



UNIVERSIDAD NACIONAL DE SAN MARTÍN
COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA
Instituto de Tecnología Nuclear Dan Beninson

Diseño, caracterización y aplicación de detectores del tipo proporcional para la medición del contenido de boro en muestras biológicas.

Tesis presentada para aspirar al título de Doctor en Tecnología Nuclear

Autor: Mario Pablo Rossi

Director: Gustavo Santa Cruz

CNEA-CAE. Año: 2022





Índice

Introducción	5
Agradecimientos	8
Capítulo 1.....	12
1.1 Comentarios generales acerca de BNCT	12
1.2 Proyecto BNCT en la Argentina	19
1.3 Métodos de cuantificación	21
1.4 Búsqueda de otras opciones de cuantificación de ^{10}B	31
Capítulo 2.....	35
2.1 Contadores gaseosos.....	35
2.1.a. Conceptos generales	35
2.1.b Contadores proporcionales	38
2.2 Aspectos relevantes de la geometría cilíndrica en un contador proporcional.....	49
Capítulo 3.....	55
3.1. Mediciones con el contador proporcional cilíndrico - Pruebas iniciales.....	55
3.2 Configuración moderadora de neutrones y pruebas con boro metálico.....	65
3.3 Apantallamiento con cadmio al detector.....	79





Capítulo 4.....	89
4.1 Diseño y fabricación del contador proporcional doble - consideraciones teóricas y simulación.....	89
4.2 Consideraciones constructivas - pruebas mecánicas	93
4.3 Pruebas eléctricas y de adquisición de datos con fuentes de ²⁴¹Am.	98
Capítulo 5.....	104
5.1 Pruebas con ¹⁰B en el contador doble.....	104
5.1.b Cuantificación del área del espectro	109
5.2 Espectros obtenidos con muestra de ¹⁰B enriquecido en uno de los cátodos.....	112
5.3 Experiencias realizadas con el contador doble apantallado con Cadmio	120
5.3 a Boro en ambos cátodos del detector.....	126
5.3.b. Análisis del espectro.....	133
5.4 Pruebas con ¹⁰B en agarosa	148
5.4.a. Agarosa con ¹⁰ B en ppm dentro del contador proporcional	150
Capítulo 6.....	168
6.1 Simulaciones Monte Carlo para el desarrollo de una nueva configuración de moderación.....	168
6.2 Primer diseño	170
6.3 Segundo diseño	180
Conclusiones	190
Apéndice A	194





Modelo simplificado del efecto de auto-absorción observado en el espectro para la muestra boro de metálico.....	194
Apéndice B.....	207
Pruebas de la resolución en energía del detector	207
Observaciones en la mezcla de gases	213
Apéndice C	221
Estudio del posicionamiento del detector en el sistema de moderación.....	221
Apéndice D.....	227
Métodos ensayados para el cálculo del área de interés en los espectros obtenidos producto de la reacción ($n, {}^{10}\text{B}$).....	227
Apéndice E	237
Simulación de configuración de moderación modificada.	237
Apéndice F.....	250
Detalles constructivos relacionados a la fabricación del detector.....	250
Apéndice G.....	263
Estimación del equivalente de dosis ambiental $H^*(10)$	263
Modelado de la fuente.....	267
Referencias.....	274

Introducción

El interés en desarrollar la técnica **BNCT (TERAPIA POR CAPTURA NEUTRÓNICA EN BORO)** en Argentina comenzó a principios de la década del 90 (según se relata en la Ref. [1]), con la tesis de grado realizada por una alumna de la carrera de ingeniería nuclear en el Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, **Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA)**. Su trabajo incluía el estudio del reactor RA6 para su uso en aplicaciones médicas. Desde allí, el proyecto BNCT de la CNEA tomó forma sumando líneas de investigación en todas las áreas temáticas de importancia en BNCT y como hito clínico en el año 2003 se realizó el primer tratamiento a una paciente con melanoma en extremidades en el reactor RA6.

La técnica BNCT utiliza los productos de la interacción del neutrón térmico con el núcleo del átomo de ^{10}B para inactivar células tumorales. El ^{10}B es transportado hacia las células tumorales de forma selectiva mediante compuestos químicos que contienen este isótopo, continuando con la irradiación de la región a tratar en un haz de neutrones de bajas energías. Como el rango de las partículas producto de la reacción en el tejido biológico es del orden del tamaño de la célula, se logra un daño localizado principalmente en la zona a tratar y en las células tumorales dispersas en tejido sano, reduciéndose el daño en células sanas del entorno, tanto por el corto alcance de los productos como por la captación preferencial del compuesto borado en tumor.

Como es de esperar, se requiere de un grupo interdisciplinario para responder a las variadas necesidades que se presentan con el avance de las investigaciones. Allí es donde surge un espacio para el desarrollo de este trabajo, el cual parte de la necesidad de generar métodos que resulten adecuados y optimicen la cuantificación de ^{10}B en tejido biológico.

En este trabajo se propuso el desarrollo de un contador proporcional gaseoso que, por sus características específicas, pueda cumplir con lo requerido. Si bien ya existen diferentes métodos de cuantificación con los que se puede obtener eficientes niveles de cuantificación de ^{10}B en tejido, cada uno de ellos cuenta con ventajas y desventajas. Por ejemplo, algunos de ellos requieren de mantenimiento y / o insumos que provienen del exterior, cuyo costo es elevado. Otros métodos también requieren de la imprescindible irradiación de las muestras en un reactor, en otros casos se requieren cantidades de muestra (algunos miligramos) que no siempre pueden ser obtenidas y además existen ensayos que terminan con la destrucción de la muestra.

En este proyecto se logró diseñar y fabricar en el **Centro Atómico Ezeiza (CAE)** de la CNEA un contador proporcional gaseoso que logró detectar ^{10}B en agarosa (la agarosa simula el tejido biológico, como se verá más adelante) en niveles de concentración del orden de las 80 partes por millón (ppm, o microgramos de ^{10}B por gramos de muestra). La muestra de interés se coloca en su interior y su diseño permite trabajar simultáneamente con una muestra patrón y la muestra incógnita. Este equipo se conecta a una cadena espectroscópica usual típica de cualquier laboratorio de metrología. El detector logra registrar

las partículas producto de la reacción que produce el neutrón térmico interactuando con el ^{10}B . Los neutrones fueron aportados por una fuente de $^{241}\text{AmBe}$ de 5 Ci, los cuales fueron termalizados mediante parafina. Los ensayos se realizaron en un laboratorio que trabaja con este tipo de mediciones entre otras tareas.

El detector puede ser fabricado en serie, requiere mínimo mantenimiento y el principal insumo es una mezcla de gases (P10, que es 90% argón- 10% metano y un pequeño porcentaje de nitrógeno). Por sus características novedosas, se inició el pedido de generación de patente por CNEA, lo cual se encuentra en trámite en la actualidad.

Para llegar al desarrollo final del mismo, se trabajó con otros detectores existentes en CNEA realizando diversos ensayos que aportaron experiencia para generar el modelo final. En su fabricación y ensayos participaron el **(LMR) Laboratorio de Metrología de Radioisótopos** (CAE), el Laboratorio **División Instrumentación y Dosimetría. (L.I.D)**, Subgerencia Instrumentación y Control (CAE), **(PPFAE) la Planta de Producción y Fabricación de Aleaciones Especiales** - (CAE) y el **Instituto Dan Beninson (IDB) – (CAE)**.

El trabajo dejó planteada una serie de observaciones que suponemos, permitirán en una futura etapa del mismo, avanzar hacia la cuantificación de ^{10}B en tejido mediante esta técnica, la cual resulta ser original (aplicada a este fin) ya que aún no hay registro en la bibliografía de su uso.

Agradecimientos

Los principales agradecimientos están dirigidos a mi director *Gustavo Santa Cruz*, el cual aceptó dirigir este trabajo de tesis doctoral y me compartió su idea de estudiar la posibilidad de cuantificar ^{10}B con contadores proporcionales, aportando su reconocido conocimiento y experiencia en temas de física y en especial de física médica aplicada a BNCT. El otro pilar de este trabajo fue *Silvia Thorp* (LID) que realizó las mediciones con la fuente de neutrones. Me recibió en su lugar de trabajo y compartió sus amplios conocimientos de física experimental durante las mediciones que realizamos.

Otra parte muy importante de este proyecto la integraron los técnicos *Javier Barreto* y *Javier Furnari* (IDB). Ellos fueron los encargados de la fabricación del detector diseñado. Cuando fui con el plano del equipo a preguntarles si podían trabajar en su fabricación, se entusiasmaron con el objetivo y entre los tres mientras conversábamos sobre el ¿cómo?, ya lo imaginábamos hecho ese mismo día.

Por otra parte, conté con aportes que resultaron muy importantes en determinados momentos del trabajo como, por ejemplo; *Marcelo Miller* que además de brindarme las instalaciones del laboratorio (LID) y equipos para hacer mediciones, aportó materiales para la construcción del detector. *Daniel Bianchi* (PPFAE) nos brindó ayuda con el torneado de algunas piezas muy complicadas que requerían de elevados

conocimientos de tornería y también brindó diferentes materiales para la construcción del equipo.

El grupo de Imagenología del Boro - CAC, también participó con una valiosa colaboración con el aporte de sus muestras de agarosa las cuales contenían cantidades conocidas de ^{10}B en ppm, esto nos permitió tener una idea cuantitativa acerca de las posibilidades de detección de ^{10}B con el equipo. Las explicaciones de Agustina Portu sobre su experiencia en la aplicación de detectores SSNTD en BNCT y sobre el comportamiento de las muestras de agarosa, resultaron de mucha utilidad para este trabajo.

Obviamente, todos los compañeros y personal jerárquico del Laboratorio de Metrología de Radioisótopos (mi lugar de trabajo) participaron en diferentes momentos del trabajo, mediante comentarios y opiniones técnico-científicas. Aquí destaco la participación de *Eliana Depaoli*, que realizó conmigo las primeras mediciones con el primer detector utilizado. Siempre conté con las instalaciones y equipamiento del laboratorio a mi disposición para realizar las primeras experiencias, las cuales no involucraban neutrones térmicos.

Mi amigo de la vida y del fútbol, *Sergio Magno* (ajeno a la física de las radiaciones), me aportó una idea también para este trabajo.



Universidad Nacional
de San Martín



Dedicada a toda mi familia.

En especial a mis padres, Lidia y Mario

Y a Karina y Gabriel



Universidad Nacional
de San Martín



Comisión Nacional
de Energía Atómica



Universidad Nacional
de San Martín



Universidad Nacional
de San Martín



Comisión Nacional
de Energía Atómica

Capítulo 1

1.1 Comentarios generales acerca de BNCT

La terapia por captura neutrónica en boro (BNCT), para el tratamiento selectivo de ciertos tipos de tumores sólidos, es desarrollada en nuestro país desde la década del 90, por la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA).

Esta técnica aprovecha los efectos de la reacción nuclear de captura producida por neutrones térmicos (neutrones cuya energía ronda los 0.025 eV) interactuando con los núcleos de los átomos de ^{10}B . Dicha reacción libera dos núcleos, una partícula alfa o núcleo de ^4He , un núcleo de ^7Li y un fotón gamma como consecuencia del decaimiento del núcleo de litio que en el 93.7% de las veces emerge en su primer estado excitado. Las partículas alfa producidas poseen energías cinéticas de 1.47 MeV (93.7 %) y 1.77 MeV (6.3 %) y los núcleos de litio tienen energías cinéticas de 0.84 MeV (93.7 %) y 1.016 MeV (6.3 %). La energía del fotón de decaimiento del litio es de 478 keV. Se busca que dicha reacción ocurra en el interior y entorno de las células tumorales, de forma tal que se provoque la inactivación de la célula mediante los diferentes procesos de daño letal involucrados, durante y después del pasaje de la radiación ionizante en el tejido determinado como blanco.



En BNCT básicamente se utilizan compuestos que contienen ^{10}B , un elemento no radiactivo y con gran sección eficaz de captura de neutrones térmicos. Estos compuestos son suministrados al paciente de modo que dicho elemento se concentre selectivamente en el tumor. Luego el tejido tumoral es expuesto a un campo de neutrones de baja energía (epitérmicos), por ejemplo, neutrones cuyas energías no superen los 0.5 eV.

Entre los principales componentes del tejido orgánico se encuentran los elementos oxígeno, carbono, hidrógeno y nitrógeno. Los neutrones térmicos al interactuar con estos elementos pueden resultar dispersados o capturados. Cuando ocurre una dispersión elástica, los neutrones reducen su energía debido a la interacción con los núcleos transfiriendo parte de la misma.

Durante la captura neutrónica el neutrón primario es capturado por el núcleo blanco, pudiéndose generar partículas con energía cinética si el valor Q de la reacción es positivo. En el caso de la interacción de los neutrones térmicos con los elementos del tejido, se producen partículas cargadas y no cargadas que contribuyen a la dosis absorbida.

La interacción entre el hidrógeno y el neutrón térmico ($^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$) produce un deuterón y un fotón de 2.22 MeV.

Este fotón puede aportar a la dosis de manera no localizada al interactuar con el tejido, pudiendo escapar del mismo o ser absorbido.

La reacción de captura en el nitrógeno ($^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$) aporta a la dosis con un protón emitido de 0.58 MeV y con el núcleo de ^{14}C de 0.042 MeV, donde el rango del protón en el tejido es de unos 10 μm



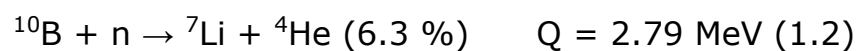
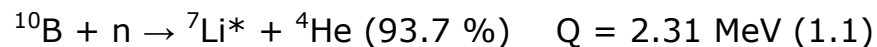


aproximadamente y del núcleo del ^{14}C es de $0.14\ \mu\text{m}$ (estimaciones realizadas con **SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)** (Ref [2])). Debido a los rangos involucrados, la energía de estas partículas se depositará localmente en el tejido.

Diferentes isótopos presentan una gran probabilidad de capturar neutrones de bajas energías o neutrones térmicos. Entre los distintos nucleídos que tienen alta sección eficaz de captura de neutrones térmicos, el ^{10}B resulta ser de particular interés debido a las siguientes razones:

1. El ^{10}B es un átomo estable que se encuentra con una abundancia aproximada del 20 % del boro natural.
2. Los núcleos producto de la reacción de captura $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ mantienen un alto LET (Trasferencia Lineal de Energía) y los rangos de los mismos son del orden de magnitud del tamaño célula.
3. El ^{10}B es incorporado a las diferentes estructuras del tejido y los procesos químicos involucrados son conocidos.

Las reacciones que pueden ocurrir cuando se irradia el ^{10}B con neutrones térmicos son:



En el 93.7 % de todas las reacciones de captura se emite el ${}^7\text{Li}$ en su primer estado excitado y sólo el 6.3 % lo hace en su estado fundamental.

Estas partículas (alfas y litios) tienen un rango corto dentro del tejido y depositan su energía localmente. Una estimación realizada con **SRIM** indica que para partículas alfa de energía 1.47 MeV, las mismas logran un alcance de 7.11 μm en un tejido biológico de densidad $1.09 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ (por ejemplo, piel). Para el caso del ${}^7\text{Li}$ con energía de 0.84 MeV, el alcance resulta de 3.94 μm , en idénticas condiciones. El núcleo de litio excitado decaerá emitiendo un fotón gamma de 0.478 MeV, el cual también contribuye a la dosis de forma no localizada.

En la figura 1.1.1 se esquematiza la reacción más probable;

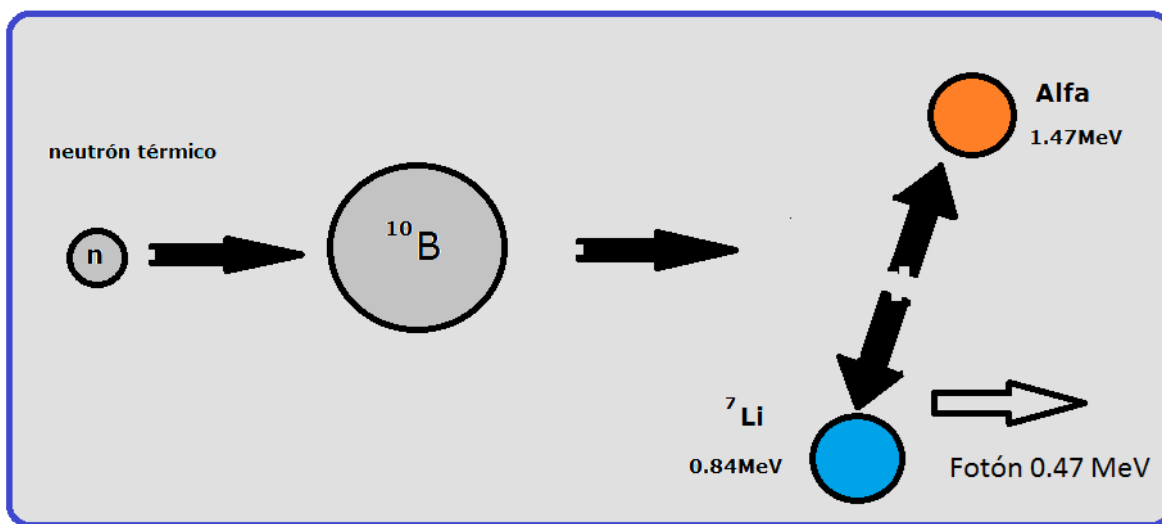


Figura 1.1.1. Esquema de la reacción ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ que se utiliza en BNCT. Se esquematiza el caso más probable.



