamente en 2,9 y en 7 segundos) y de la meseta de la zona azul es alrededor de 2,4, lo cual indica que existe una enorme diferencia entre contar neutrones durante tres o siete segundos luego de la irradiación que hacerlo durante un minuto o más. En las Figuras 5.25 y 5.26 se muestran las cuentas acumuladas durante 2,9 y 50 segundos después de la irradiación y su relación con el fondo promedio y un límite de detección dado por tres desviaciones estándar de dicho promedio.

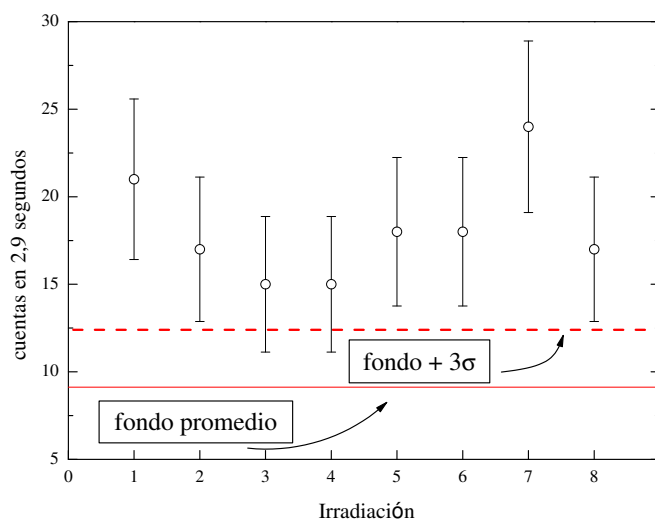


Figura 5.25: Contaje de neutrones retardados hasta 2,9 segundos posteriores a las irradiaciones. La línea roja continua representa el valor medio del fondo (sobre ocho mediciones), también integrado 2,9 segundos y la línea punteada un límite de detección establecido en tres veces la desviación estándar de dicho valor medio.

5.6. Conclusiones

La detección de neutrones retardados se ha realizado tanto con un detector de neutrones dotado de moderador y blindaje de cadmio como por un detector sin moderador, solamente un reflector que mejore su eficiencia. El tiempo de irradiación de la muestra, según los resultados y como era de esperar, no parece modificar el número de neutrones retardados que se producen.

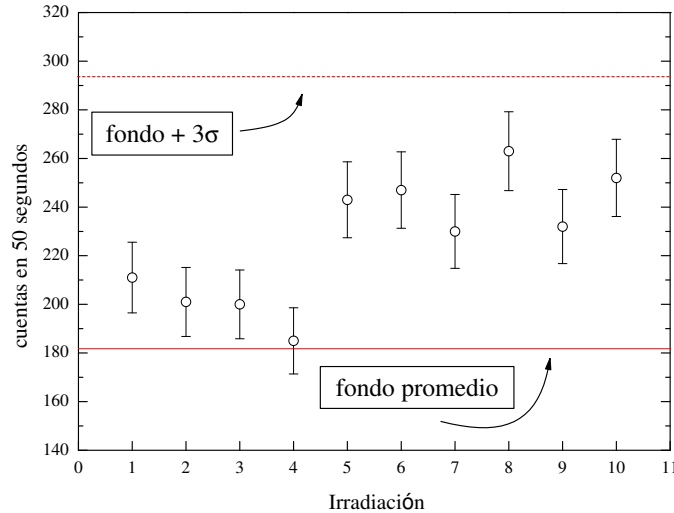


Figura 5.26: Contaje de neutrones retardados hasta 50 segundos posteriores a las irradiaciones. La línea roja continua representa el valor medio del fondo (sobre ocho mediciones), también integrado 50 segundos y la línea punteada un límite de detección establecido en tres veces la desviación estándar de dicho valor medio.

El detector de neutrones con moderador incluido, tiene la ventaja de servir al mismo tiempo para contar neutrones de fisión instantáneos con máxima relación señal-fondo. De esta manera, un sistema de alerta cuyo fin fuera el contaje de neutrones por sobre el fondo durante la irradiación y luego de ésta con el mismo detector, difícilmente podría atribuir un resultado positivo a algo que no fuera la presencia de material fisible en el volumen interrogado.

Un detector desnudo, dotado sólo con un reflector sólo sería útil para neutrones retardados y tendría, luego de contar tres segundos después de la irradiación, el papel de confirmar, lo que el detector principal (con moderador y cadmio) dió como resultado en una primera instancia. Cabe resaltar que ésta modalidad de detección resultaría especialmente útil cuando el UAE estuviese rodeado por un medio altamente moderador, tal que los neutrones salientes fuesen ya del rango térmico.

Los resultados también se pueden expresar en términos de límites de detección. Por ejemplo para el caso del UAE blindado con 5 cm de plomo y a 45 cm del detector, suponiendo que se irradió el total de material fisible (27 g), el límite de tres veces la desviación estándar del valor medio del fondo corresponde a una masa de aproximadamente 3 gramos de UAE. Normalizado por unidad de ángulo sólido (Ω) y neutrones incidentes (n) (teniendo en cuenta el área del detector, la distancia a la muestra, el flujo

incidente y el tiempo de irradiación) se tiene que tal límite inferior es $7,44 \cdot 10^{-10} \text{ g/n } \Omega$. Extrapolando a un portal compuesto de dos paneles de 40 cm de ancho y 200 cm de altura a cada lado de un contenedor, y una muestra colocada en el centro del contenedor el límite de detección es de $6,5 \cdot 10^{-10} \text{ g/n } \Omega$, o sea irradiando 2 minutos con una fuente de 10^6 n/s se podrían detectar cantidades desde 0,05 gramos de UAE. Las estimaciones se hicieron para una muestra de UAE blindada con 5 cm de plomo, uno de los casos más favorables. Dado que la señal es aproximadamente 7 veces menos si el blindaje es polietileno, en ese caso el límite de tres sigma para el portal sería de 0,35 gramos de UAE.

Discusión General y Conclusiones

...esto que acabamos de escuchar,
no solamente es verídico, sino que
además es cierto.

Warren Sánchez
LES LUTHIERS

A lo largo de la Tesis se han mostrado las herramientas empleadas, las técnicas desarrolladas y los experimentos llevados a cabo para estudiar las posibilidades de aplicar una fuente pulsada de neutrones térmicos para producir respuestas gamma y neutrónica en sustancias de interés para aplicaciones tecnológicas y básicas. Como aplicación tecnológica, para la búsqueda y detección de sustancias ilícitas o peligrosas ocultas en cargamentos se estudiaron muestras que contuvieran alguno de los elementos químicos presentes en narcóticos, explosivos y contaminantes industriales, que al ser irradiados con neutrones del rango térmico produjeran radiación gamma *prompt* que permitiese su identificación (Capítulos 2 y 3). En el Capítulo 5 por su parte se muestran experimentos sobre detección de material nuclear especial, uranio altamente enriquecido y elementos combustibles, irradiando las muestras con neutrones térmicos y observando neutrones de fisión y retardados.

El experimento y los resultados del Capítulo 4 tienen que ver con una derivación en la investigación básica de la Tesis, ya que se muestran los resultados obtenidos en un estudio sobre la espectroscopia gamma *prompt* de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$.

Para todos los estudios realizados, bien para el caso de la aplicación tecnológica o básica de las técnicas, la fuente de neutrones empleada fue pulsada. Para las aplicaciones orientadas a seguridad portuaria, esta propiedad ha permitido que además de la detección de una sustancia, por una respuesta *prompt*, gamma o neutrónica, se pudiera estimar con resolución aceptable, de decenas de centímetros o menos, la posición de una muestra. En el caso de la espectroscopia gamma *prompt* del indio, la propiedad pulsada de la fuente permitió seleccionar un entorno de energías para los neutrones absorbidos.

Detección de sustancias por gamma *prompt*

Se ha desarrollado una técnica que permite la detección de radiación gamma *prompt* empleando una fuente pulsada de neutrones térmicos. Se debe destacar que las condiciones de detección son particularmente desfavorables ya que la detección de radiación gamma se debe llevar a cabo al mismo tiempo que la muestra es irradiada, a diferencia de los clásicos métodos de activación neutrónica. Además la misma fuente de neutrones es, por principio de funcionamiento, una importante fuente de fotones de alta energía. Estos dos factores han determinado que se deba establecer una ventana temporal entre pulsos del acelerador, dentro de la cual la cadena de detección es habilitada para medir. Tal metodología es una variante de la técnica utilizada para medir neutrones por tiempo de vuelo y ha sido aplicada además para el estudio básico sobre espectroscopia del indio en función de la energía de los neutrones incidentes.

Los primeros experimentos estuvieron orientados a probar la factibilidad del concepto de detección de gammas *prompt* con una fuente pulsada al mismo tiempo que

las muestras empleadas tenían un sentido tecnológico determinado. Así se irradiaron muestras cloradas (cloruro de sodio), por la presencia de este elemento en contaminantes y residuos industriales, nitrógeno (en forma líquida), que es un componente principal en narcóticos y explosivos, el hidrógeno (en agua), que forma parte de contaminantes, narcóticos y explosivos, y el hierro que se espera encontrar en muchas formas, empezando por las paredes de un contenedor portuario estándar hasta posibles cargas metálicas en las que pudieran ocultarse los elementos buscados. En todos los casos se logró observar las emisiones gamma *prompt* características de las muestras irradiadas y se estableció la intensidad de la señal detectada para cada elemento (con un flujo de $\sim 10^3$ neutrones/cm² segundo) en función de la masa y el tiempo de irradiación, siendo la más intensa para el hidrógeno ($\sim 0,6$ cuentas/gramo segundo) y la más débil para el nitrógeno ($\sim 0,0005$ cuentas/gramo segundo).

La detección de nitrógeno es fundamental en cualquier técnica con la que se que pretenda detectar narcóticos o explosivos ya que este elemento es típico en ambos casos. La pequeña señal que se obtiene es debido a la baja sección eficaz de absorción de neutrones (0,011 barn) [Choi, 2007], por un lado, y a la alta energía de su emisión característica, de 10,9 MeV, para la cual los detectores de NaI(Tl) tienen una eficiencia intrínseca $\leq 50\%$ [Knoll, 1989]. Sin embargo la emisión mencionada es, en términos prácticos, la más energética conocida (según las tablas de gammas *prompt* existe una emisión de 20,5 MeV del ³He cuando absorbe un neutrón térmico, con un sección eficaz de $4 \cdot 10^{-11}$ barn) [Choi, 2007] con lo cual una señal en este rango de energía, por más pequeña que sea, indicaría la presencia de nitrógeno en forma cuasi unívoca. Hay que mencionar la posibilidad de que la señal se vea incrementada debido a la influencia del hidrógeno que también compone las moléculas de los narcóticos y explosivos, ya que este último actuaría como un moderador/reflector de neutrones que de estar el nitrógeno aislado escaparían.

En los experimentos se irradió una cantidad de nitrógeno líquido de aproximadamente cien gramos. Esta cantidad es equivalente a lo que se encuentra presente en cantidades relativamente pequeñas de explosivo y narcóticos. Para el primer ítem por ejemplo se puede mencionar que 545 g de TNT (trinitrotolueno), 290 g de C4 o 270 g de RDX contienen esa cantidad de nitrógeno. Para poner un ejemplo concreto de cantidades empleadas en un ataque, se puede mencionar que para el atentado a la AMIA el 18 de julio de 1994, que mató a 85 argentinos en Buenos Aires, según una investigación periodística [“AMIA: la pista que lleva a Fabricaciones Militares”, La Nación, Domingo 26 de octubre de 2003] se habrían usado 300 kg de nitrato de amonio; 300 gramos de este fertilizante ya contienen la cantidad de nitrógeno que se colocó como muestra en los experimentos de esta Tesis. Del mismo modo, 100 g de nitrógeno es lo que hay contenido en 2 kg de cocaína o 770 g de LSD (dietilamida de ácido lisérgi-

co). Por otra parte, en los experimentos del Capítulo 3 también se detectó el nitrógeno contenido en harina, que de hecho se encuentra en una fracción mucho menor que en narcóticos o explosivos, con un detector múltiple, en una configuración acorde a lo que sería un portal de detectores. También se realizaron estudios irradiando la muestra de nitrógeno líquido detrás de un blindaje que imitaba la pared de un contenedor, 3 mm de acero, obteniendo que la señal sufría una atenuación total del 15 %. En otras palabras se detectaron cantidades representativas de nitrógeno en explosivos y narcóticos en forma exitosa, empleando un haz pulsado de neutrones de baja intensidad y detectores centelladores de NaI(Tl) en una configuración análoga a una parte de un portal de detectores. Las irradiaciones de 10 minutos fueron suficientes para distinguir la presencia de ~ 100 g de nitrógeno respecto del fondo. Un aumento del flujo neutrónico en tres ordenes de magnitud (posible con una fuente pulsada comercial de 10^6 neutrones por disparo) y un incremento en el número de detectores cubriendo un ángulo sólido mayor harían factible la detección de sustancias nitrogenadas en cantidades del orden del kilogramo en tiempos del orden de minutos. En el caso de los narcóticos hay que tener en cuenta que las cantidades incautadas en contenedores portuarios suelen ser de varios cientos de kilos, disimulados, por ejemplo, en cargamentos de frutas o pescado.

Para el caso del cloro la situación sería mucho más favorable en términos de intensidad de la señal *gamma prompt* producida por la irradiación con neutrones térmicos, ya que para la emisión que se detecta con mayor intensidad (786 keV) la cantidad de cuentas obtenidas es tres órdenes de magnitud mayor aunque como también se mostró, la atenuación por el blindaje de 3 mm de acero es mayor que para el nitrógeno, siendo del 25 % en promedio para las tres emisiones estudiadas de este elemento.

La técnica desarrollada ha permitido no sólo la detección de elementos de interés tecnológico, sino que además se ha mostrado que gracias al carácter pulsado de la fuente de neutrones es posible determinar la posición de la muestra irradiada respecto del moderador o del detector de radiación gamma. La resolución espacial de decenas de centímetros es muy buena si se tiene en cuenta que un contenedor estándar es un cuerpo de casi tres metros de lado.