La sección eficaz de captura de neutrones en ^{10}B se observa en la figura 1.1.2 y como se dijo anteriormente es particularmente alta para neutrones térmicos. Observar que rápidamente la sección eficaz decae con el aumento de la energía de los neutrones. La misma es proporcional a $1/v$ donde v es la velocidad de los neutrones.

En el proceso de tratamiento de un paciente, antes de irradiación con neutrones térmicos se le suministra al paciente un compuesto borado que por lo general es por vía intravenosa. El compuesto borado se concentra mayoritariamente en el tumor y en menor medida en el tejido sano. La relación entre la concentración de boro en tumor y en tejido sano es un factor importante de estudio.

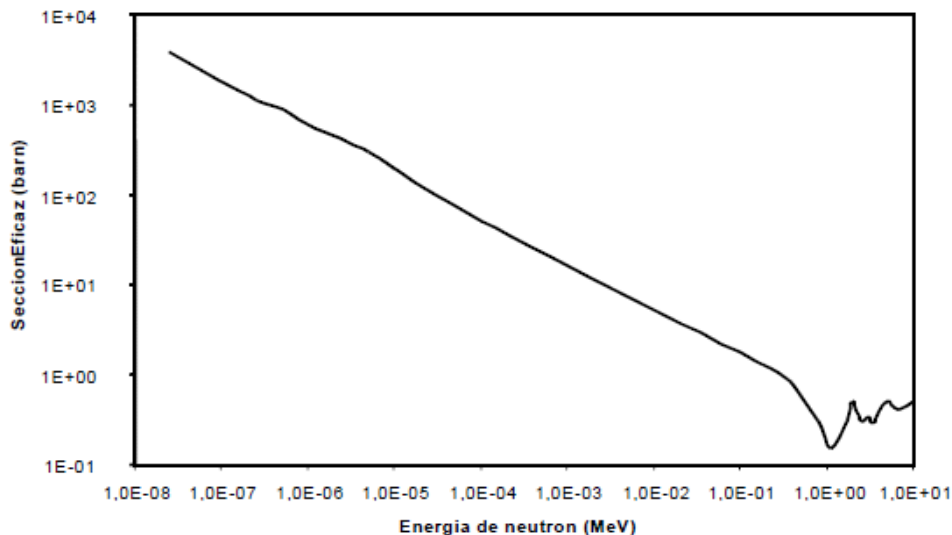


Figura 1.1.2 Sección eficaz de la reacción $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ como función de la energía del neutrón (Ref. [3]).



Según la localización (profundidad) del tumor en el tejido, se proyectará el tratamiento con neutrones térmicos (en torno a 0.025 eV) o epitérmicos (< 0.5 eV). Por ejemplo, en la superficie de la piel (como los melanomas), se puede utilizar un haz de neutrones térmicos. En casos donde el tumor está ubicado bajo la superficie de la piel, entonces se utiliza un haz de neutrones epitérmicos o de energías intermedias. Los neutrones perderán energía por dispersión elástica con los núcleos del tejido circundante al tumor y así llegarán termalizados al tejido blanco.

Si el haz de neutrones es producido por una fuente de mayor energía a la requerida para fines terapéuticos, entonces los mismos deben ser moderados hasta niveles térmicos o epitérmicos. Regulando las dimensiones y forma del material de moderación es posible lograr el haz terapéutico.

Para reducir la energía de los neutrones se realiza el transporte de los mismos a través de materiales tales que por sus propiedades, provoquen pérdida de energía a partir de dispersiones elásticas. Un buen moderador debe reducir la velocidad de los neutrones, pero no absorberlos, siendo también deseable que el moderador reduzca la velocidad de los mismos en un número reducido de colisiones, o sea, que no se requieran grandes dimensiones de moderador, por lo que se necesita que ocurra una pérdida considerable de energía en cada colisión. A modo de ejemplo se muestra la tabla 1.1.1 donde puede observarse el número de colisiones promedio necesarias para reducir un haz de neutrones de 2 MeV hasta niveles térmicos (0.025 eV).





Finalmente, considerando equilibrio térmico entre los neutrones y las moléculas del medio circundante:

$$E = K.T$$

Donde: T es la temperatura absoluta (°K) .
K es la constante de Boltzmann : $1.38 \cdot 10^{-16}$ erg/°K

entonces una energía de 0.025 eV se corresponde a una temperatura de 20 °C, de allí es que se habla de neutrones térmicos, siendo el factor de conversión de erg a eV igual a $6.242 \cdot 10^{11}$ eV.erg⁻¹.

PROPIEDADES DE LOS MODERADORES		
Elemento	Número de masa	Colisiones calculadas que se requieren para la termalización
H	1	18
D	2	25
He	4	43
Li	7	67
Be	9	86
C	12	114
O	16	150
U	238	2172

Tabla 1.1.1. Número promedio de colisiones necesarias para disminuir la energía de los neutrones desde 2 MeV hasta 0.025 eV. Ref. [4].



1.2 Proyecto BNCT en la Argentina

El proyecto BNCT de la CNEA se ha organizado a lo largo de los años en 12 áreas temáticas: 1) Aplicaciones Clínicas y Pre-clínicas, 2) Aceleradores, 3) Imagenología del Boro, 4) Química del Boro, 5) Nano-vehículos borados, 6) Radiobiología del cáncer oral, metástasis hepáticas y pulmonares y artritis reumatoidea, 7) Radiobiología del melanoma y cáncer de tiroides, 8) Instrumentación, 9) Dosimetría computacional y planificación de tratamientos, 10) Reactor RA-3, 11) Reactor RA-6 y 12) Física médica.

Paralelamente, se realiza una clasificación por tareas preponderantes, las cuales mantienen interconexión entre ellas, lo que es necesario en un proyecto interdisciplinario como BNCT.

- A) INVESTIGACIÓN APLICADA
- B) DESARROLLO TECNOLÓGICO
- C) PROTOCOLOS PRE-CLÍNICOS
- D) APLICACIONES CLÍNICAS

INVESTIGACIÓN APLICADA: se centra en la concepción y realización de modelos, experiencias, síntesis de compuestos transportadores y nano-vehículos, y análisis de datos biológicos y biofísicos que permiten comprender la ventaja terapéutica de BNCT. El objetivo principal es proveer una base científica rigurosa para la proyección de los experimentos hacia modelos más complejos (a nivel de un animal grande o un órgano), dando lugar a ensayos pre-clínicos, etapas

necesarias para la eventual aplicación en pacientes humanos. En BNCT, la investigación aplicada comprende la utilización de modelos celulares de tumor (cultivos, micro-tumores), modelos en pequeños animales (ratones, hámsteres y ratas), modelos físicos de la acción de la radiación (probabilidad de control tumoral y de complicación de tejido normal, microdosimetría, dosimetría macroscópica, computacional), determinaciones cuantitativas de boro en matrices biológicas (espectroscopía por emisión óptica y autorradiografía), diseño, concepción y ensayos de nano-vehículos transportadores de boro, cálculo neutrónico en tejidos biológicos, modelos computacionales biológicos de alto detalle y técnicas de seguimiento no invasivas (termografía infrarroja dinámica, inspección clínica, estudios de imágenes, etc.).

DESARROLLO TECNOLÓGICO: comprende el diseño, modelado y caracterización de campos de radiación de neutrones de bajas energías con reactores y aceleradores, de herramientas, instrumentación y dispositivos para la medición de características físicas del campo de radiación, desarrollos innovadores para la medición analítica de concentraciones de boro a escala global y microscópica, la utilización de técnicas de imagenología no invasiva de tejidos y órganos, tecnología para la dosimetría y el control de calidad de los haces, monitoreo de pacientes, etc. Es parte de los aspectos de ingeniería y de física de las radiaciones del proyecto BNCT.

PROTOCOLOS PRE-CLÍNICOS: la realización de ensayos pre-clínicos en modelos complejos (animales grandes, órganos, etc.) son requisito indispensable para la presentación de nuevas modalidades terapéuticas

ante las instituciones regulatorias y hospitales. En el proyecto BNCT de CNEA, se están realizando dos protocolos: 1) Estudio de la radiotolerancia de pulmón normal en ovejas mediado por cirugía de explante-reimplante y 2) tratamientos de cáncer de cabeza y cuello en perros sin opción terapéutica.

APLICACIONES CLÍNICAS: la CNEA ha obtenido una licencia expedida por la ANMAT y por la ARN para el tratamiento del melanoma cutáneo en extremidades, protocolo clínico que se ha llevado a cabo en la facilidad de tratamientos del reactor RA-6, Centro Atómico Bariloche. Hasta la fecha se han realizado 11 irradiaciones de melanoma con resultados comparables a las mejores técnicas de radioterapia disponibles, y con muy baja toxicidad asociada.

1.3 Métodos de cuantificación

Al igual que cualquier modalidad de tratamiento radiante, BNCT requiere estudios de dosimetría detallados, a diferentes escalas espaciales, con el fin de evaluar los efectos del daño causado al tejido por la radiación y el control tumoral. Por tal motivo y teniendo presente que el ^{10}B es el isótopo que provee la diferencia terapéutica en BNCT, diferentes desarrollos se implementan para poder lograr métodos de cuantificación de ^{10}B en el tejido.

Es posible realizar una comparación entre las diferentes técnicas o métodos aplicados mediante la inclusión del concepto de **alcance** de la técnica, sumado a la observación de magnitudes involucradas en el proceso de medición.



El alcance se refiere al nivel con que puede determinarse la concentración de boro en la muestra. Se dice que el alcance es "global" cuando se trata de técnicas macroscópicas. El alcance es "local" cuando las técnicas son aplicables a escalas microscópicas y es "regional" cuando la concentración de ^{10}B puede determinarse a nivel de órganos, pero no a nivel celular.

Respecto a las magnitudes, por ejemplo, se pueden mencionar tanto el límite de detección que brinda cada técnica como también la cantidad de muestra requerida en el ensayo (puede ocurrir que la cantidad requerida no sea posible de obtener). Si la técnica provee una resolución espacial de la ocurrencia de las reacciones a escala microscópica, permitirá abordar conceptos de microdosimetría (por ejemplo, para resoluciones menores al micrón). Por último, es importante remarcar el concepto de técnicas destructivas y no destructivas, refiriéndose a la conservación o no de la muestra luego del proceso de medición. Si la muestra no es afectada, sus propiedades pueden ser medidas por más de un método.

Pueden destacarse otros aspectos relevantes para cada técnica, desde un punto de vista más general, tales como la complejidad del equipamiento de medición y su mantenimiento, los insumos que se requieren, cantidad de personal necesario en el proceso de medición.



También es importante el tipo de facilidades que se requieren para el proceso de medición, en lo referido a las instalaciones involucradas. Por ejemplo, hay métodos que requieren de la existencia de un reactor nuclear que aporte un campo de neutrones termalizados para realizar las mediciones.

Tomando en cuenta lo comentado anteriormente, se realizará a continuación una breve descripción de algunos de los métodos que se aplican actualmente para cuantificar ^{10}B en tejido biológico.

El análisis mediante **ICP-OES (Espectroscopía por Emisión Óptica por Plasma acoplado Inductivamente)** es un método que entrega muy buenos resultados en términos de cuantificación, detectando niveles de concentración que rondan las ppb (partes por billón) siendo esta su mayor ventaja frente a otros métodos, pudiéndose realizar espectrometría de masa sobre los átomos de ^{10}B directamente, la cantidad de muestra requerida en el ensayo ronda entre 20 y 50 mg. Como contrapartida, el procedimiento resulta ser destructivo, no pudiendo recuperarse la muestra ubicada dentro del equipo. El método puede utilizarse asociado eventualmente a un espectrómetro de masas **(ICP-OES/MS – Mass Spectrometer)**. Para la formación del plasma, se utiliza argón, el cual resulta un insumo imprescindible para su funcionamiento. El equipo necesita mantenimiento que requiere de personal con conocimientos específicos relacionados a su funcionamiento. La técnica (considerada de alcance global) resulta ser un método secundario de medición, ya que requiere curvas de calibración para la determinación del elemento incógnita. Ref. [7]. [8].

Como se deduce de lo comentado, los equipos ICP-OES/MS no requieren del uso de fuentes de neutrones, ya que el análisis no se basa en los productos de la reacción de captura neutrónica. Esto se remarca para diferenciarlo de las técnicas que serán comentadas a continuación.

Los Métodos basados en la medición de los productos de la reacción ^{10}B (n, α) ^7Li , también son muy utilizados. En general requieren acceso a un reactor nuclear para la exposición a neutrones térmicos de la muestra de interés conteniendo ^{10}B para luego producir y detectar las partículas alfa, ^7Li y el fotón gamma instantáneo, las tres posibles fuentes de información de la concentración y eventualmente de la microdistribución del compuesto borado.

La técnica **PGRA** o también llamada **PGNAA (Prompt-Gamma Neutron Activation Analysis)** es una técnica considerada no destructiva en la cual la muestra es irradiada en un reactor por un haz de neutrones térmicos con flujos del orden de $10^9 \text{ n} \cdot \text{seg}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$. El núcleo bombardeado absorbe el neutrón, transformándose en un núcleo compuesto, el cual al desexcitarse emite un rayo gamma característico de la interacción. Debido a la corta vida del núcleo compuesto, a estos rayos gamma “instantáneos” se los conoce como prompt gammas. Un detector de germanio hiperpuro (normalmente identificados en la bibliografía por sus siglas en inglés como **HPGe**) ubicado en una región cercana a la muestra (ver figura 1.3.1), detecta este rayo gamma y mediante técnicas de espectrometría gamma se puede inferir la concentración de una muestra incógnita por comparación con una muestra patrón. Ref. [8]. [9].

En particular, respecto a la reacción $^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li}$, el núcleo de litio es producido el 93.7% de las veces en el primer estado excitado, decayendo mediante la emisión de un fotón gamma de 478 keV (prompt gamma). Luego, mediante el procedimiento mencionado, puede conocerse la concentración de ^{10}B de una muestra biológica. La cantidad de muestra requerida para la medición ronda los 500 mg y los límites de detección están en el orden de las 10 ppm. Se trata de un método secundario de medición (requiere de patrón de calibración). La técnica es considerada de alcance global y el método de medición es no destructivo. Aquí se destaca que el equipo de adquisición permite ver la formación del espectro (producto de la reacción buscada) a tiempo real. Ref. [7]. [8]. [9].

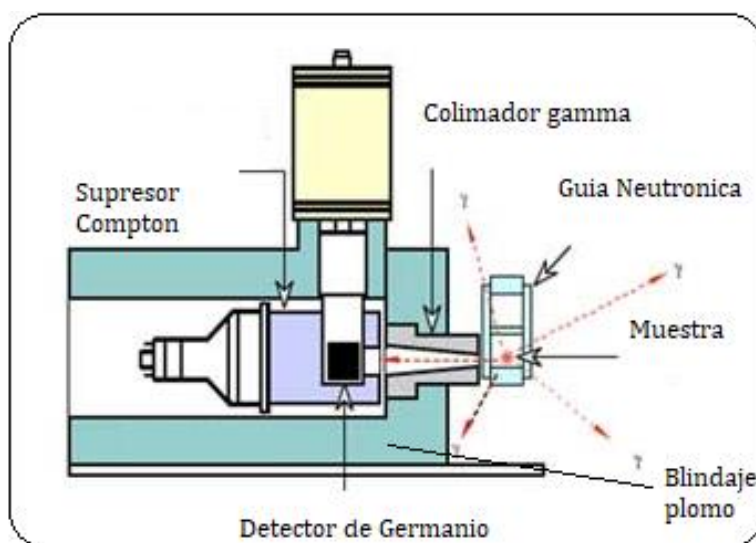


Figura 1.3.1. Esquema de la configuración de medición en la técnica PGNAA. Ref. [9].



QNCR (Quantitative Neutron Capture Radiography) es una técnica cuantitativa de la radiografía de captura de neutrones **NCR (Neutron Capture Radiography)** que se utiliza para el análisis de elementos que emiten partículas cargadas luego de la interacción con neutrones térmicos.

Generalmente incluye la fijación de una muestra en un delgado film (su espesor puede rondar entre los 2 μm y los 1000 μm , según su fabricante) identificado como **SSNTD, (Solid State Nuclear Track Detector)**, el cual registra las trazas producidas por las partículas cargadas luego de la interacción de los neutrones termalizados con la muestra. El flujo de neutrones térmicos suele provenir de un reactor (flujo del orden de $10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$).

En los comienzos del desarrollo de la técnica (en la Ref. [8] se indica ver el trabajo de Fleischer et al., 1975), se trabajó con materiales inorgánicos, pero luego los polímeros demostraron ser más sensibles que los materiales inorgánicos para la detección de trazas.

Cuando se aplica esta técnica en BNCT, las trazas a analizar son producidas casi exclusivamente por alfas y ^7Li , ya que los productos de la reacción $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$, no dejan trazas detectables en los SSNTD basados en ciertos polímeros (Lexan). Para el análisis de dichas trazas, se retira la muestra ubicada sobre el detector (SSNTD) mediante un proceso que destruye a esta muestra. Luego se somete al detector a un ataque químico selectivo (la técnica es conocida como; **Selective chemical Etching**) que realza y magnifica el daño producido por las



partículas al detector. Este procedimiento permitirá observar (por ejemplo) con **técnicas de microscopía óptica (la más utilizada en dosimetría) o microscopía de transmisión (TEM)**, las trazas dejadas por las partículas ionizantes. La utilización de patrones calibrados completa el proceso de cuantificación de una muestra incógnita. Esta técnica posee un límite de detección de 1 ppm requiriendo una cantidad reducida de muestra (rondando 1 mg). Es considerada una técnica de alcance local/global.