En la caracterización de la técnica se realizó un ajuste de los espectros de tiempo de vuelo aproximando el espectro incidente por una distribución de Maxwell para un moderador a temperatura ambiente. Tal modelo mostró ser suficientemente bueno para realizar el ajuste. Sin embargo luego en un experimento realista, en que el detector se mantuvo en una posición fija y sólo se desplazó la muestra, se utilizó un filtro de cadmio para asegurar que el modelo ajusta exactamente espectros generados por absorción de neutrones térmicos (restando espectros con haz filtrado de espectros con haz sin filtrar). En este caso el modelo de ajuste es más representativo y la técnica de filtrar el haz sería entonces el procedimiento propuesto para la técnica desarrollada.

Espectroscopía de la reacción $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$

Se emplearon técnicas de tiempo de vuelo para seleccionar la energía de los neutrones incidentes en una muestra de indio natural (99,9 % de pureza) y poder así determinar la intensidad de las emisiones gamma *prompt* cuando el indio absorbe neutrones con energías entorno a la resonancia de 1,45 eV. Así se hallaron emisiones de 85,2 keV, 125,5 keV, 139,6 keV, 173,1 keV, 202,4 keV y 234,6 keV no contenidas anteriormente en las bibliotecas de datos nucleares. La técnica implementada también podría resultar útil con otros elementos, para la determinación de emisiones gamma *prompt* y su dependencia con la energía de los neutrones absorbidos.

Si bien estos resultados no son aplicables directamente en lo que se refiere a los objetivos de este trabajo, la información obtenida ha permitido aportar datos a las bibliotecas de datos nucleares no informados con anterioridad y por ende presumiblemente desconocidos.

Los resultados de este estudio fueron publicados en una revista especializada de circulación internacional [Tartaglione, 2009].

Detección de materiales nucleares

En la actualidad los sistemas de seguridad portuarios en desarrollo buscan poner el mayor esfuerzo en la detección fehaciente de materiales nucleares especiales. Estos son aquéllos que podrían ser empleados en la fabricación de armamento nuclear, o bien como componentes de “bombas sucias”, capaces de comprometer radiactivamente vastas áreas sin requerir para su implementación de la complejidad de un artefacto del primer tipo.

Los materiales nucleares que se pueden emplear para fabricar armamento nuclear convencional de fisión son el uranio altamente enriquecido en isótopo 235 y el ^{239}Pu . Para ser considerado material de grado armamentístico debe poseer un grado de enriquecimiento de al menos un 93,3 %. Una cabeza nuclear convencional contiene típicamente entre cuatro y doce kilogramos de material fisible, según si se trata de plutonio o uranio respectivamente.

En el Capítulo 5 se muestran los avances realizados en el desarrollo de una técnica que permite, por medio de la irradiación pulsada de neutrones, la detección no invasiva de material nuclear. Dicha técnica aprovecha algunas de las herramientas existentes de la técnica de tiempo de vuelo para que el hecho de inferir la presencia de la sustancia se vea además enriquecido por la capacidad de determinar la posición aproximada del material fisible cuando el entorno de mercancías en el que se oculta no es altamente dispersor de neutrones.

En los experimentos se emplearon muestras de dos tipos. Una muestra, parte de

DISCUSION GENERAL Y CONCLUSIONES

viejo combustible sin usar del Reactor RA-6, compuesto por cuatro placas rectangulares de una aleación de uranio de alto enriquecimiento y aluminio. Cada placa es de $5 \times 10 \text{ cm}^2$ y 1 mm de espesor, 18 % en peso de ^{235}U con un grado de enriquecimiento en ^{235}U del 90 %. En esta muestra la cantidad total de ^{235}U es de 27 g. Dado que el haz de neutrones utilizado fue de 5 cm de diámetro la cantidad total irradiada fue de aproximadamente 15 g cuando el haz de neutrones incide directamente. La otra muestra, de uranio natural, estuvo constituida por parte de un manajo combustible tipo Atucha I limitado a 50 cm. La muestra se armó a partir de trece vainas de zircaloy que en su interior contienen las pastillas de UO_2 sin enriquecimiento (0,71 % de ^{235}U).

En los experimentos se estudió la respuesta neutrónica instantánea, en el caso de los dos tipos de muestra, y retardada en el caso del uranio de alto enriquecimiento. Las pruebas demostraron la factibilidad de la detección bajo diferentes blindajes. Se ocultaron las muestras detrás de 3 mm de acero, 5 cm de plomo y 5 cm de polietileno (uranio enriquecido), 9 cm de harina y también se empleó un conjunto de PCs apiladas para ocultar el elemento combustible y el uranio enriquecido simulando un cargamento combinado de metal y material hidrogenado. En todos los caso la detección fue exitosa, con un detector diseñado para observar neutrones rápidos, en una posición fija y con muestras colocadas a distancias que cubrieron el rango desde lo más cercano al detector (junto a la simulada pared del contenedor) hasta los 60 cm, con hasta dos PC completas interpuestas, sumadas a la pared de 3 mm de acero

La técnica también mostró ser sensible a desplazamientos de la muestra físil sobre el haz de neutrones, manteniendo el detector en posición fija con el blindaje de acero simulando la pared del contenedor. Se logró determinar claramente la variación en la posición del máximo de un espectro de tiempo de vuelo ante un desplazamiento de 90 cm. Empleando métodos de ajuste de espectros de tiempo de vuelo la incerteza espacial podría ser reducida sustancialmente, sin embargo 90 cm de sensibilidad ya permite determinar si el material se encuentra e un lado o de otro de un contenedor, lo que redundaría en un ahorro importante de tiempo durante una revisión física posterior de la carga sospechosa.

La detección mediante neutrones retardados muestra que éstos pueden ser observados (en el caso del uranio) hasta 40 segundos después de que la muestra fue irradiada, aunque se determinó que el tiempo óptimo de conteo para obtener mayor contraste con el fondo es de 3 a 15 segundos. Esta modalidad de detección sería complementaria de la desarrollada para neutrones instantáneos. Sólo se debería instalar detectores adicionales, con y sin moderador, destinados a verificar el resultado obtenido con neutrones instantáneos. En ambos casos el empleo de una fuente pulsada sería fundamental, ya que permite garantizar que los neutrones detectados provienen de fisiones inducidas entre pulsos de la fuente neutrónica, además del hecho de permitir la aplicación del

DISCUSION GENERAL Y CONCLUSIONES

tiempo de vuelo para determinar la posición aproximada del material buscado.

Un sistema de detección de materiales nucleares fundado en la respuesta neutrónica instantánea o retardada basado en una fuente pulsada y detectores de neutrones rápidos sería por principio conceptual, difícil de eludir ya que sólo este tipo de materiales responden emitiendo neutrones si son irradiados con neutrones. La sensibilidad de un sistema de aplicación industrial sería incrementada si se tiene en cuenta que el flujo neutrónico usado para las pruebas fue del orden de 10^3 neutrones/cm² segundo, el detector estuvo compuesto por sólo cinco tubos de ³He en las primeras pruebas y seis de ellos, en un arreglo más compacto en las siguientes mediciones con material de ocultamiento, y si se tiene en cuenta también que la cantidad de material detectado solo era de decenas de gramos. Incluso en tales condiciones experimentales y con presencia de blindajes se obtuvieron contajes integrales por encima del valor medio del fondo más tres veces su desviación estándar.