Como puede deducirse de lo comentado, todo el análisis necesario para la cuantificación de ^{10}B se realiza luego de la irradiación en el reactor y sin permitir observar una evolución parcial a tiempo real de la formación de trazas en el detector. Ref. [7]. [8].

Cuantificación por espectrometría alfa. Finalmente comentaremos sobre el método de cuantificación de boro que más se aproxima a lo que se intenta implementar en este trabajo. Se trata de un método de espectrometría desarrollado en los años 1986-87 en la Universidad de Pavía en Italia, Ref. [10]. Más tarde, en el año 2007, se realizó un trabajo que estudiaba la terapia BNCT en tumores diseminados en el cual se aplicó esta técnica de cuantificación, dando lugar a una tesis (Ref. [11]) de la cual se extraen las consideraciones que se detallan a continuación.

El sistema de medición consiste en un detector de silicio, conectado a una cadena de espectrometría. En general los detectores de este tipo se utilizan para la detección de partículas cargadas y son considerados de muy alta eficiencia. Se asume eficiencia 1 para la detección de partículas alfa. Para la adquisición de los espectros a analizar, se emplea un sistema especialmente diseñado (porta-muestra, figura 1.3.2) el cual contiene una muestra patrón, la muestra incógnita y una muestra para control de fondo. Todo el conjunto es sometido a un haz de neutrones térmicos provenientes de un reactor (flujo del orden de $10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Mediante un mecanismo de acción remota, se selecciona la muestra a medir. Luego de esta medición se continúa con el patrón y finalmente la medición de fondo.



Figura 1.3.2. Sistema posicionador de muestra y detector de silicio. Ref. [11].

Una vez obtenidos los espectros provenientes de la muestra, del tejido patrón de concentración de boro conocida y del fondo de medición, se define una región de análisis del espectro donde solo existe aporte de las partículas alfa. Luego, mediante una técnica de análisis (que no comentada aquí) que involucra las cuentas provenientes de los espectros, la eficiencia geométrica del equipo de detección y la sección eficaz de captura del ^{10}B para neutrones térmicos, se puede determinar el volumen efectivo de la muestra desde donde emergieron las partículas y finalmente la concentración de ^{10}B en la muestra de interés.

El método implica realizar un trabajo de mediciones (que no se detalla aquí) con la muestra de tejido con ^{10}B . Este procedimiento es descrito en la Ref. [12]. En el esquema de la figura 1.3.3, se observa la posición del sistema de medición y de la muestra frente al haz de neutrones térmicos.

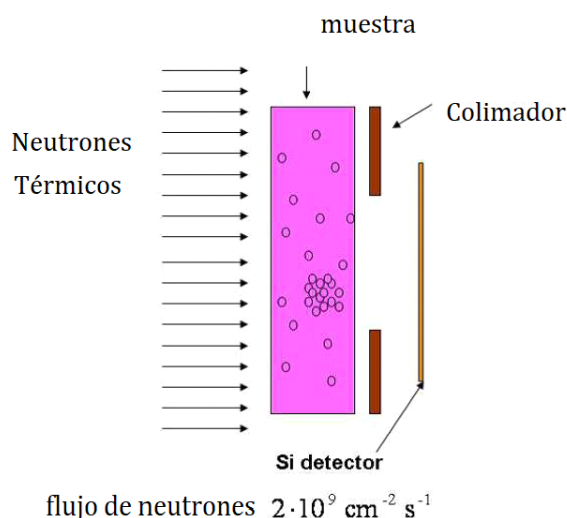


Figura 1.3.3. Esquema de la posición del detector y las muestras frente al haz de neutrones térmicos. Ref. [11].

El procedimiento de medición permite observar el espectro (producido por la reacción de interés) en tiempo real. La espectrometría alfa permite límites de detección menores a 1 ppm requiriendo de masas menores a 2 mg, considerándose una técnica de alcance global.

La figura 1.3.4 muestra dos curvas, una corresponde al espectro que se adquiere con la muestra, en el cual no se restó el fondo de medición (en color negro). La otra curva (en color rojo), es el espectro final de estudio al cual ya se le ha sustraído el fondo de medición. Este tipo de análisis es similar al que se verá en próximos capítulos donde se trabaja con contadores proporcionales.

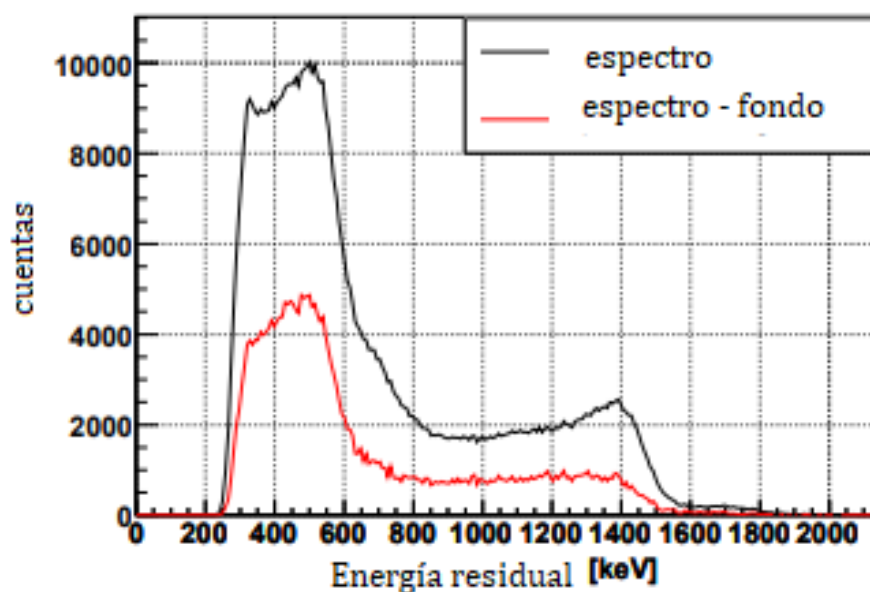


Figura 1.3.4. Superposición de espectros (muestra y muestra con la sustracción del fondo, en rojo) obtenidos por el detector de silicio. Ref. [11].

1.4 Búsqueda de otras opciones de cuantificación de ^{10}B

Como se comentó en la introducción, este trabajo tiene como motivación utilizar la reacción de captura neutrónica para cuantificar ^{10}B mediante un análisis espectroscópico de energías con la utilización de contadores proporcionales.

Este tipo de sistema permite distinguir entre partículas, porque mantienen una relación proporcional entre la energía depositada en su interior por dichas partículas y la carga generada en su interior, la cual luego formará los pulsos que conforman el espectro (con la inclusión de la cadena espectroscópica). La teoría indica que la eficiencia intrínseca de detección de estos detectores es 1. En el capítulo 2 se comentan detalles específicos de los contadores proporcionales y el proceso de formación de carga en su interior.

En principio, por el modo de operación del contador, la muestra incógnita no debería sufrir deterioro en el proceso de medición, por lo tanto, se estaría desarrollando un método no destructivo.

Otro aspecto importante es que un contador proporcional es un dispositivo que requiere mínimo mantenimiento y una vez fijadas sus características técnicas y de operación (luego de los ensayos para este fin), será posible fabricar la cantidad de equipos que se necesiten en la propia institución (CNEA). El insumo necesario para su funcionamiento es una combinación de gas P10 y nitrógeno, como se verá más adelante.



El desarrollo e implementación de esta técnica para su uso en la cuantificación de ^{10}B permitirá independizarnos del uso del reactor para la obtención de los neutrones térmicos, pudiéndose de esta manera realizar la cuantificación con la instrumentación usual disponible en un laboratorio de metrología. Se proyecta utilizar como fuente de neutrones, fuentes de neutrones del tipo $^{241}\text{AmBe}$, donde se utilizará moderadores de parafina para obtener neutrones térmicos.

La ventaja de este sistema de moderación es que, una vez construido, no requiere de mantenimiento técnico o en caso de existir éste es mínimo. Sin embargo, será necesario considerar una instalación tipo bunker como se discutirá en el capítulo 6.

Debido a que se trata de una técnica de espectrometría alfa, las expectativas relacionadas a niveles de detección, alcance, etc, se esperan comparables a las logradas por otras técnicas de espectrometría alfa (esto, una vez logrado el desarrollo final de la técnica).

La cadena espectroscópica necesaria para la operación del equipo permite realizar una medición a tiempo real del espectro relacionado a la muestra de interés, como veremos en capítulos siguientes.

Entonces por lo comentado anteriormente, se diseñó y construyó un contador proporcional para este propósito específico, trabajando previamente con un detector existente en el laboratorio (L.I.D).



Habiendo realizado muchas mediciones y observando las dificultades y necesidades que se presentaban, se culminó con el diseño y fabricación de un nuevo contador proporcional, del cual se comentará más adelante en el capítulo 4.

Se trabajó con una fuente de americio-berilio para obtener los neutrones. Este tipo de fuente posee un espectro multienergético. La termalización de los mismos se realizó con una configuración de placas de parafina, que permitía alcanzar un flujo cercano a $7 \cdot 10^2 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ de neutrones térmicos. Todos los trabajos realizados con dicha fuente y configuración de termalización fueron realizados en el laboratorio (L.I.D).

Es conocido que una partícula cargada moviéndose en un gas ionizable produce múltiples pares electrón – catión que, al ser colectados por los electrodos de un sistema detector y su electrónica asociada, contribuyen a la formación de pulsos que luego se discriminan según su altura, formando el espectro. Entonces, el método aquí ensayado utiliza este principio, intentando coleccionar y amplificar la carga generada por las partículas alfa y litio provenientes de la reacción $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ que se mueven en el gas dentro del detector.

Por tratarse de un procedimiento que no tiene registro en la bibliografía relacionada a BNCT, sumado al diseño novedoso del modelo final del detector construido, CNEA está tramitando la patente del equipo de



medición. Se realizaron las búsquedas correspondientes en las bases de datos de patentes internacionales, comprobando que no existe un sistema detector igual al que se desarrolló en este trabajo de tesis para la cuantificación de ^{10}B .

Citas en este capítulo; Ref. [2]. [3]. [4]. [5]. [6]. [7]. [8]. [9]. [10]. [11]. [12].



Capítulo 2

2.1 Contadores gaseosos

2.1.a. Conceptos generales

En este capítulo se mencionarán aspectos que se consideran relevantes sobre los detectores gaseosos. Un formalismo teórico más completo es desarrollado en bibliografía del tema (Ref. [3], [13], [14]).

Para la detección del paso de una partícula ionizante, los contadores gaseosos utilizan determinados tipos de gases como medio para generación de cargas para la formación de pulsos. Mediante una diferencia de potencial producida entre el cátodo y el ánodo, la carga generada es colectada. Las partículas ionizantes pueden provenir de alguna fuente de radiación la cual puede eventualmente estar ubicada fuera del detector o dentro del mismo.

En función de sus características constructivas y modo de operación, principalmente, podemos separar los detectores gaseosos en tres grandes grupos: cámaras de ionización, contadores proporcionales y contadores Geiger.

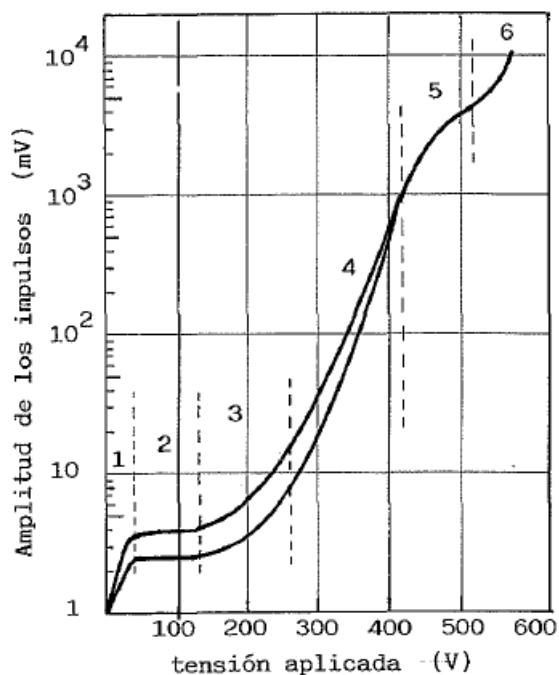
Las cámaras de ionización, de gran aplicación en la radiodosimetría, trabajan colectando carga generada por partículas ionizantes, como se comentó anteriormente, pero no discriminan la energía que ha dejado la partícula ionizante en el gas, por lo que no es posible diferenciar entre

partículas de diferente energía. Estos detectores trabajan en lo que se denomina modo corriente.

El contador gaseoso Geiger es muy utilizado para la detección de la radiación en ambientes tales como laboratorios o ambientes abiertos, ya que en muchos casos se trata de un equipo portátil, liviano y alimentado con baterías. No se requiere cadena espectroscópica para detección de la radiación. El dispositivo no discrimina energías de las partículas ionizantes y presenta la dificultad de no detectar radiación aún en presencia de la misma cuando se produce lo que se llama paralización del detector, efecto descrito en (Ref. [3]. cap. 5 y 6).

En general, el funcionamiento de los detectores gaseosos ya sea como cámaras de ionización, contadores proporcionales o detectores Geiger están sujetos a sus características de diseño. La combinación de los parámetros principales como forma y tamaño del detector, diámetro del ánodo, gas utilizado, presión de trabajo y tensión aplicada al mismo definirán su utilización conforme a su diseño.

La figura 2.1.a.1 muestra cómo se puede trabajar en diferentes regiones de operación para un detector de radiación gaseoso al cual se le aumenta la tensión progresivamente. Por supuesto que ciertas características de diseño del detector son necesarias para que, con un mismo dispositivo, se pueda trabajar en zona de cámara de ionización (zona 2) y eventualmente pasar a la zona de contador proporcional (zona 3) con un simple cambio en la tensión.



1. Zona de recombinación.
2. Zona de saturación.
3. Zona de proporcionalidad estricta.
4. Zona de proporcionalidad limitada.
5. Zona Geiger
6. Zona de descarga continua.

figura 2.1.a.1. Zonas de operación de un detector gaseoso. Ref.[3].

2.1.b Contadores proporcionales

Un contador proporcional, a diferencia de otros sistemas de medición de la radiación que utilizan gas, mantiene una relación “proporcional” entre la carga colectada por el detector y la energía que deposita la partícula ionizante al atravesar el gas. La fuente de emisión de partículas (la fuente a medir) puede ser colocada en su interior o en su exterior, según el diseño del equipo, como muestran la figura 2.1.b.1.

Contador proporcional
cilíndrico de flujo pasante



Contador proporcional plano
multi-hilo de flujo pasante.

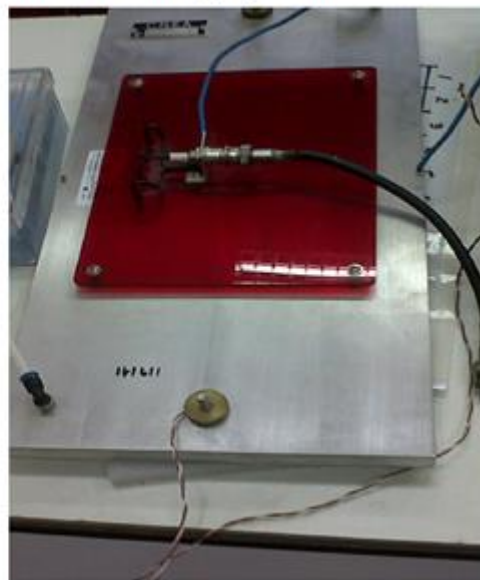


Figura 2.1.b.1. Se muestran dos diferentes tipos de contadores proporcionales. El detector cilíndrico (izquierda) lleva la muestra a medir en su interior. El detector plano (derecha), se ubica sobre la muestra a medir (muestra externa), se utiliza para fuentes de área apreciable. (L.M.R).

El proceso de generación de carga en el gas comienza con el paso de la partícula ionizante. En este tránsito, la partícula ionizante provoca la separación de electrones de la órbita externa de los átomos del gas ionizable. A cada uno de estos electrones se lo denomina electrón primario.

Debajo se muestra el esquema en corte transversal de un contador cilíndrico con ánodo central. Figura 2.1.b.2.

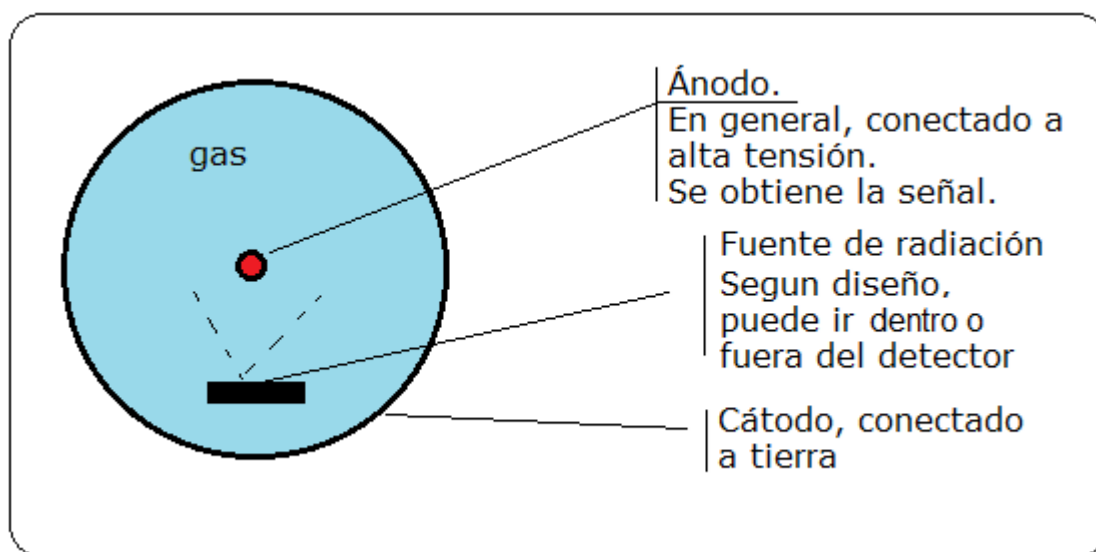


Figura 2.1.b.2. Esquema del contador cilíndrico, corte transversal.



Este electrón primario, comienza a ser acelerado por el intenso campo eléctrico hacia el ánodo, hasta llegar a una región cercana al mismo en la cual el electrón primario comienza a remover electrones de los átomos del gas que encuentra a su paso. A estos electrones removidos por el electrón primario se los denomina electrones secundarios. El proceso continúa produciendo una avalancha (figura 2.1.b.3), en donde por cada electrón primario se generan M-electrones secundarios. Al valor M se lo conoce como factor de multiplicación el cual, operando en la zona de trabajo proporcional, puede llegar a valores hasta 10^4 (electrones secundarios/electrón primario).

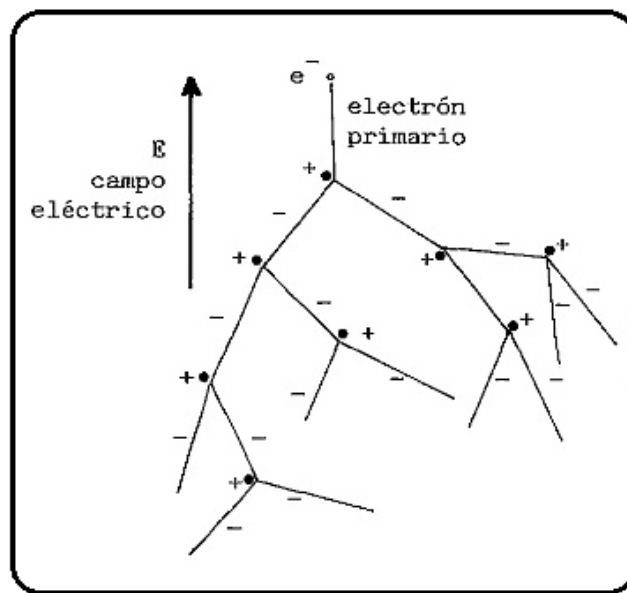


Figura 2.1.b.3. Esquema del proceso de avalancha. (Ref. [3])

Para afirmar que se trabaja en zona de contador proporcional, la carga generada en el contador debe mantener una relación directa con la energía depositada por la partícula ionizante en el gas. Esta carga luego se transformará en un pulso en la electrónica de adquisición y una cuenta en el espectro después de pasar por la cadena espectroscópica. Generalmente existe un rango de tensión aplicable al detector y de presión de gas para los cuales se puede asegurar que se está operando en la zona de contador proporcional. La proporcionalidad entre carga producida en el detector y la energía depositada por la radiación tiene su expresión como indica la ecuación 2.1.b.1.

$$Q = M.N.e = M \frac{AE}{w} e$$

Ec. 2.1.b.1

Q = Carga total depositada en el contador
N = Número de pares electrón-ion producidos en el gas.
M = Factor de multiplicación
AE = Energía depositada por la radiación en el gas
w = Energía necesaria para producir un par electrón-ion en el gas
e = Carga del electrón

El gas a utilizar juega un rol importante ya que la energía de ionización de los gases no es la misma para todos. En la tabla 2.1.b.1 se observa que en general se utilizan mezcla de gases en donde se tiene un gas noble como el argón combinado con otros gases que aportan una molécula poliatómica, por ejemplo, el metano. Además, se informa el valor típico de la constante de Diethorn (K) para cada mezcla de gases. Este valor es hallado experimentalmente y forma parte de la ecuación de multiplicación de cargas en los gases, como se verá más adelante. Es muy importante que en el gas que se utiliza para la detección de las partículas, pueda generarse el proceso de multiplicación con la menor



tensión de trabajo posible, esto reduce la aparición de descargas no deseadas dentro del detector además de la generación de posibles corrientes de fuga. El argón resulta óptimo a estos efectos ya que el proceso de avalancha se genera con valores de tensión aplicada al equipo a partir de valores entre 1200 V y 1500 V (dependiendo de factores constructivos del detector). No obstante, la utilización de argón como único gas de trabajo tiene como resultado que la multiplicación no pueda superar un orden de $10^3 - 10^4$, Ref. [3], sin que se comience a observar descargas.

Esto se debe a que, una vez comenzada la avalancha electrónica, ésta produce procesos de excitación y desexcitación del gas (con una energía de excitación en torno a 15.7 eV) produciendo fotones que por interacción con el cátodo generan la ionización del mismo, desprendiendo electrones que motivan al mismo tiempo un proceso de avalancha no deseado, Ref. [21]. Este efecto es reducido mediante el agregado de un porcentaje de gas que contenga una molécula poliatómica (por ejemplo, metano).

Parametros de Diethorn para gases proporcionales

Gas Mixture	K (10^4 V/cm · atm)	ΔV (eV)	Reference
90% Ar, 10% CH ₄ (P-10)	4.8	23.6	33
95% Ar, 5% CH ₄ (P-5)	4.5	21.8	33
100% CH ₄ (methane)	6.9	36.5	33
100% C ₃ H ₈ (propane)	10.0	29.5	33
96% He, 4% isobutane	1.48	27.6	33
75% Ar, 15% Xe, 10% CO ₂	5.1	20.2	33
69.4% Ar, 19.9% Xe, 10.7% CH ₄	5.45	20.3	33
64.6% Ar, 24.7% Xe, 10.7% CO ₂	6.0	18.3	33
90% Xe, 10% CH ₄	3.62	33.9	32
95% Xe, 5% CO ₂	3.66	31.4	32

Tabla 2.1.b.1. Ref. [3]. Constante (K) para mezcla de gases utilizados en detectores gaseosos.



El metano absorbe parte de la energía de estos fotones no deseados disipando la misma, por ejemplo, a través de colisiones. Una combinación de gases muy utilizada para el llenado de detectores es la mezcla **P10**, la cual posee Argón en un 90 % V/V y Metano en un 10 % V/V.

La multiplicación tiene un comportamiento exponencial respecto de la tensión aplicada al detector, esto fue estudiado de manera experimental varias décadas atrás y tratado por diversos autores (Ref. [3]. [13] y Ref. [14]). En la figura 2.1.b.4, se muestran curvas del factor (M) como función de la tensión para dos tipos de gases. En ambos casos se observa un gas noble combinado con un reducido porcentaje de un gas formado por moléculas poliatómicas para lograr la absorción de fotones provenientes de las excitaciones del gas noble.

La multiplicación comienza a una distancia muy reducida del ánodo, típicamente en el orden de los micrones (Ref. [3]. [13]), y consecuentemente en un volumen reducido de gas que rodea al ánodo, lo que independiza el punto de partida de la partícula ionizante dentro del gas respecto de la formación del pulso.

Para conocer la expresión matemática de M correspondiente al contador cilíndrico, primeramente, se parte de la ecuación de Townsend (Ec. 2.1.b.2), que predice la evolución de la cascada electrónica en el sentido que establece la relación de incremento en el número de electrones por longitud de camino recorrido por la avalancha.

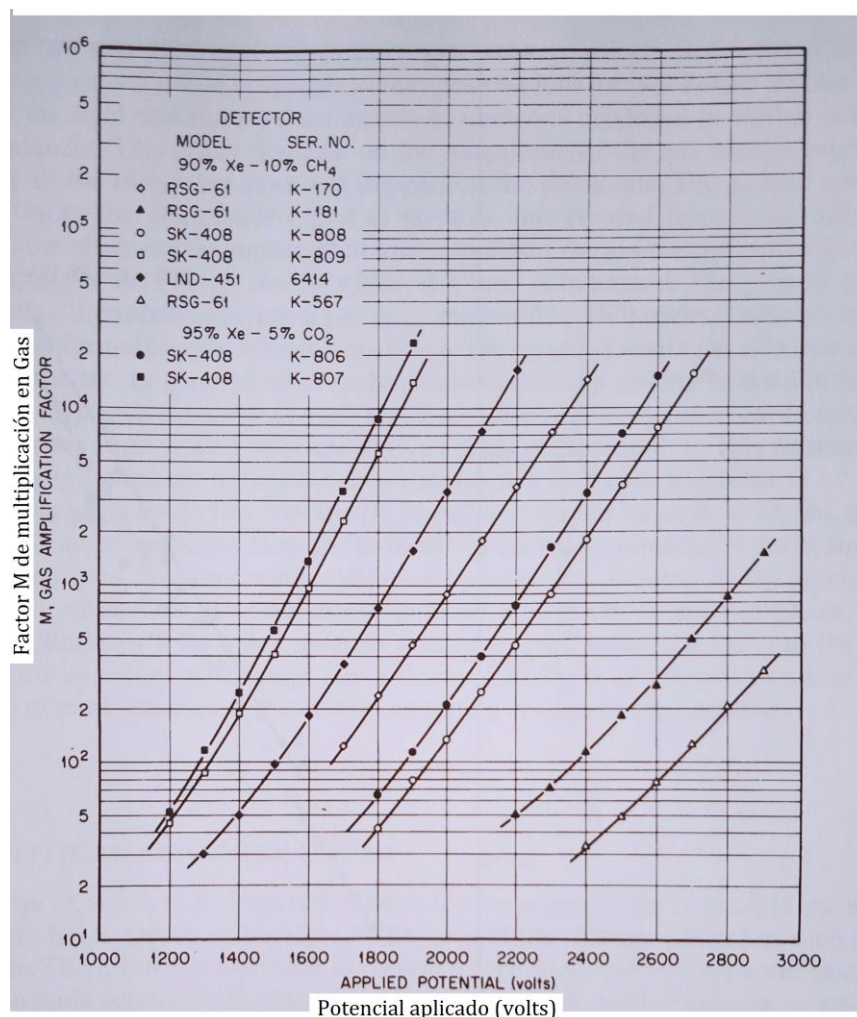


Figura 2.1.b.4. Valores del factor (M) como función de la tensión de trabajo del detector, para dos diferentes tipos de gas de llenado. Según se indica en la figura, se ensayaron diferentes detectores donde se indica serie y modelo de los mismos. Ref. [3].



$$dN = N \cdot \alpha \, dX$$

α = Primer coeficiente Townsend
 dX = Diferencial de camino recorrido por la avalancha
 N = Número inicial de electrones libres (pares ion-electrón)

Ec. 2.1.b.2

El parámetro (α), llamado primer coeficiente Townsend, está relacionado con el tipo de gas y fuertemente con la intensidad del campo eléctrico Ref. [3].

Para calcular M, se realizan algunas suposiciones que permiten la simplificación del problema, por ejemplo, asumir que no hay presencia de fotoelectrones, entre otras (ver Ref. [3]). Entonces se debe realizar la integral del primer término Townsend como sigue:

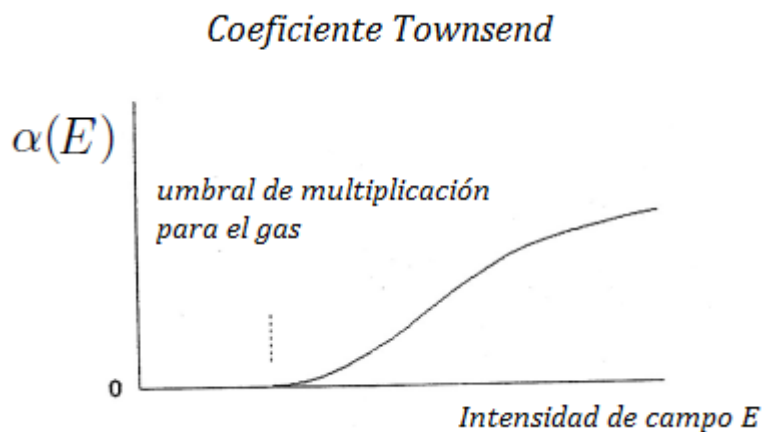


Figura 2.1.b.5. Primer coeficiente Townsend como función del campo eléctrico (E) para algún gas típico. Ref. [3].





$$\ln M = \int_{r_1}^{r_c} dr \alpha(r)$$

Ec. 2.1.b.3

El límite superior (r_c), es una distancia respecto del centro del detector para la cual se asume que no existe multiplicación (radio crítico). Para tener una idea aproximada de cuánto podría extenderse este valor existe un ejemplo en (Ref. [14], apartado 6.1), donde se define que para un ánodo de $r=10 \mu\text{m}$, $r_c=1 \mu\text{m}$, es decir un 10 % del radio del ánodo.

El caso más simple de resolver es cuando el campo es constante, como el existente en un capacitor de placas paralelas. En nuestro caso podemos asumir un detector cilíndrico infinito, entonces con esta geometría se tiene un campo con dependencia exclusivamente radial, ecuación 2.1.b.4.

Recordando la forma del campo eléctrico (E) para el cilindro infinito se tiene:

Donde:

$$E(r) = \frac{\Delta V}{\ln(r_2/r_1)} \left(\frac{1}{r} \right)$$

r_2 radio del cátodo
 r_1 radio del ánodo
 ΔV Tensión aplicada al detector

Ec.2.1.b.4





El mismo tiene dependencia radial y decae con la distancia. El esquema de la figura 2.2.b.6 muestra un esquema en corte transversal al detector donde se observa la variación del campo E con la distancia r :

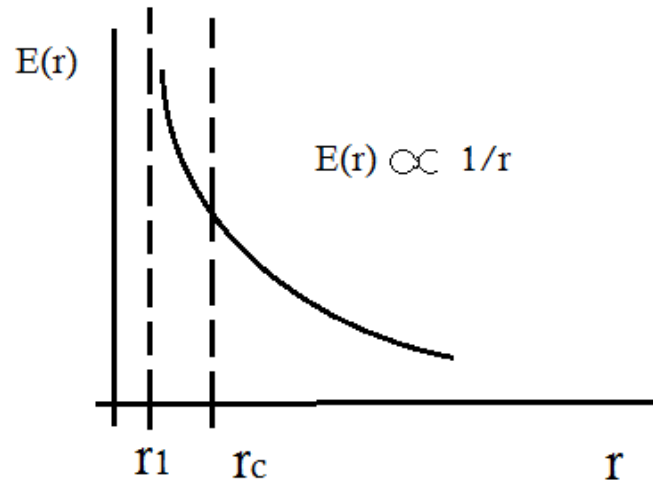


Figura 2.2.b.6. Se muestra un esquema en corte transversal al detector donde se observa la variación de E con la distancia r . Aquí r_1 es el radio del ánodo y r_c el radio crítico.

Aplicando un cambio de variables a la expresión 2.1.b.3;

$$\ln M = \int_{E(r_1)}^{E(r_c)} dE \propto(E) \frac{\partial r}{\partial E}$$

Ec. 2.1.b.5



Donde;

$$dE \frac{\partial r}{\partial E} = dr$$

Ec. 2.1.b.6

Rescribiendo la ecuación Ec.2.1.b.4 y aplicando la derivada parcial para la expresión $(r(E))$ se obtiene;

$$\frac{\partial r}{\partial E} = -\frac{\Delta V}{\ln(r_2/r_1)} \frac{1}{E^2(r)}$$

Ec.2.1.b.7

Reemplazando:

$$\ln M = \int_{E(r_1)}^{E(r_c)} dE \left(-\frac{\Delta V}{\ln(r_2/r_1)} \frac{1}{E^2(r)} \right)$$

Ec. 2.1.b.8

El resultado lleva a la ecuación hallada por Diethorn. Se arriba al resultado asumiendo una relación lineal entre el coeficiente Townsend y el campo E. Ref. [3].





$$\ln M = \frac{\Delta V}{\ln(r_2/r_1)} \frac{\ln 2}{\Delta V'} \left(\ln \frac{\Delta V}{Pr_1 \ln(r_2/r_1)} - \ln K \right)$$

Ec.2.1.b.9

Aquí, K es la constante de Diethorn.

K y $\Delta V'$; son constantes que dependen del gas y pueden ser halladas empíricamente

P ; presión del gas

r_2 y r_1 ; radio cátodo y radio ánodo

ΔV ; Tensión aplicada al detector

La ecuación hallada (Ec.2.1.b.9) será utilizada como referencia para conocer (aproximadamente) valores de parámetros principales del contador proporcional, como se verá en el siguiente apartado.