Corrección por atenuación de neutrones y gammas en una muestra plana

En este Apéndice se describen las ecuaciones empleadas para corregir por atenuación en una muestra plana, las intensidades medidas de emisiones gamma *prompt*. Para realizar dicha corrección se debe tener en cuenta la distancia recorrida por un neutrón incidente dentro de la muestra antes de ser absorbido, así como la capacidad de atenuación de la radiación gamma en la muestra.

La probabilidad de que se produzca la absorción de un neutrón de energía E_n luego de haber recorrido una distancia x dentro de la muestra está dada por

$$P(x) = C e^{-n\sigma(E_n)x}, \quad (\text{A.1})$$

donde $0 \leq x \leq T$, $\sigma(E_n)$ es la sección eficaz de absorción y n es el número de átomos por cm^3 . En la Ecuación A.1 se ha despreciado la dispersión del haz de neutrones por los núcleos de indio, ya que la sección eficaz de absorción es mucho mayor que la de *scattering* para las energías de interés. Considerando la distribución espacial de probabilidad de neutrones absorbidos en la muestra vale la normalización

$$\int_0^T P(x) = 1, \quad (\text{A.2})$$

de donde se deduce que,

$$C = \frac{n\sigma(E_n)}{1 - e^{-n\sigma(E_n)T}}. \quad (\text{A.3})$$

Si la intensidad real de una emisión gamma es $I_{real}(E_\gamma)$, ésta se relaciona con la intensidad medida $I_{exp}(E_\gamma)$, por medio de una función de atenuación, A , de la siguiente forma:

$$I_{exp}(E_\gamma) = A(T, E_n^{Mín}, E_n^{Máx}, \sigma(E_n), \phi(E_n), \mu(E_\gamma)) \cdot I_{real}(E_\gamma), \quad (A.4)$$

donde $\mu(E_\gamma)$ es el coeficiente de atenuación lineal del indio para radiación gamma de energía E_γ y $\phi(E_n)$ es el espectro incidente de neutrones, normalizado de modo tal que

$$\int_{E_n^{Mín}}^{E_n^{Máx}} \phi(E_n) dE_n = 1, \quad (A.5)$$

donde las energías $E_n^{Mín}$ y $E_n^{Máx}$ aparecen en la expresión A.4 ya que el espectro de energía de los gammas producidos por la muestra dependen de la energía de los neutrones absorbidos.

En el experimento de la Sección 4.3, una lámina de indio de espesor efectivo T , fué colocada a 45° respecto del haz de neutrones (Figura A.1).

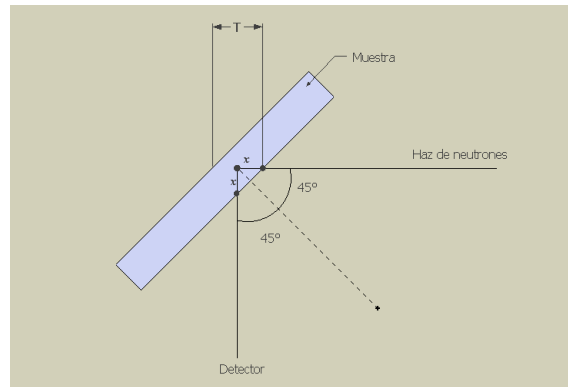


Figura A.1:

Dado que el detector se encontraba ubicado inmediatamente debajo de la muestra, vale la aproximación de que la distancia lineal recorrida dentro de la muestra por los neutrones incidentes es igual a la que deben recorrer los gammas *prompt* producidos por la absorción de dichos neutrones en su camino dentro de la muestra hacia el detector.

Para este caso particular, la función de atenuación está dada por:

$$A = \int_{E_n^{Mín}}^{E_n^{Máx}} \left(\int_0^T P(x) e^{-\mu(E_\gamma)x} dx \right) \phi(E_n) dE_n, \quad (A.6)$$

que reescrita considerando la expresión A.3 queda:

$$\begin{aligned}
A &= \int_{E_n^{Min}}^{E_n^{Max}} \frac{n\sigma(E_n)}{1 - e^{-n\sigma(E_n)T}} \left(\int_0^T e^{-(n\sigma(E_n) + \mu(E_\gamma))x} dx \right) \phi(E_n) dE_n \\
&= \int_{E_n^{Min}}^{E_n^{Max}} \frac{1}{1 + \frac{\mu(E_\gamma)}{n\sigma(E_n)}} \frac{1 - e^{-(n\sigma(E_n) + \mu(E_\gamma))T}}{1 - e^{-n\sigma(E_n)T}} \phi(E_n) dE_n . \tag{A.7}
\end{aligned}$$

Ajuste de espectros de “tiempo de vuelo”

Un espectro de tiempo de vuelo se obtiene a partir del registro de los pulsos provenientes de un detector de radiación gamma *prompt* o neutrones. Dichos pulsos se procesan a través de un codificador de tiempo de vuelo que registra los instantes en que tales señales se producen. En este Apéndice se muestran los pasos seguidos y las hipótesis realizadas para obtener un modelo de ajuste de dichos espectros, sólo en el caso particular de la detección de fotones.

El número de cuentas en cada canal de tiempo se puede expresar como:

$$C(t) = \phi(E_o) [1 - \exp(-n\chi\sigma_{abs}(E_o))] \underbrace{\frac{2E_o}{t - t_R} \int_{E_\gamma^{MIN}}^{E_\gamma^{MAX}} I(E_\gamma, E_o) \epsilon_\gamma(E_\gamma) dE_\gamma}_{I_\gamma}, \quad (\text{B.1})$$

donde $\phi(E_o)$ es el espectro de energía de los neutrones, n es el número de átomos por cm^3 , χ el espesor de la muestra y $\sigma_{abs}(E_o)$ la sección eficaz de absorción en función de la energía del neutrón incidente que está dada por:

$$E_o = \frac{m_n}{2} \left(\frac{L}{t - t_R} \right)^2. \quad (\text{B.2})$$

Además la Ecuación B.1 contiene la eficiencia del detector de radiación gamma, $\epsilon_\gamma(E_\gamma)$, la distancia de vuelo de los neutrones, L , y su velocidad $\nu(E_o)$. El tiempo de retardo electrónico en la cadena de adquisición está considerado por t_R .

La obtención de espectros de tiempo de vuelo, se realizó discriminando los pulsos provenientes del detector de fotones de modo tal que el rango de energía de los fotones se limitó en la mayoría de los casos a una sola emisión o, como en el caso del cloro, a emisiones de energías similares. Bajo esas condiciones y por la distancia entre muestra y detector [Knoll, 1989] es posible hacer la aproximación $\epsilon_\gamma = \text{Constante}$.

La sección eficaz de absorción depende de la energía de los neutrones incidentes. Bajo la hipótesis de que el haz incidente está dominado por los neutrones térmicos, y que la absorción neutrónica de los materiales irradiados en ese rango de energía tiene un comportamiento tipo $1/v$, se puede considerar que [Beckurts, 1964]:

$$\sigma_{abs}(E_o) = \bar{\sigma}_{abs} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sigma_{abs}(E_T = 0,0253 \text{ eV}) . \quad (\text{B.3})$$

Para un moderador infinito y sección eficaz de absorción nula, el espectro de energía de los neutrones está dado por una distribución de Maxwell. Como primera aproximación dicho espectro se propuso para el haz incidente, es decir que:

$$\phi(E_o) = \frac{N_o}{(kT)^2} E_o \exp\left(-\frac{E_o}{kT}\right) . \quad (\text{B.4})$$

En la Figura B.1 se muestra el espectro medido a 600 cm del moderador, y se lo compara con lo que se obtiene al graficar la Ecuación B.4 para temperatura ambiente.

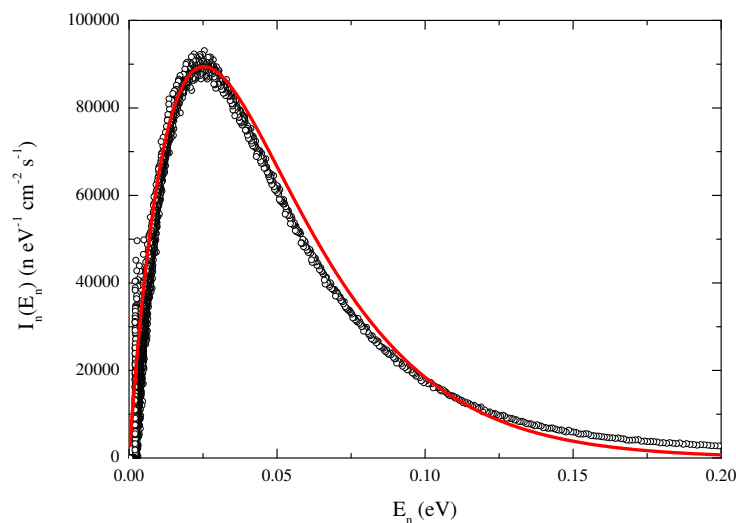


Figura B.1: Se compara un espectro experimental obtenido a 600 cm del moderador con un detector de ^3He , con una Maxwelliana a temperatura ambiente. Como primera aproximación es aceptable considerar un espectro de Maxwell a temperatura ambiente para modelar el espectro experimental incidente en el rango térmico de energías.

De las expresiones B.2, B.3 y B.4 se deduce que:

$$C(t) = A \frac{L^4}{(t - t_R)^5} \exp \left[-B \frac{L^2}{(t - t_R)^2} \right], \quad (\text{B.5})$$

$$\text{donde } A = I_\gamma \frac{\epsilon_\gamma \sqrt{2}}{m_n} [1 - \exp(-n\chi\sigma_{abs})] \left(\frac{m_n}{2} \right)^{5/2} \frac{N_o}{(kT)^2} = \text{Constante} \quad (\text{B.6})$$

$$\text{y } B = \frac{m_n}{2kT} = \text{Constante}. \quad (\text{B.7})$$

Para tener en cuenta la atenuación del haz de neutrones en función de la distancia al moderador se propone multiplicar $C(t)$ por un término geométrico, F_G , inversamente proporcional al cuadrado de la longitud de vuelo,

$$F_G(L) = \frac{\alpha}{L^2}, \text{ con } \alpha = \text{Constante}. \quad (\text{B.8})$$

Así, se tiene que

$$\tilde{C}(t) = C(t) F_G = \alpha A \frac{L^2}{(t - t_R)^5} \exp \left[-B \frac{L^2}{(t - t_R)^2} \right]. \quad (\text{B.9})$$

Finalmente la expresión más completa usada para ajustar los espectros de tiempo de vuelo queda definida por

$$\tilde{C}(t) = \frac{P_1}{(t - t_R)^5} \exp \left[-\frac{P_2}{(t - t_R)^2} \right], \quad (\text{B.10})$$

$$\text{donde } P_1 = \alpha A L^2 \text{ y } P_2 = B L^2. \quad (\text{B.11})$$

Para el moderador a temperatura ambiente, $B \sim 20,8$. A partir del parámetro de ajuste P_2 se obtiene la distancia de vuelo desde el moderador a la muestra. En la práctica, es conocida la distancia entre el moderador y el sitio desde donde se podría decir que se encuentra la muestra (por ejemplo el frente del detector o la pared del “container”) así que el resultado del ajuste puede referirse a cualquier posición de sentido práctico que se encuentre sobre la línea del haz de neutrones.

El modelo de ajuste expresado en la Ecuación B.10 ha resultado satisfactorio en espectros de tiempo de vuelo de los cuáles se sustrajo el fondo. También se puede aplicar si del espectro con muestra se resta un espectro obtenido irradiando la muestra pero filtrando el haz con un absorbente de neutrones térmicos como cadmio.

El método de ajuste

Para evaluar los espectros de tiempo de vuelo se generó un código en MATLAB que permite el ajuste por cuadrados mínimos a partir de la función propuesta (Ecuación B.10). La operación básica consiste en abrir un archivo de datos experimentales dado por tres columnas: tiempo, cuentas (normalizadas por monitor) y desviación estándar a partir del cual se obtiene el vector $C_{exp}(t)$. Luego el programa busca, a partir de valores iniciales de iteración y la subrutina FMINSEARCH, el valor de los parámetros que minimizan la función

$$Chi(t) = \sum_{t_i}^{t_f} \left(C_{exp}(t) - \tilde{C}(t) \right)^2. \quad (B.12)$$

No sólo interesa obtener un valor de la distancia de vuelo, sino también es importante obtener algún número que indique el grado de precisión de dicho dato. Si para cada posición de irradiación se pudiera contar con un número grande de espectros experimentales sería posible aplicar el algoritmo de ajuste en cada caso y realizar estadística sobre las distancias de vuelo obtenidas en todos los casos. En la práctica tal procedimiento no es posible por lo que se ideó un método de generación de espectros sintéticos a partir de un espectro experimental, de modo de aplicar el algoritmo de ajuste para cada espectro sintético y hacer finalmente estadística que permita obtener un valor de la distancia de vuelo y un valor de su incerteza.

Para cada canal de tiempo de un espectro experimental, se tiene un valor de cuentas normalizadas, $C_n(t)$, y su incerteza o error $e(t)$. La generación de un espectro sintético consiste en calcular un valor artificial de cuentas normalizadas a partir de $C_n(t)$ y $e(t)$. Para ello se emplea la subrutina RANDN que genera un valor sintético, $C_{sin}(t)$ para cada canal de tiempo haciendo

$$C_{sin}(t) = C_n(t) + [e(t) \cdot rand(1, 1)], \quad (\text{B.13})$$

generando valores al azar con una distribución normal de valor medio C_n y desviación estándar e dentro del intervalo $C_n \pm e$.

Sobre cada espectro sintético se aplica el algoritmo obteniendo en cada oportunidad un valor del parámetro P_2 y calculando L como $\sqrt{P_2/B}$. En este trabajo se generaron 500 espectros sintéticos. Finalmente sobre todos los valores de L se calculó su valor medio y su desviación estándar.

Agradecimientos

Luego de tanta descripción, análisis de datos, etc., sería natural pensar que estas son las líneas más sencillas de escribir. Para mi sorpresa y en contra de toda intuición resultó no ser así. Una página en blanco es un desafío para el que se dispone a escribir algo. Inmediatamente surge la pregunta “¿por donde empiezo?”. Con los agradecimientos las preguntas son dos: “¿por donde empiezo y cómo demonios agradezco tanto, y a tantos, en sólo unas líneas?”.