2.2 Aspectos relevantes de la geometría cilíndrica en un contador proporcional.

Para la fabricación de un contador proporcional, diferentes aspectos deben ser tomados en cuenta, comenzando por la pregunta: ¿qué nos interesa medir? Parámetros como el diámetro del cátodo, diámetro del ánodo, presión de trabajo, posibles tensiones de trabajo son variables que intervendrán en el análisis de diseño. Por ejemplo, para que una partícula alfa deposite toda su energía en el gas del detector sin posibilidad de que colisione contra el cátodo (y como consecuencia, perdiendo energía en la colisión), se puede estudiar el rango de la misma en el gas en función de la presión de trabajo del contador, aquí se piensa en el caso de que la muestra se encuentre en el interior del detector, en contacto directo con el gas.



Tal como se observó en el apartado anterior (2.1.b), la manera en la que se relacionan los parámetros característicos del contador encuentra su versión simplificada cuando se toma el caso idealizado del contador cilíndrico infinito con ánodo central concéntrico, ecuación 2.1.b.9. Observar que para el caso donde no existe multiplicación, o sea, para $M=1$, la ecuación 2.1.b.9 se convierte en ecuación 2.2.1. Aquí se consigue establecer una relación sencilla entre la presión P del gas y la tensión aplicada al detector ΔV , considerando a r_1 y r_2 parámetros fijos, ver figura 2.2.1.

Con respecto a la tensión aplicada al detector, una característica importante es que con geometrías cilíndricas pueden lograrse campos más intensos respecto de geometrías planas bajo una misma tensión de trabajo aplicada.

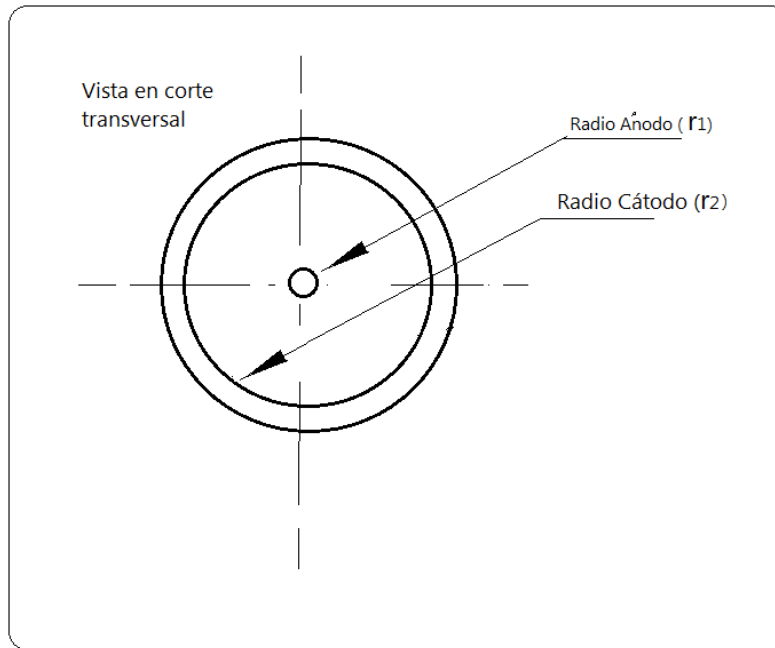


Figura 2.2.1 Esquema del cilindro infinito, corte transversal.

$$\ln \frac{\Delta V}{Pr_1 \ln(r_2/r_1)} - \ln K = 0$$

r_2 , y r_1 ; radio cátodo y radio ánodo

Ec. 2.2.1. Relación que establece la relación de partida entre diferencia de tensión y presión para obtener multiplicación en el detector. Aquí, K es una constante que depende del tipo de gas (constante de Diethorn).



Operando matemáticamente la expresión anterior obtenemos la ecuación de una recta Tensión (o potencial de polarización) vs Presión.

$$\Delta V = \left(K r_1 \ln \frac{r_2}{r_1} \right) P$$

Ec. 2.2.2. Relación entre la tensión y la presión en el detector, en el umbral del comienzo de la multiplicación.

Graficando la expresión de la ec. 2.2.2 se obtienen curvas que permiten una aproximación teórica del comportamiento del detector, respecto a la relación entre presión y el potencial de polarización al que se somete el detector para ingresar en zona de multiplicación y luego poder operarlo en zona de contador proporcional.

El diámetro del ánodo r_1 tiene relevancia como puede observarse en la figura 2.2.2. Por ejemplo, un ánodo fino produce un campo más intenso que un ánodo de diámetro mayor, ante un mismo potencial de polarización. Por razones comentadas anteriormente (apartado 2.1), se busca trabajar en zona de contador proporcional, con la menor tensión de trabajo posible.

La información que brinda el gráfico es importante para el diseño del contador cilíndrico como se comentará más adelante.

Finalmente, hay que destacar que la aproximación de cilindro infinito impone un campo eléctrico homogéneo respecto del eje longitudinal del cilindro detector.





En la práctica, los contadores tienen longitud finita, entonces resulta ser que el campo no es homogéneo en todo el eje, deformándose en los extremos del cilindro.

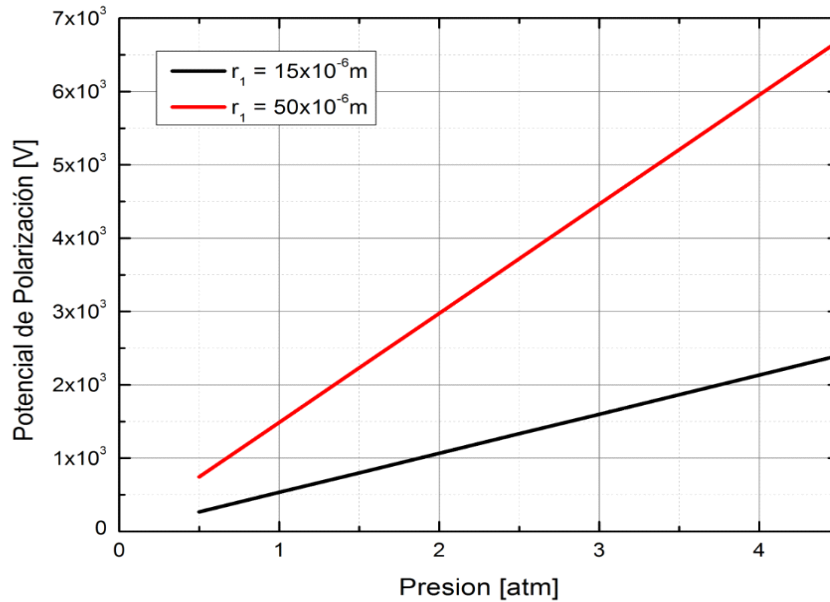


Figura 2.2.2. Relación entre la presión y potencial de polarización del cátodo para lograr el comienzo de la multiplicación en el contador cilíndrico, aproximación cilindro infinito. Observar la variación que aporta el cambio de radio del ánodo.



El requerimiento de campo eléctrico homogéneo es necesario para tener una multiplicación uniforme en el cuerpo del detector. Entonces para reducir los efectos de bordes (deformación del campo eléctrico) en el detector, se trata de construirlos de una longitud suficientemente grande, al menos un orden de magnitud mayor que su radio y ubicando la muestra en el centro, respecto del eje longitudinal. De esta forma, las partículas emitidas por la fuente dejarán su energía en la zona media del detector, donde el campo es esencialmente radial y aproximadamente homogéneo, respecto de los bordes, donde las líneas de campo se deforman y se apartan de la simetría axial.

Citas en este capítulo; Ref. [3]. [13]. [14]



Capítulo 3

3.1. Mediciones con el contador proporcional cilíndrico - Pruebas iniciales

Como se comentó inicialmente, el objetivo del trabajo es hallar un método para cuantificar boro en tejido biológico mediante la utilización de un contador proporcional, de diseño propio, que se adapte a los requerimientos.

Por ejemplo, es conveniente que el detector pueda alojar la muestra a investigar en su interior, ya que de esta forma se incrementa la eficiencia del sistema, principalmente por una cuestión geométrica, dado que la reacción se produce dentro del detector y las partículas alfa y litio emergen de la matriz (tejido biológico) encontrándose inmersas en el cuerpo del detector, produciendo ionización directa y multiplicación de cargas en el gas. La teoría indica que cada partícula cargada moviéndose en el gas del detector debería dejar como resultado del proceso un pulso en el espectro.

Además, se debe tener en cuenta que el detector se encontrará inmerso en un campo de neutrones térmicos y no térmicos y eventualmente de fotones. Estas condiciones de trabajo no deberían afectar su funcionamiento, por lo que los materiales de diseño deben ser adecuados para este fin.

En la primera etapa del trabajo se decidió utilizar un contador proporcional cilíndrico fabricado antes de este trabajo en el laboratorio (L.I.D), el cual se encontraba fuera de uso por bastante tiempo. El contador fue originalmente adaptado para trabajar en condiciones apropiadas para la medición de fuentes ubicadas en su interior, una de las características que se pensaban necesarias y que además mantenía geometría cilíndrica, aspecto deseado por cuestiones comentadas en el capítulo anterior en términos de la intensidad del campo eléctrico, Ref. [15]. Entonces, el mismo fue puesto en condiciones para comenzar con las pruebas. Se puede observar el despiece del detector, figura 3.1.1.

Todas las pruebas realizadas con este primer detector fueron muy importantes porque permitieron generar los conceptos e ideas de las que se partió para la fabricación del detector desarrollado, descrito en el capítulo 4.



Figura 3.1.1. Contador proporcional cilíndrico con el que se comenzó a trabajar para la detección de ^{10}B .

El ánodo central es un alambre de tungsteno de $100\ \mu\text{m}$ de diámetro y se encuentra dentro del cátodo soldado de forma concéntrica a él (esto fue parte de la restauración del mismo), ver figura 3.1.2.

El detector fue diseñado (originalmente) con sistema de guarda, lo que impide que corrientes de fuga puedan introducirse a la señal de medición, (ver en Ref. [3]). Este sistema posibilita que el detector, además de trabajar en zona de contador proporcional (en modo pulso), también pueda trabajar en zona de cámara de ionización, en modo corriente, detectando corrientes del orden de los nanoamperes. Esto fue comprobado para este equipo y puede verse en Ref. [16].

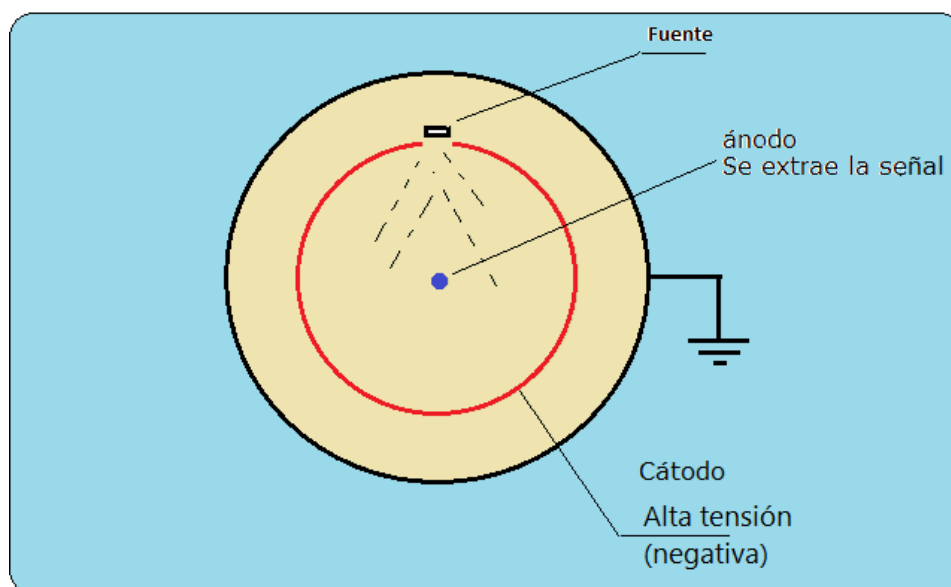


Figura 3.1.2. Vista en corte del detector

La cadena espectroscópica utilizada es una configuración usual para la conexión de un contador proporcional, figura 3.1.3. Consta de pre-amplificador, amplificador, fuente de tensión, un multicanal y PC, monitoreándose además los pulsos del amplificador por un osciloscopio conectado al sistema de conformación y amplificación de pulsos.

Si se compara el esquema del detector cilíndrico, figura 2.2.1, del capítulo anterior (que es un esquema usual que figura en diferente bibliografía del tema), con el esquema del detector de la figura 3.1.2, se aprecia una diferencia constructiva de importancia. El detector que se usará recibe la alta tensión directamente en el cátodo y de esta forma el ánodo solo transporta la señal sin conexión de alta tensión en el mismo.

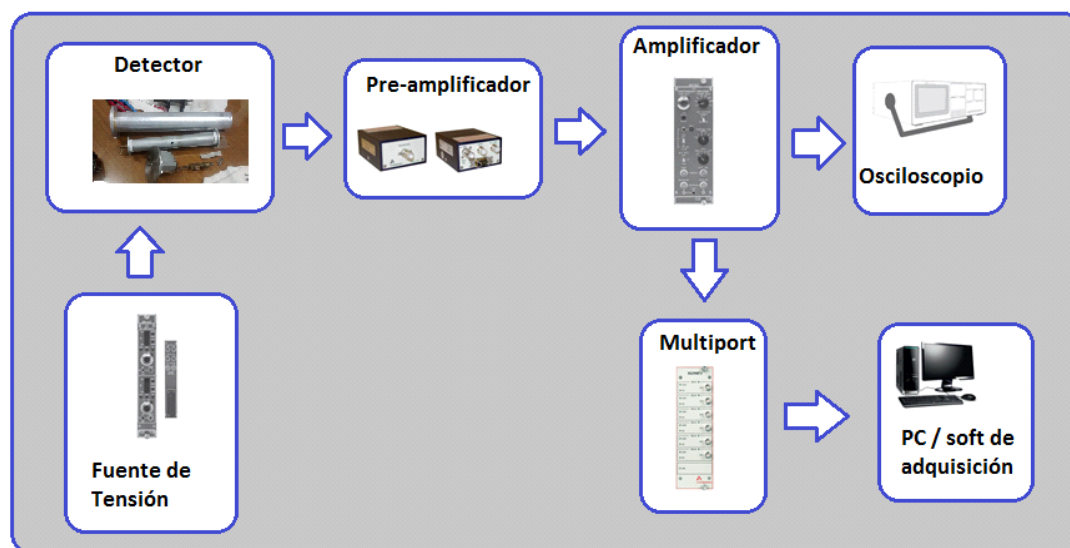


Figura 3.1.3. Esquema de la cadena espectroscópica para la utilización del contador proporcional.

Esto permite que al pre-amplificador solo se conecte la alimentación de su propia electrónica y el cable de señal. Los pre-amplificadores tienen un límite de tensión admisible (la que luego alimenta al ánodo). Este tipo de conexión protege al pre-amplificador de posibles excesos involuntarios en la aplicación de la tensión de trabajo al pre-amplificador. Simultáneamente se espera una reducción del ruido en la señal a la salida del pre-amplificador, (ver Ref. [3], cap.17).

Para las primeras experiencias se pensó en realizar espectrometría de partículas alfa con el detector, utilizando una fuente patrón de ^{241}Am . Inicialmente se consideró que no era conveniente comenzar las pruebas con neutrones, ya que las interacciones de éstos serían más complejas de analizar. Primero se necesitaba conocer el funcionamiento del detector, realizar una serie de pruebas y una caracterización de su desempeño (Ref. [16]). La fuente patrón de ^{241}Am resultaba óptima para estos fines. Figura 3.1.4.



Figura 3.1.4. Fuente patrón de ^{241}Am .
Pertenecientes al laboratorio de metrología



El proceso de preparación del detector para realizar las mediciones consta de las etapas siguientes: Abriendo la tapa frontal, se coloca la fuente en su interior sobre la ventana circular que posee el cátodo, como puede verse en las figuras 3.1.1 y 3.1.2, luego se cierra la tapa mediante un sistema de tornillos que permite al detector soportar presiones de hasta 4 atmósferas. Un anillo de goma (o-ring) impide posibles fugas del gas. Previamente al llenado de gas, al detector se le practica vacío para retirar el aire de su interior (proceso de purga), ya que principalmente el oxígeno, por su alta electronegatividad, perjudica al proceso de multiplicación. La mínima presión de vacío a la que se llegaba con una bomba mecánica era de 50 mtorr.

Para los estudios realizados se analizó el pico en el espectro formado por la emisión de partículas alfa, examinando el área del mismo y su posición en el espectro en función de la presión y la tensión aplicada.

Con el estudio de estos parámetros se pudieron derivar conclusiones que hacen al funcionamiento del detector. La figura 3.1.5 muestra una superposición de espectros, en donde el único cambio que se realiza entre cada experiencia es el aumento de la tensión. Observar el desplazamiento del pico alfa, con el aumento de la tensión. Al aumentar la misma, esto produce una mayor cantidad de carga que luego formará el pulso en el espectro, este aumento de pulso es ubicado en un canal superior por el sistema de adquisición.





Se fijó la presión de vacío de 50 mtorr como presión inicial para el llenado del detector con gas P10, la cual era la mínima lograda con la bomba de vacío (como se comentó anteriormente).

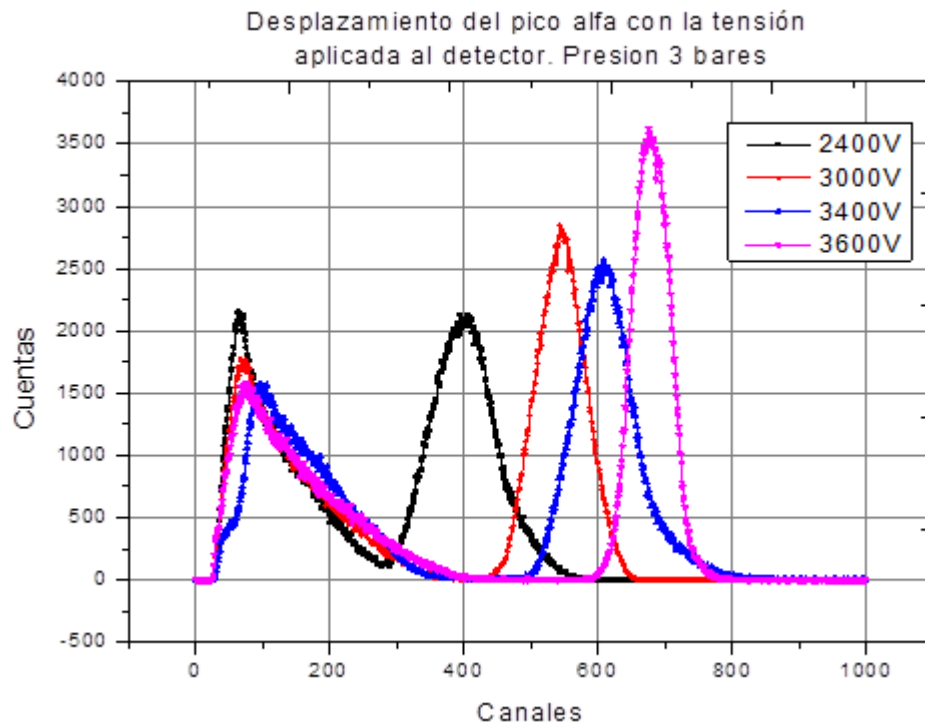


Figura 3.1.5. Superposición de espectros obtenidos con la fuente de ^{241}Am .

Sin embargo, se observó que existía un rango de presión de vacío en el cual podíamos comenzar a llenar el detector sin notar cambios en el conteo (área bajo el pico alfa). Ver figura 3.1.6.

Otros ensayos realizados estuvieron enfocados en comprobar el comienzo del proceso de multiplicación y su dependencia como función de la presión del gas y la tensión aplicada.

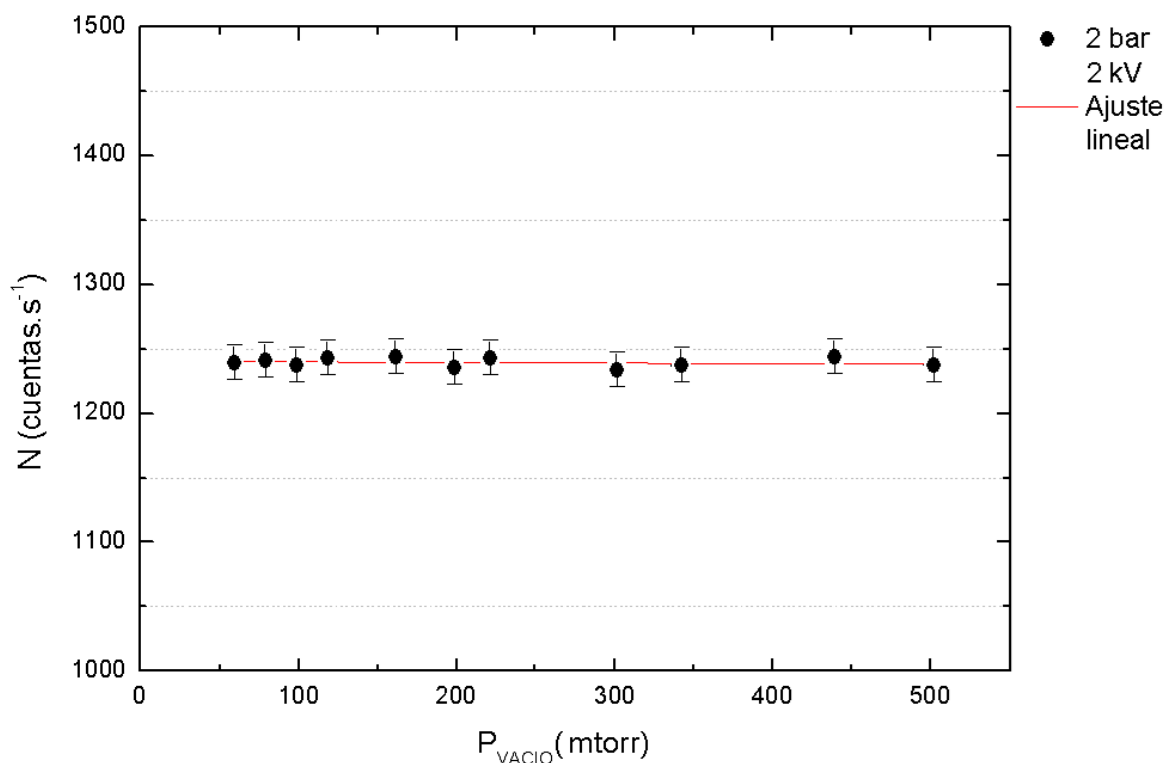


Figura 3.1.6. Variación del conteo (área del pico alfa) como función de la presión de vacío inicial. Realizado con fuente de ^{241}Am .



Algunos de estos resultados se muestran en La figura 3.1.7. Allí se observa la tasa de conteo del pico alfa como función de la presión y la tensión. Observar cómo varía la forma de la curva dependiendo de la presión según la tensión aplicada al cátodo del detector en los primeros tramos de cada curva. Por ejemplo, para 1500 V se puede ver que la tasa de conteo es mayor cuando la presión es 1 bar, respecto de las demás (cuando el detector se encontraba a mayor presión), luego con el aumento de la tensión, las curvas tienden a emparejarse.

La diferencia en cada caso es que la multiplicación comienza antes, cuando la presión es menor (para una misma tensión) y esto se corresponde con la ecuación 2.2.2 del capítulo 2.

Un desarrollo vinculado a la caracterización de este equipo, puede verse en Ref. [16]. Allí se estableció la zona de trabajo en modo contador proporcional, y también se observó el comportamiento del equipo en modo corriente, como función de la presión y tensión. Simultáneamente se realizaron algunas consideraciones teóricas.



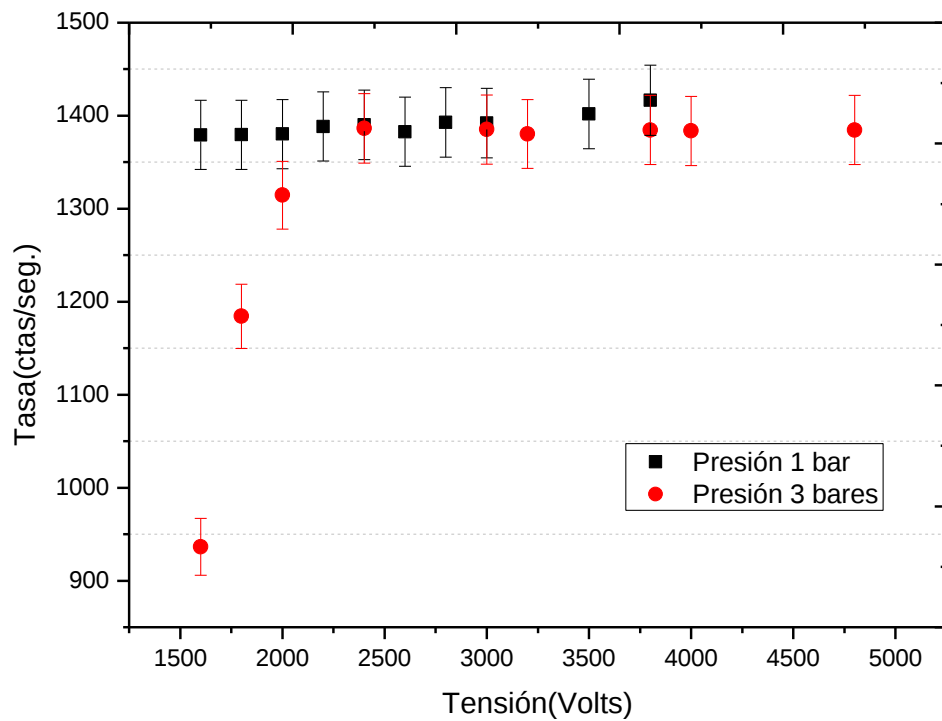


Figura 3.1.7. Comienzo de la multiplicación y estabilización de conteo para diferentes presiones de P10 dentro del detector.

3.2 Configuración moderadora de neutrones y pruebas con boro metálico.

Una vez realizada la etapa de prueba con el contador cilíndrico y habiendo adquirido experiencia en el manejo del detector y conociendo los parámetros relevantes y regiones de trabajo del contador proporcional, se decidió comenzar a someter el detector a un flujo de neutrones, usando como muestra boro metálico enriquecido en ^{10}B . El boro metálico fue aportado por el Laboratorio (L.I.D). Esta sustancia se encuentra como una mezcla de ^{11}B (80 %) y ^{10}B (20 %) en su forma natural. Lamentablemente no se pudo conocer el grado de enriquecimiento del mismo.

Aquí recordamos que las pruebas anteriores se realizaron con una fuente de ^{241}Am la cual emite partículas alfa de 5.4 MeV y fotones de 0.059 MeV. Como la fuente es de baja absorción interna por sus características de fabricación, era posible obtener un espectro con un pico bien definido. Con las muestras de boro enriquecido se tenía una situación diferente.

Debido a que el sistema de medición en desarrollo se basa en la interacción entre los átomos de ^{10}B y los neutrones térmicos, como se comentó en el capítulo 1, se necesita contar con una fuente de



neutrones y a su vez, de algún material que provoque la termalización de los mismos, en caso de que la fuente no emita neutrones térmicos.

Ambos requerimientos fueron aportados por el laboratorio (L.I.D). Allí se cuenta con una fuente de $^{241}\text{Am-Be}$. La misma cuenta con una actividad de 5 Ci aproximadamente.

El espectro de energías de los neutrones de esta fuente va desde $4.17 \cdot 10^{-2}$ MeV a 10 MeV, Ref. [17] con la distribución que se muestra en la figura 3.2.1.

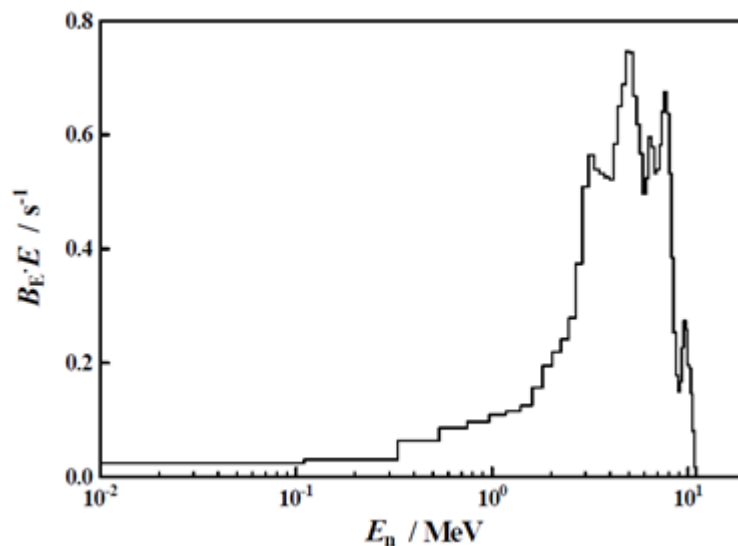


Figura 3.2.1. Ref. [17] El eje vertical indica un parámetro asociado a la intensidad de emisión normalizada.

En la bibliografía (Ref. [18]) se realiza una clasificación de los neutrones según su energía (ver tabla 3.2.1). También se destaca que aquellos neutrones cuya energía es inferior a 0.5 eV no logran atravesar una lámina de cadmio, la que se denomina “energía de corte del cadmio” a este valor.

En el transcurso del trabajo y principalmente donde se realizaron simulaciones Monte Carlo, se toma en cuenta este umbral, como se verá mas adelante.

<u>Denominación</u>	<u>E (ev)</u>	<u>v (cm/seg)</u>	<u>λ (cm)</u>
Fríos	0,005	$9,66 \times 10^4$	$4,08 \times 10^{-8}$
Térmicos	0,025	$2,20 \times 10^5$	$1,78 \times 10^{-8}$
Epitérmicos	1	$1,38 \times 10^6$	$2,86 \times 10^{-9}$
Lentos	10^2	$1,38 \times 10^7$	$2,86 \times 10^{-10}$
Intermedios	10^4	$1,38 \times 10^8$	$2,86 \times 10^{-11}$
Rápidos	10^6	$1,38 \times 10^9$	$2,86 \times 10^{-12}$
Ultrarápidos	10^8	$1,28 \times 10^{10}$	$2,79 \times 10^{-13}$

Tabla 3.2.1. Clasificación de los neutrones según su energía de los neutrones. (Ref. [18]).



El Laboratorio posee una configuración de moderación de neutrones, diseñada para los trabajos específicos que allí se realizan. El contador proporcional, por sus dimensiones, también podía ser introducido dentro de esta configuración. Entonces, se comenzaron las experiencias con esta misma configuración.

Durante todo el trabajo se utilizaron tres diferentes configuraciones de termalización, (se irán describiendo con el avance de los capítulos), según fueron requeridas y siempre dentro de las posibilidades que podía brindar el laboratorio. Sin embargo, ninguna de estas configuraciones puede considerarse definitiva para el proceso de medición buscado, por motivos vinculados a la baja tasa de conteo que se alcanzaba con las mismas (entre otros). Un análisis teórico mediante métodos Monte Carlo fue realizado para estudiar cual podría ser la configuración adecuada para nuestros requerimientos (capítulo 6 y apéndice G).

La configuración inicial con la que se trabajó se muestra en la figura 3.2.2. Se trata de un cilindro de parafina, el cual posee tres cavidades cilíndricas. En la de mayor diámetro se coloca el detector, en las dos restantes se puede ubicar la fuente de neutrones, generando dos tipos de geometrías, *cercana o lejana*, ya que los cilindros no se encuentran a la misma distancia respecto de donde se ubica el detector.

El laboratorio tiene realizadas experiencias que indican que el flujo de neutrones térmicos que se producen en esta configuración, con la fuente de $^{241}\text{AmBe}$, es del orden de $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-1}\text{seg}^{-1}$.



Con la configuración moderadora y la fuente de neutrones disponibles, se realizaron diferentes ensayos con el objetivo de estudiar una mezcla de gases no convencional. La composición de la mezcla es gas P10 con el agregado de una pequeña proporción de ^{14}N . En la interacción entre neutrones térmicos y ^{14}N se produce la liberación de un protón de 0.58 MeV, el cual debería dejar un pico de energía bien definido en el espectro.

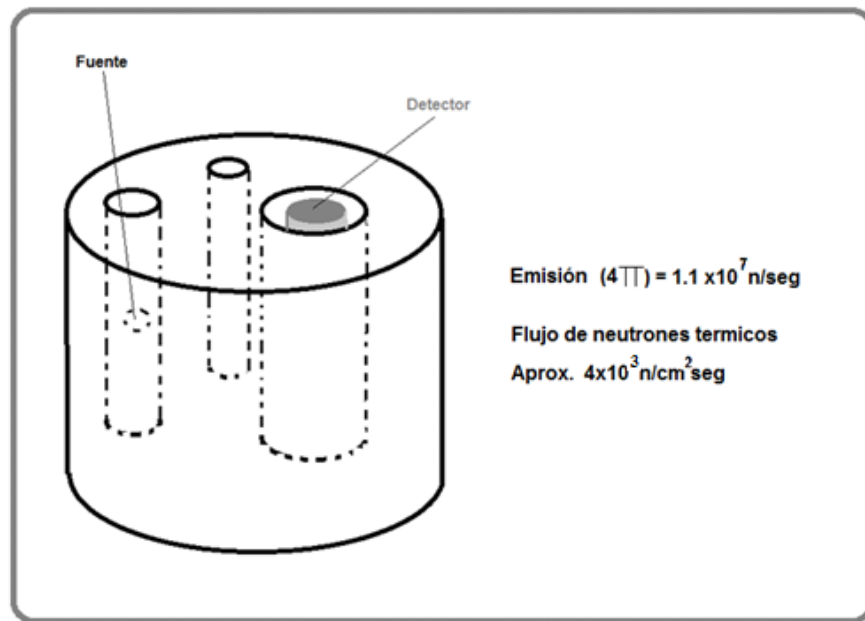


Figura 3.2.2. Esquema de la Configuración moderadora de neutrones, (L.I.D).



Este pico de 0.58 MeV actuaría como referencia de energía en un espectro que contenga también contribuciones provenientes de la interacción entre el ^{10}B y el neutrón térmico. Ver figura 3.2.3.