Ahí va.

El agradecimiento más profundo es para mis padres. Ellos han sido, y serán, siempre el ejemplo a seguir: por calidad humana, por rectitud y por perseverancia. Su permanente apoyo, desde que fui a estudiar a Buenos Aires hasta los cinco años de mi Doctorado en Bariloche han hecho posible mi llegada a este punto.

Mi familia siempre ha sido mi sostén y cable a tierra. Mis cinco hermanos a quienes amo profundamente siempre me han brindado su apoyo, al igual que mis tías Beatriz y Eloísa, a Sandra que siempre pero siempre está ahí preocupándose por mí y preguntándome cómo ando y lista para que le cuente sobre mi vida, las buenas y las malas. GRACIAS. A mi primo Belisario también le debo unas cuantas charlas de diván en momentos difíciles, siempre a la orilla de algún río por supuesto.

Agradezco a mis directores Roberto y César por la confianza depositada en mí desde el comienzo del trabajo. Muchos de los experimentos no hubieran levantado cabeza sin el empujón inicial junto a Roberto y sus valiosas sugerencias.

Los amigos no pueden quedar afuera de estas líneas. Afortunadamente son numerosos y siempre siento que me han dado, y dan, más de lo que yo les he dado o les doy. Sufro un terrible mal que es la descortesía, lo reconozco, pero como a muchos les he dicho estaré siempre ahí para dejar lo que esté haciendo y acudir como sea y donde sea cuando me necesiten y sentir que devuelvo así una ínfima parte de todo el apoyo que me dieron, en las buenas y sobre todo en las malas. Todos los “chicos y chicas” de Trelew, que veo muy poco pero están siempre presentes. Verónica Raspa, Alejandro Lazarte, Francisco Di Lorenzo, Pablo Knoblauch y Pablo Cobelli del INFIP siempre

listos para darme una mano, en especial Vero que ha tenido que asumir mas de una vez su rol de amiga/psicóloga comprensiva, objetiva, compasiva y consejera a través del cyberspacio. Floren, Julián, Romina y Jerónimo fueron las cuatro columnas griegas que me sostuvieron buena parte del Doctorado, hubiera sido mucho más difícil sin ustedes. Floren gracias por ser siempre la voz objetiva que necesito en el momento exacto. Jerónimo, como dijo alguien alguna vez, “tenés un corazón enorme”. Yo voy a agregar que siento que en buena medida mucho de lo logrado no hubiera sido posible sin tu sabiduría “milenaria” y calidad humana solo mensurables como múltiplos de la ya famosa Constante de Blostein (Número de Avogadro elevado a la Número de Avogadro, Número de Avogadro veces), vaya mi agradecimiento en múltiplos de la misma constante. A mi chica superpoderosa personal, Carolina, le tengo que agradecer por ser el ángel al que, a pesar de todo, siempre pude recurrir en los tiempos difíciles. Caro te adoro, sos una persona de calidad extraordinaria, como siempre te digo, y voy a estar a tu lado las veces que me necesites.

El último año tuvo momentos complicados, a veces bastante desesperantes. De los pozos laberínticos en los que a veces me las arreglaba para meterme sólo pude salir gracias a mi amigo Mario Moreno que me hacía la gamba para darnos un chapuzón en las frías aguas del lago, robándole tiempo a la escritura de su Tesis, a Christian y Ale que me soportaron en su casa de veraneo cuando no tenía donde quedarme, a Carina y mi “hermano” Rodrigo, que sobre todo vía chat me “escucharon” y aconsejaron, a Sebas y Mariana que me bancaron varias de mis tardecitas de desesperanza mientras me hacían dar los primeros (y más importantes) pasos de tango, y a todos mis AMIGOS milongueros que supieron darme una palmada de aliento y brindarme su amistad incondicional y corazón cuando más lo necesitaba. A Laura, Fernanda, Elda, Lili, Guada, Silvina, Pato, Luisito, Conde, Eliana, Carlos, Fabi, Ricardo, Diego, Nico, Virginia y Vittoria. **Sempre grato, non dimenticare mai.**

Quiero agradecer a todos mis amigos del Laboratorio de Neutrones y Reactores, a Luisito, Oso, Roberto Sergio, Javier, Rolando, Alejandro, Sandra, Ricardo y Cristián por representar muchas veces la ayuda, la palabra justa, la solidaridad, el consejo y por que no, la inspiración. A Luis Capararo que de tanto estar listo para poner su consejo, sabiduría y pericia al servicio de algún nuevo “pichifruli curvo” que se nos ocurriera terminó siendo mi amigo. Los cafés, con charlas delirantes, divertidas y subidas de tono para distender la jornada han sido innumerables veces el punto de inflexión esos días en que las cosas “no vienen bien”.

Párrafo aparte para mis amigos Máximo Schneebelli, Pablo D’Avanzo y Alberto Mansilla, técnicos y operadores del LINAC. Sin ustedes tres seríamos un puñado de físicos teórico/numéricos e ingenieros discutiendo sobre el sexo de los ángeles y la inmortalidad del cangrejo. Gracias por mantener la máquina andando contra viento y marea, y

sacarle los preciados neutrones que son nuestra herramienta de trabajo, todos los días y después de muchos años sin dudas gracias a que han sabido encontrar la combinación exacta entre trabajo, sacrificio, amor y sabiduría. Otra vez la Constante de Blostein para cuantificar mi agradecimiento hacia ustedes.

Le agradezco enormemente a todo el personal del Centro Atómico Bariloche y el Instituto Balseiro por su permanente predisposición. En especial quiero mencionar a la gente de la Biblioteca “Leo Falicov” y a Marcela Margutti por el excelente trabajo que realizan. Por el apoyo brindado durante el doctorado no quiero dejar de agradecer al CONICET y a la CNEA, instituciones que han canalizado los recursos de un montón de Argentinos anónimos para que yo pudiera llegar a este punto de mi formación, así que en definitiva muchas gracias también a mi querido país, Argentina.

Bibliografía

- [1] Alfassi Z B and Chung C . *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis*. CRC Press, Boca Raton, 1995.
- [2] Alexeev V L, Emelianov B A, Kaminker D M, Khazov Yu. L, Kondurov I A, Loginov Yu. E, Rumiantsev V L, Sakharov S L, and Smirnov A I. The properties of ^{116}In excited states. *Nucl. Phys. A*, **262**, :19–51, 1976.
- [3] Beckurts K H and Wirtz K. *Neutron Physics*. Springer - Verlag, Berlin, 1964.
- [4] Bittencourt J A. *Fundamentals of Plasma Physics*. José Augusto Bittencourt, São José dos Campos, SP, Brazil, 3rd edition, 2003.
- [5] Blachot J. Nuclear data sheets for A=116*. *Nucl. Data Sheets*, **92**, :455–622, 2001.
- [6] Blostein J J. *Estudio de la dinámica de la materia condensada a través de la técnica de Dispersión Inelástica Profunda de Neutrones*. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, UNCuyo-CNEA, 2004.
- [7] Brown D R, Gozani T, Loveman R, Bendahan J, Ryge P, Stevenson J, Liu F, and Sivakumar M. Application of pulsed fast neutrons analysis to cargo inspection. *Nucl. Instrum. Methods Sect. A*, **353**, :684–688, 1994.
- [8] Bruzzone H and Vieytes R. The initial phase in Plasma Focus devices. *Plasma Phys. Control. Fusion*, **35**, (12):1745–1754, December 1993.
- [9] Buffler A. Contraband detection with fast neutrons. *Radiation Physics and Chemistry*, **71**, :853–861, 2004.
- [10] Bunn M, Holdren J, and Wier A. Securing Nuclear Weapons and Materials: Seven Steps for Immediate Action. Technical report, Belfer Center for Science and International Affairs, John F. Kennedy School of Government, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, May 2002.