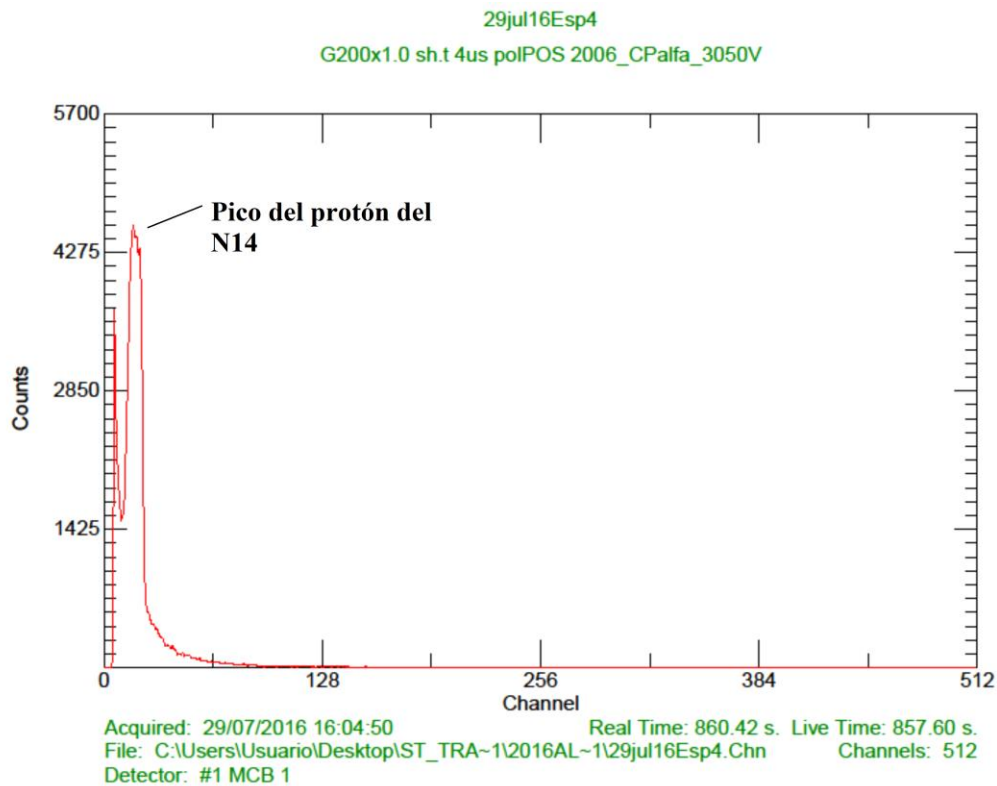


Figura 3.2.3. Espectro producido por el protón generado por la reacción entre el neutrón termalizado y ^{14}N , en una pequeña fracción (<10%) respecto del gas P10.



A partir de aquí se hicieron una serie de consideraciones ya que, como se ha comentado, el interés a futuro es observar ^{10}B en muestras biológicas. Si bien los niveles de boro en dichas muestras son muy bajos, del orden de las ppm (como se verá más adelante), en esta etapa preliminar se encaró el trabajo de caracterización del detector para medir los productos de la reacción. Para ello se requirieron muestras de ^{10}B con concentraciones tales que permitieran la fácil detección de los productos de la reacción en el espectro.

Como fue comentado, se decidió trabajar con muestras de boro metálico enriquecido (en ^{10}B) para realizar las primeras pruebas.

Las partículas de boro metálico mostraron tener geometría irregular y tamaños entre 50 μm y 250 μm , según las micrografías observadas. Las mismas fueron realizadas en el **Laboratorio de Materiales de Fabricación de Aleaciones Especiales (LMFAE)** dependiente del **Departamento de Tecnología de las Aleaciones de Circonio (DTC)**. Ver figuras 3.2.4 y 3.2.5.

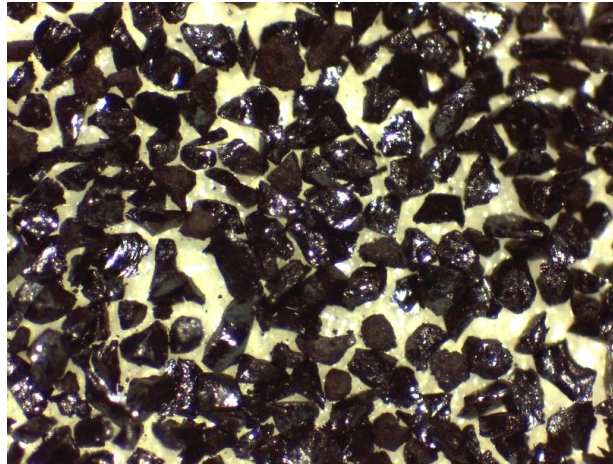


Figura 3.2.4. Imagen obtenida, con una lente de aumento, de boro metálico. Laboratorio de Materiales de Fabricación de Aleaciones Especiales (LMFAE). CNEA CAE.

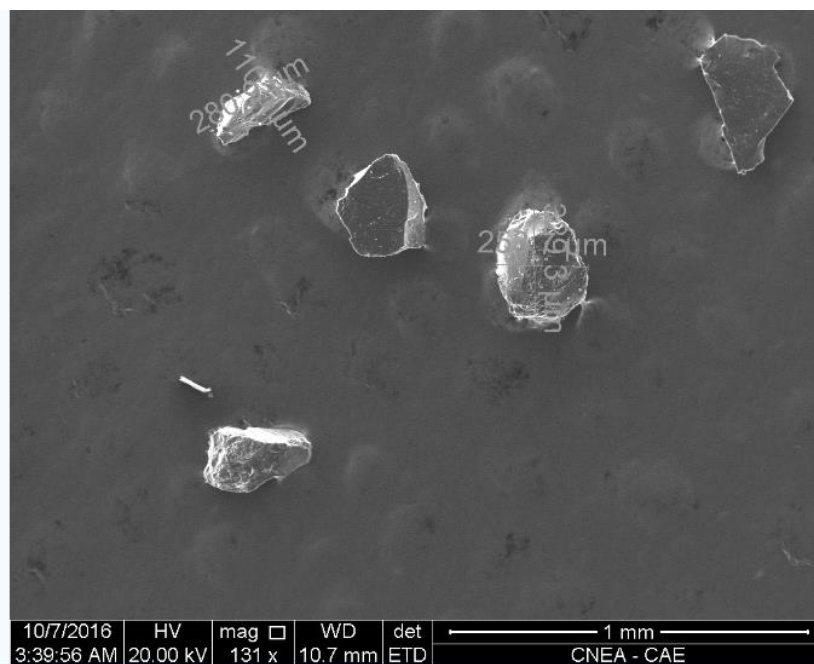


Figura 3.2.5. Micrografía realizada con microscopio electrónico. Laboratorio de Materiales de Fabricación de Aleaciones Especiales (LMFAE). CNEA CAE.



Luego de una serie de intentos, en los cuales se hicieron pruebas variando la cantidad de nitrógeno en la mezcla con el P10 (el agregado de nitrógeno al P10 reduce la multiplicación, ver apéndice C) y la tensión de trabajo, se logró visualizar espectros como el que se muestra en la figura 3.2.6 donde se puede observar el pico producido por el ^{14}N acompañado por dos mesetas que se prolongan a partir de este pico. Habiendo realizado una calibración estimativa usando el pico de 0.58 MeV, se puede inferir que las dos mesetas siguientes, podrían estar relacionadas con las energías del ^7Li de 0.84 MeV y de la partícula alfa de 1.47 MeV (la más probable). Ambos picos no pueden ser resueltos (en el sentido de ver un pico como en el capítulo anterior) por efecto de la auto-absorción, las partículas pierden energía en el mismo material desde donde emergen. Debido a esto el detector registra en el espectro un continuo de energías inferiores a la correspondiente reacción considerada, como veremos siguientemente.



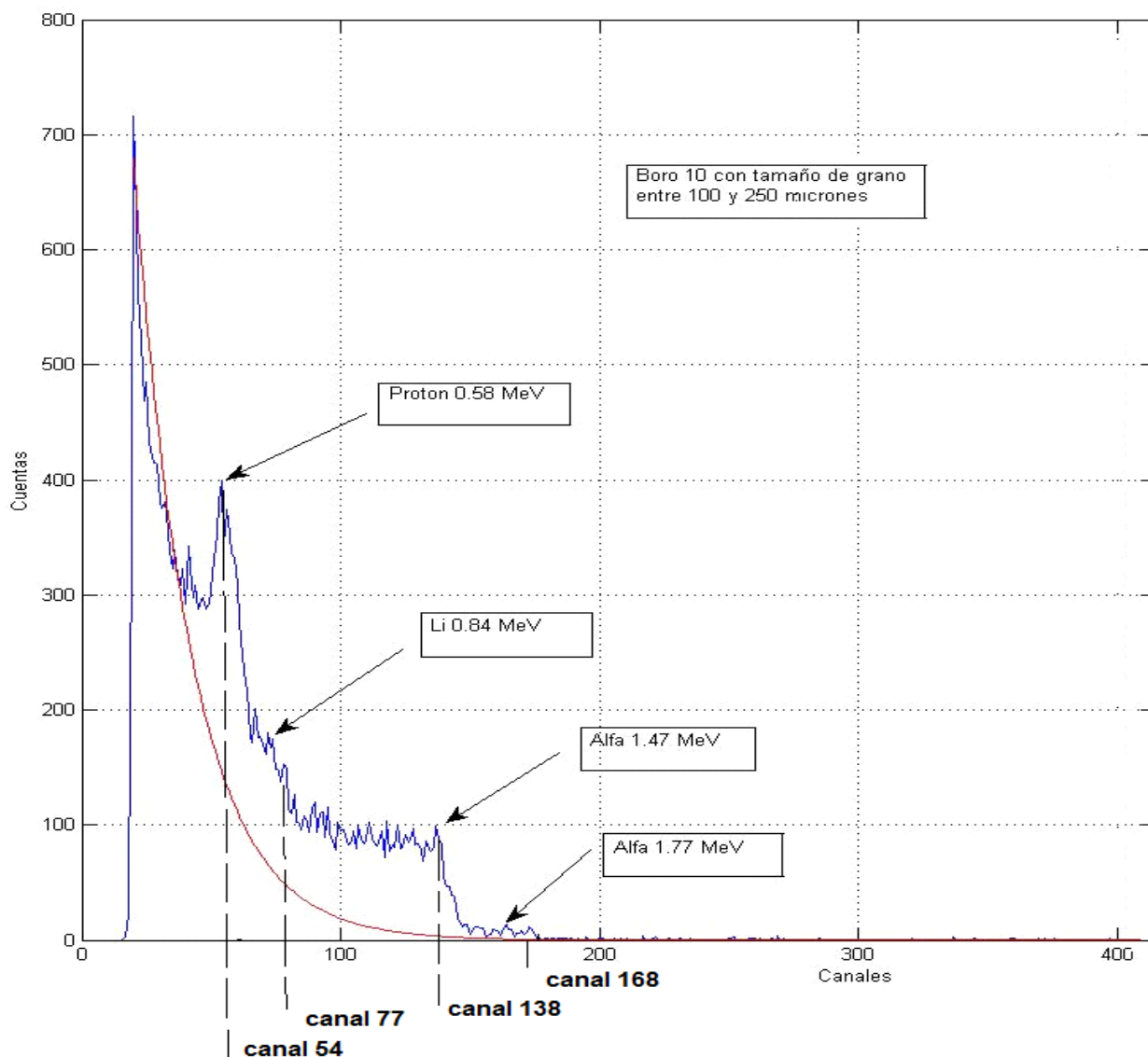


Figura 3.2.6. Observación de los productos de la reacción de captura en la muestra de boro metálico y pico de protones del ^{14}N . La curva en color rojo es una estimación del posible fondo presente en la medición. Se realizó con una función exponencial (F) ajustando constantes.

Se usó $F=850*(\exp(-(t-15).*0.045))$ con $t=(20:1:500)$.

Observar que la figura 3.2.6 en el eje horizontal muestra canales, sin embargo, indicamos una energía esperable en cada sector del espectro. La calibración en energía se logra mediante el uso del pico producido por el protón, producto de la interacción del ^{14}N y el neutrón termalizado. Si se trabaja en zona de contador proporcional, es de esperar mantener una relación lineal entre los canales de adquisición del sistema y la energía depositada por las partículas en el detector y esto es lo que se busca observar por simple inspección cuando se analiza un espectro (en nuestro caso). Es así que se puede establecer una relación entre los canales donde aparecen diferentes picos en el espectro y comparar si esta relación se mantiene entre las energías que se esperan observar en el espectro.

Por ejemplo; se conocen las energías involucradas en la reacción, entonces haciendo el cociente entre 0.58 MeV y 0.84 MeV, resulta 0.69. Ahora observando el espectro de la figura 3.2.6, vemos que el pico de protones se encuentra en el canal 54, la meseta siguiente comenzaría alrededor del canal 77, comienzo del pico de litio y haciendo el cociente tenemos 0.70. Observar más relaciones en la tabla 3.2.2.

Este es criterio que se utiliza para la lectura de los espectros que se muestran en este trabajo (respecto al ^{10}B).

Como se trabaja con muestras que poseen espesor considerable, respecto del rango de alcance de las partículas, no se observan picos de energías como el del protón del ^{14}N , por tal motivo en general, se habla de regiones donde aportan las partículas alfa y litio. Por tal motivo en algunos casos resulta complicado la identificación de dichas regiones.

Teniendo en cuenta que la densidad del boro es de 2.34 g.cm^{-3} , en estas condiciones una partícula alfa de 1.47 MeV, puede trasladarse alrededor de $3.5 \mu\text{m}$ dentro del ^{10}B (ver apéndice A). La pérdida de energía en el interior del grano provoca el efecto de tener un espectro continuo de energía depositada que va desde cero hasta 1.47 MeV (mayormente). Lo mismo ocurrirá con el litio a partir de 0.84 MeV.

	Energía MeV.	Cociente de Energía	Canales	Cociente de Canales
Energía protón	0.58		54	
		0.69		0.70
Energía Litio	0.84		77	
		0.39		0.39
Energía alfa	1.47		138	
		0.33		0.32
Energía alfa	1.77		168	

Tabla 3.2.2. Relaciones entre canales y energía de los productos de la reacción de interés. Observar que no se indica la energía de 1.016 MeV ya que se hizo difícil detectar su contribución en el espectro. No así con las alfas de 1.77 MeV que, en ocasiones, sí fueron posibles de observar, simplemente por la ubicación que poseen en el espectro total.



Con el objetivo de investigar el efecto de auto-absorción en los granos se realizó un modelo simple mediante simulaciones Monte Carlo (**M.C**, Ref. [19]), donde se observó el porcentaje de partículas alfa que emergen de la muestra respecto del total de las reacciones simuladas, ocurridas dentro del cuerpo del grano de boro y se graficó la energía disponible con la que logran salir del cuerpo del boro y con la cual terminarían dejando un pulso en el espectro. Más detalles de la simulación pueden verse en el apéndice A. Aquí se muestra el espectro simulado mediante el método Monte Carlo, cuando el grano tiene un tamaño promedio de 200 μm y cuando tiene un tamaño promedio de 1 μm . Figuras 3.2.7 y 3.2.8.

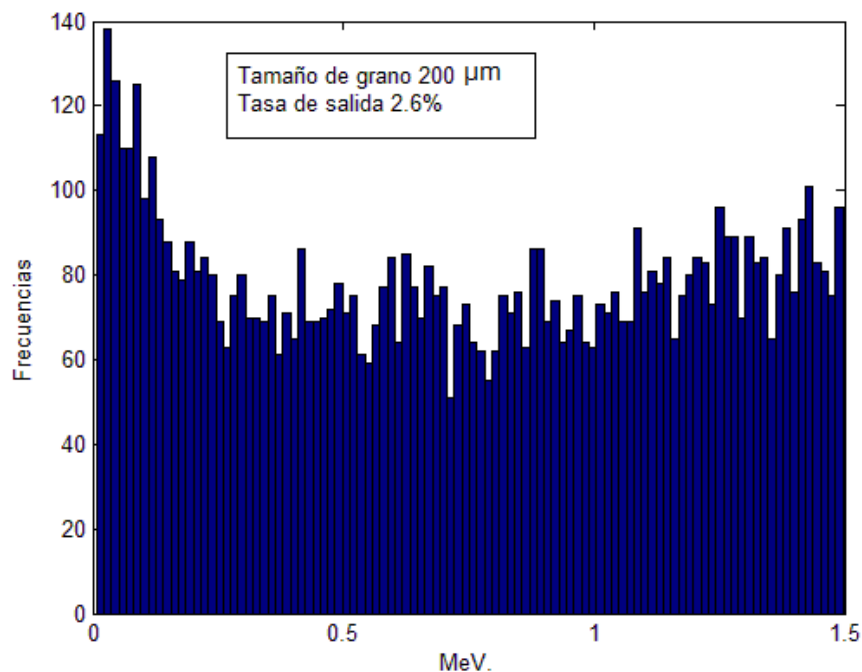


Figura 3.2.7. Se observa la simulación, obtenida mediante el método Monte Carlo, de un espectro generado por partículas alfa emergiendo de una muestra de boro. Con un tamaño de grano de 200 μm se tiene un espectro continuo y solo el 2.6% de las partículas logran salir para dejar un pulso en el espectro del total de las reacciones producidas.



Claramente, la forma del espectro depende del tamaño del grano, lo que está vinculado a la pérdida de energía de las partículas en su trayecto por dentro de la matriz del mismo grano de boro.