- [11] Byrd R, Moss J, Priedhorsky W, Pura C, Richter G, Saeger K, Scarlett W, Scott S, and Wagner R. Nuclear Detection to Prevent or Defeat Clandestine Nuclear Attack. *IEEE Sensors Journal*, **5**, (4):593–609, 2005.
- [12] CEPAL. Efectos económicos de las nuevas medidas de seguridad marítima y portuaria, Febrero 2006.
- [13] Choi H D and Firestone R B . Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis. Technical report, International Atomic Energy Agency (IAEA), Viena, Austria, 2007.
- [14] Church J, Slaughter D, Asztalos S, Biltoft P, Descalle M, Hall J, Luu T, Manatt D, Mauger G, Norman E, Petersen D, and Prussin S. Signals and interferences in the nuclear car wash. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. B*, **261**, :351–335, 2007.
- [15] Corvi F and Stefanon M. Gamma rays from resonance neutron capture in ^{115}In . *Nucl. Phys. A*, **233**, :185–216, 1974.
- [16] Crist P. Security in Maritime Transport: Risk Factors and Economic Impact. Technical report, Organisation for Economic Co-operation and Development, Junio 2003.
- [17] Davis T and Waxman H. Waste, Abuse, and Mismanagement in Department of Homeland Security Contracts. Technical report, United States House of Representatives–Committee on Government Reform, Julio 2006.
- [18] Dawidowski J. Interacción de neutrones térmicos con moderadores carbohidrogenados. Trabajo especial, Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo, Laboratorio de Neutrones y Reactores, CAB, CNEA, 1986.
- [19] Dawidowski J. *Correcciones por Inelasticidad y Scattering Multiple en Experimentos de Dispersión de Neutrones*. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo, Laboratorio de Neutrones y Reactores, CAB, CNEA, 1993.
- [20] Delellis R D. Detección de neutrones en un equipo plasma focus por el método de plata activada. Tesis de Licenciatura, FCEyN, Universidad de Buenos Aires, Laboratorio de Física del Plasma, CONICET, 1976.
- [21] Draper J. 0-600 keV gamma-ray spectra from thermal neutron capture in the region $A=104$ to 198. *Phys. Rev.*, **114**, :268–278, 1958.

- [22] Draper J E, Fenstermacher C A, and Schultz H L. Variations in spectra of resonance neutron capture gamma rays in indium. *Phys. Rev.*, **111**, :906–912, 1958.
- [23] Filippov N V, Filippova T I, and Vinogradov V P. Dense, high temperature plasma in a non-cylindrical Z-pinch compression. *Nuclear Fusion Supp., Part 2*, page 577, 1962.
- [24] Shirley V (Ed.) Firestone R. *Table of Isotopes*. Wiley-Interscience, New York, 8th edition, 1996.
- [25] Fetter S, Frolov V, Miller M, Mozley R, Prilutsky O, Rodionov S, and Sagdeev R. Detecting Nuclear Warheads. *Science & Global Security*, **1**, :225–302, 1990.
- [26] Gozani T. Novel applications of fast neutron interrogation methods. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, **353**, :635–640, 1994.
- [27] Hamermesh B and Hummel V. Neutron capture γ -ray spectra from the elements Z=17-30 and Z=45-57. *Phys. Rev.*, **88**, :916–919, 1952.
- [28] Hall J, Asztalos S, Bilotft P, Church J, Descalle M, Luu T, Manatt D, Mauger G, Norman E, Petersen D, Pruet J, Prussin S, and Slaughter D. The Nuclear Car Wash: Neutron interrogation of cargo containers to detect hidden SNM. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. B*, **261**, :337–340, 2007.
- [29] Hoskins R. *Measures to Prevent, Intercept and Respond to Illicit Uses of Nuclear Material and Radioactive Sources*. Agencia Internacional de Energía Atómica, Vienna, Austria, 2002.
- [30] Hubbell J H and Seltzer S M. Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (version 1.4). Publicado Online en <http://physics.nist.gov/xaamdi>, 2004. Ultima consulta: 30 de marzo de 2009.
- [31] Jordan K and Gozani T. Detection of ^{235}U in hydrogenous cargo with Differential Die–Away Analysis and optimized neutron detectors. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. A*, April 2007.
- [32] Jordan K, Vujic J, and Gozani T. Remote thermal neutron die–away measurements to improve Differential Die–Away Analysis. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. A*, April 2007.
- [33] Jordan K, Vujic J, Phillips E, and Gozani T. Improving differential die–away analysis via the use of neutron poisons in detectors. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. A*, April 2007.

- [34] Jordan K and Gozani T. Pulsed neutron differential die away analysis for detection of nuclear materials. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. B*, May 2007.
- [35] Jordan K and Gozani T Vujic J. Differential die-away analysis system response modeling and detector design. *Nucl. Instr. Meth Phys. Res. A*, **589**, :436–444, 2008.
- [36] Kaneko K, Kamiyama T, Kiyonagi Y, Sakuma T, and Ikeda S. Neutron resonance absorption spectroscopy on ionic conductor AgI. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **60**, :1499–1502, 1999.
- [37] Keepin G, Wimett T, and Zeigler R. Delayed Neutrons from Fissionable Isotopes of Uranium, Plutonium, and Thorium. *Physical Review*, **107**, (4):1044–1049, 1957.
- [38] Kerr P, Rowland M, Dietrich D, Stoeffl W, Wheeler B, Nakae L, Howard D, Hagmann C, Newby J, and Porter R. Active detection of small quantities of shielded highly-enriched uranium using low-dose 60-keV neutron interrogation. *Nuclear Instruments and Methods B*, **261**, :347–350, 2007.
- [39] Knoll G F. *Radiation detection and measurement*. Wiley, New York, 2nd edition, 1989.
- [40] Lanter R and Bannerman D. The silver counter: A detector for bursts of neutrons. LA-3498-MS, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, 1966. Informe Técnico.
- [41] Lee W C, Mahood D B, Ryge P, Shea P, and Gozani T. Thermal neutron analysis (TNA) explosive detection based on electronic neutron generators. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **99**, :739–742, 1995.
- [42] Lee S, Lee P, Zhang G, Feng X, Gribkov V, Liu M, Serban A, and Wong T. High rep rate high performance Plasma Focus as a powerful radiation source. *IEEE Trans. on Plasma Sci.*, **26**, (4):1119–1126, August 1998.
- [43] Lipton E. U.S. to Spend Billions More to Alter Security Systems. *The New York Times*, 8 de marzo 2005.
- [44] Lone M A, Earle E D, and Bartholomew G A. The $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ reaction. *Nucl. Phys.*, **156**, :113–132, 1970.
- [45] Lorch E A. Neutron spectra of $^{241}\text{Am/B}$, $^{241}\text{Am/Be}$, $^{241}\text{Am/F}$, $^{242}\text{Cm/Be}$, $^{238}\text{Am}/^{13}\text{C}$ and ^{252}Cf isotopic neutron sources. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **24**, :585–591, 1973.

- [46] Norman D, Jones J, Haskell K, Vanier P, and Forman L. Active Nuclear Material Detection and Imaging. *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, pages 1004–1008, 2005.
- [47] Mather J W. *Dense Plasma Focus*, in *Methods of Experimental Physics 9 Part B*, pages 187–249. Edited by: Lovberg H and Griem H R, Academic Press, New York and London, 1971.
- [48] Mather J W. Investigation of the high-energy acceleration mode in the coaxial gun. *Phys. Fluids*, Suppl. **7**, :5–28, 1964.
- [49] Mayer R, Tartaglione A, and Blostein J. Integrating Education and Research in Illegal Substances Detection. In IAEA Proceedings Series, editor, *Combined Devices Humanitarian Demining and Explosive Detection: Proceedings of a Technical Meeting Padova, 13–17 November 2006*, Vienna, Austria, 2007. Agencia Internacional de Energía Atómica.
- [50] Marsh J W, Thomas D J, and Burke M. High resolution measurements of neutron energy spectra from Am-Be and Am-B neutron sources. *Nucl. Instrum. Methods A*, **366**, :340–348, 1995.
- [51] Meyerhof W E. *Elements of Nuclear Physics*, pages 211–222. McGraw-Hill Book Company, New York, 1967.
- [52] Micklich B and Smith D. Nuclear materials detection using high-energy γ -rays. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **241**, :782–786, 2005.
- [53] Milántiev V and Temkó S. *Física del Plasma*. Editorial MIR, Moscú, URSS, 1987.
- [54] Moss C, Goulding A, Hollas C, and Myers W. Neutron Detectors for Active Interrogation of Highly Enriched Uranium. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **51**, (4):1677–1681, 2004.
- [55] Moss C, Brener M, Hollas C, and Myers W. Portable active interrogation system. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **241**, :793–797, 2005.
- [56] Mughabghab S F, Divadeenam M, and Holden E. *Neutron Cross Section*, volume 1. Academic Press, New York, 12th edition, 1981.
- [57] Ogorodnikov S and Petrunin V. Processing of interlaced images in 4-10 MeV dual energy customs systems for material recognition. *Physical Review Special Topics—Accelerators and Beams*, **5**, :104701(11 pages), 2002.

- [58] Orphan V, Muenchau E, Gormley J, and Richardson R. Advanced γ ray technology for scanning cargo containers. *Applied Radiation and Isotopes*, **63**, :723–732, 2005.
- [59] Overley J C. Element-sensitive computed tomography with fast neutrons. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **24–25**, :1058–1062, 1987.
- [60] Overley J C, Chmelik M S, Rasmussen R J, Schofield R M S, Sieger G E, and Lefevre H W. Explosives detection via fast neutron transmission spectroscopy. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **251**, :470–478, 2006.
- [61] Pouzo J O. *El Plasma Focus como una posible línea de la fusión controlada*. Tesis Doctoral, FCEyN, Universidad de Buenos Aires, Laboratorio de Física del Plasma, CONICET, 1979.
- [62] Priedhorsky W, Borozin K, Hogan G, Morris C, Saunders A, Schultz L, and Teasdale M. Detection of high- z objects using multiple scattering of cosmic ray muons. *Review of Scientific Instruments*, **74**, :4294–4297, 2003.
- [63] Rabenstein D, Harrach D, Vonach H, Dussel G G, and Perazzo R P I. ^{116}In level scheme and p-n configurations. *Nucl. Phys. A*, **197**, :129–162, 1972.
- [64] Raspa V, Sigaut L, Llovera R, Cobelli P, Knoblauch P, Vieytes R, Clause A, and Moreno C. Plasma Focus as a Powerful Hard X-Ray Source for Ultrafast Imaging of Moving Metallic Objects. *Brazilian Journal of Physics*, **34(4B)**, :1696–1699, 2004.
- [65] Raspa V, Di Lorenzo F, Knoblauch P, Lazarte A, Tartaglione A, Clause A, and Moreno C. Plasma focus based repetitive source of fusion neutrons and hard X-rays. *PMC Physics A*, **2**, :5, 2008.
- [66] Rodríguez Palomino L A. Determinación del espectro rápido de neutrones provenientes de un blanco de plomo usando el código de cálculo MCNP5. Informe Técnico, CNEA-CAB, San Carlos de Bariloche, Río Negro, Argentina, 2006.
- [67] Rynes J, Bendahan J, Gozani T, Loveman R, Stevenson J, and Bell C. Gamma-ray and neutron radiography as part of a pulsed fast neutron analysis inspection system. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, **422**, :895–899, 1999.
- [68] Schmitzer C and Beck P. Experiences from the ITRAP Pilot Study. In C&S Papers Series 12/P, editor, *Measures to Prevent, Intercept and Respond to Illicit Uses of Nuclear Material and Radioactive Sources*, pages 402–414, Vienna, Austria, 2002. Agencia Internacional de Energía Atómica.

- [69] Smith A B, Chiba S, Smith D L, Meadows J W, Guenther PT, Lawson R D, and Howerton R J. Evaluated Neutronic File for Indium. Nuclear Data and Measurements Series, ANL/NDM-115, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois 60439, U.S.A., 1990.
- [70] Smith R C, Hurwitz M J, and Tran K C. System to detect contraband in cargo containers using fast and slow neutron irradiation and collimated gamma detectors. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **99**, :733–735, 1995.
- [71] Tartaglione A. Caracterización de un equipo plasma focus como generador de pulsos de neutrones de fusión nuclear y su aplicación a la detección no intrusiva de sustancias hidrogenadas. Tesis de Licenciatura, FCEyN, Universidad de Buenos Aires, Instituto de Física del Plasma, UBA - CONICET, 2004.
- [72] Tartaglione A, Blostein J J, and Mayer R E. Prompt gamma emissions in the reaction $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ for neutrons around the 1.45 eV absorption resonance. *Appl. Rad. Isot.*, 2009,(doi:10.1016/j.apradiso.2009.03.078).
- [73] Tartaglione A, Di Lorenzo F, and Mayer R E. Detection of thermal induced prompt fission neutrons of highly-enriched uranium: a position sensitive technique. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, Trabajo aceptado, abril de 2009.
- [74] Vourvopoulos G and Womble P C. Pulsed fast/thermal neutron analysis: a technique for explosives detection. *Talanta*, **54**, :459–468, 2001.
- [75] Waldo R, Karam R, and Meyer R. Delayed neutron yields: Time dependent measurements and a predictive model. *Physical Review C*, **23**, (3):1113–1127, 1987.
- [76] Womble P C, Schultz F J, and Vourvopoulos G. Non-destructive characterization using pulsed fast-thermal neutrons. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **99**, :757–760, 1995.