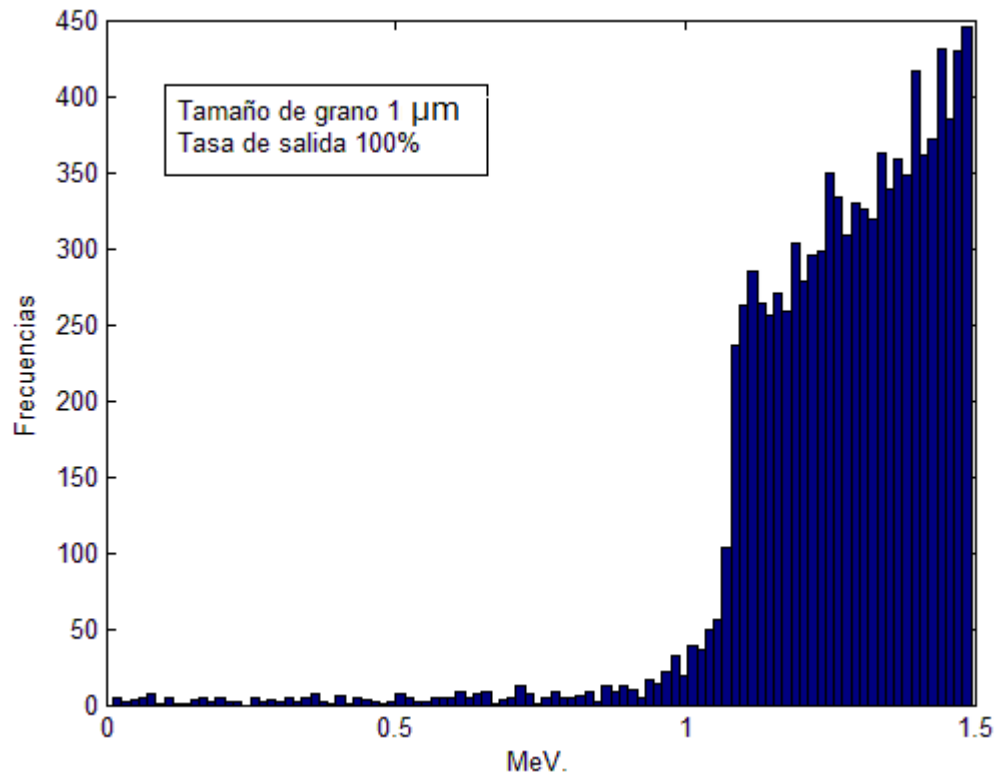


Figura 3.2.8. Ídem figura anterior, pero con un tamaño de grano de 1 μm . Todas las partículas alfa producidas logran salir y dejar un pulso en el espectro siendo la forma del mismo más angosto y acumulado hacia el máximo de energía.

3.3 Apantallamiento con cadmio al detector

Con la información recolectada de las mediciones y estudios realizados, se decidió reducir el tamaño de grano mediante un mortero de ágata utilizado en ensayos químicos (figura 3.3.1.). El motivo de buscar la reducción del tamaño de grano era obtener un aumento significativo de las cuentas asociadas al canal que correspondía a 1.47 MeV. Como se comentó anteriormente, el boro metálico es una sustancia de una dureza relevante, lo que dificultó el uso del mortero. Se logró reducir el tamaño de grano, pero no en forma uniforme.



Figura 3.3.1. Mortero de ágata utilizado en la molienda del boro metálico. (L.M.R).
Ocurre que la dureza del boro metálico es alrededor de 9 en la escala de Mohs. Esto dificultó la molienda del mismo en el mortero de ágata de dureza menor, (D=6 a 7).



La figura 3.3.2 muestra el resultado de haber realizado la molienda de los granos de boro metálico. Puede apreciarse que se produjo una reducción en parte de los mismos, aunque no se logró una reducción uniforme, obteniéndose una distribución de tamaños de grano desde 6 micrones hasta por lo menos 130 μm .

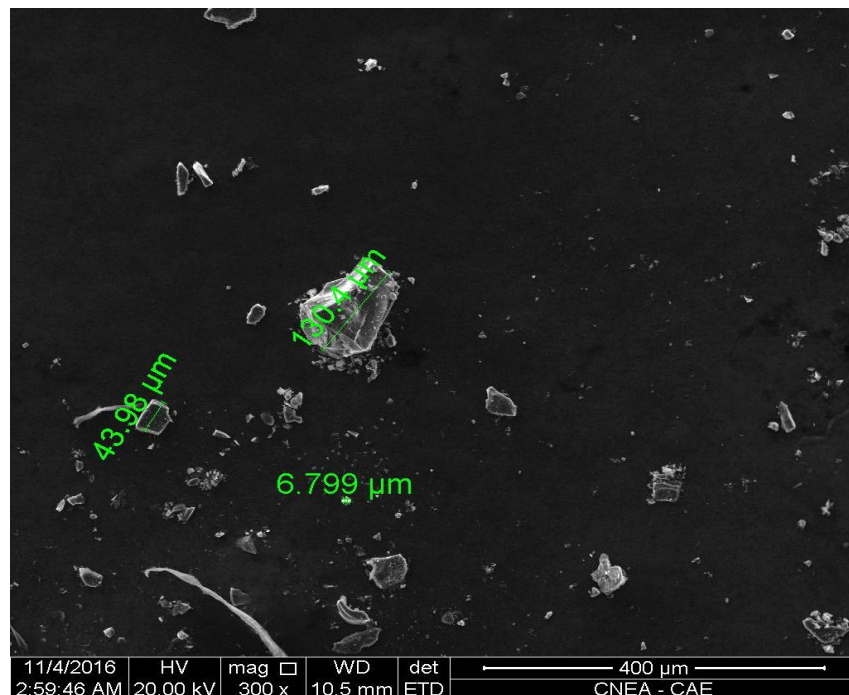


Figura 3.3.2. Reducción del tamaño de grano mediante mortero, aunque de manera no uniforme. (LMFAE).

Se recuerda que la partícula alfa proveniente de la interacción del ^{10}B con el neutrón térmico de 1.47 MeV, tiene un rango aproximado de unos 3.5 μm en el material, entonces un resultado óptimo de la molienda sería obtener un tamaño de grano inferior al rango. Lamentablemente, por lo inhomogéneo de la molienda, no se logró un pico alfa bien definido, como se verá más adelante en la figura 3.3.6.

Paralelamente, otra conclusión obtenida de mediciones anteriores (apartado anterior, figura 3.2.6) fue la observación de que se requería establecer un método para determinar de forma más precisa el fondo que poseía nuestra medición. Se desconocía en detalle la interacción de los neutrones térmicos, epitérmicos y rápidos con el cuerpo del detector y con posibles impurezas que pudiera tener el aluminio que forma parte del mismo.

Según se muestra en la figura 3.2.6, (apartado anterior) se recuerda que para estimar el fondo de medición se había intentado una estimación numérica mediante el ajuste de una función. Pero esto resultaba insuficiente para su construcción, porque solo consideraba la parte inicial del espectro, para luego extrapolarla para todo el resto del mismo, hacia mayores energías.



Para encontrar una solución a este inconveniente y obtener un fondo resultado de una medición (o sea experimental), surgió la idea de rodear al detector con una lámina de cadmio y tomar esa configuración para la medición del fondo. Aquí se estaría utilizando el hecho de que el cadmio tiene una alta sección eficaz de captura de neutrones térmicos y baja para neutrones no térmicos, lo que impediría el paso de los primeros hacia el detector. Solo aquellos neutrones no térmicos podrían llegar a contribuir a la señal, siendo el testigo de este apantallamiento el pico del protón de 0.58 MeV, que se produce por la captura por el ^{14}N . O sea, si el apantallamiento está bien realizado, no se debería ver el pico de protones de 0.58 MeV.

El procedimiento de medición completo consistiría en realizar dos mediciones: la primera con el detector con la muestra de boro en su interior y todo el conjunto dentro de la configuración moderadora y la fuente de neutrones y la segunda medición considerada *medición de fondo*, realizada en similares condiciones, pero rodeando el detector con una lámina de cadmio, como se comentó anteriormente.

El espectro de interés será la diferencia de ambos espectros obtenidos, ver figura 3.3.3.



Las adquisiciones fueron realizadas una a continuación de la otra, sin modificar la posición del detector ni la configuración electrónica. Luego la sustracción de los espectros se realizó en forma directa, ya que ningún parámetro de la configuración electrónica fue modificado.

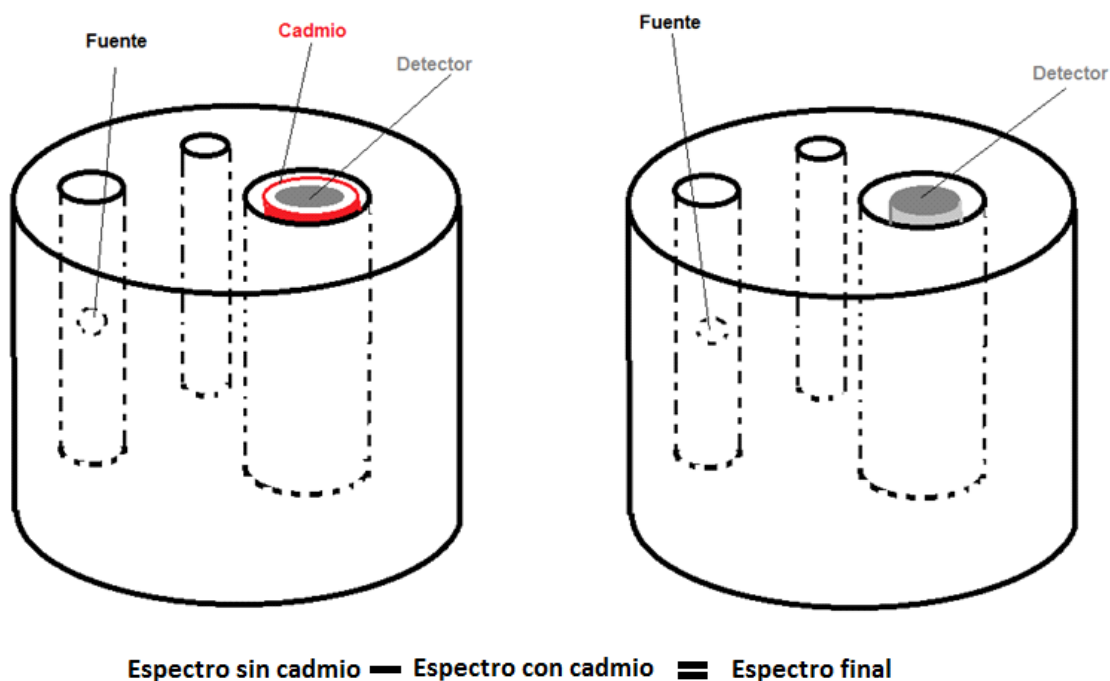


Figura 3.3.3. Esquema del sistema moderador el cual incluye el apantallamiento con cadmio, lado izquierdo.

La figura 3.3.4 muestra el espectro adquirido con el detector sin el blindaje de cadmio. Allí puede verse el pico producido por los protones del ^{14}N (el más relevante), junto a los pulsos producidos por las partículas alfa y ^7Li , los cuales no dejan un pico bien definido por cuestiones comentadas anteriormente (auto-absorción de la muestra).

El espectro de la figura 3.3.5 es obtenido con el detector blindado por el cadmio. En el mismo puede verse la ausencia del pico de protones y de los pulsos producidos por las partículas alfa y ^7Li . De esta forma, cualquier contribución que pueda ser parte de este espectro forma parte del fondo de medición, que no es de interés.

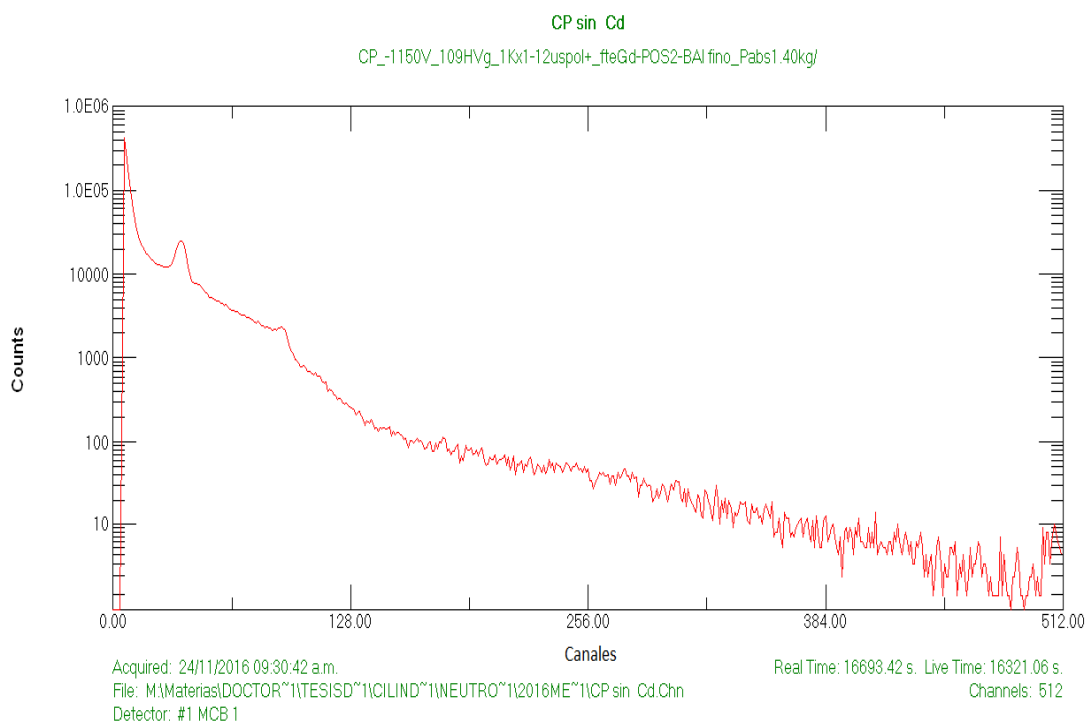


Figura 3.3.4. Espectro obtenido con el detector sin blindaje de Cd.

Realizando la resta de los dos espectros anteriores obtenemos el espectro diferencia mostrado en la figura 3.3.6, donde se puede apreciar un importante pico proveniente de la interacción del nitrógeno con los neutrones térmicos, más el aporte de las partículas alfa y ^7Li . Como fue comentado anteriormente, el resultado de la molienda no resultó como se esperaba, por lo cual se observa el espectro continuo y después un leve pico asociado a las partículas alfa.

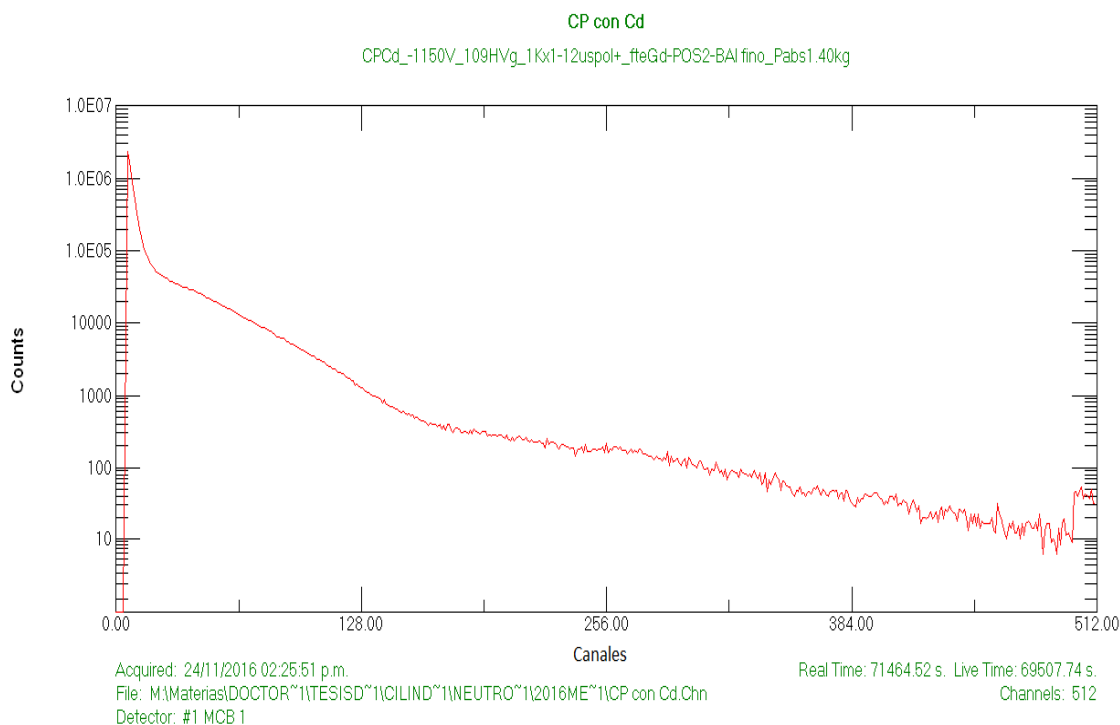


Figura 3.3.5. Espectro obtenido con el detector blindado con cadmio.



En base a estas experiencias preliminares surgieron varias cuestiones acerca de qué procedimiento podría establecerse para mejorar nuestro sistema de medición, en función de los requerimientos que podrían surgir en el caso de introducir muestras de tejido biológico.

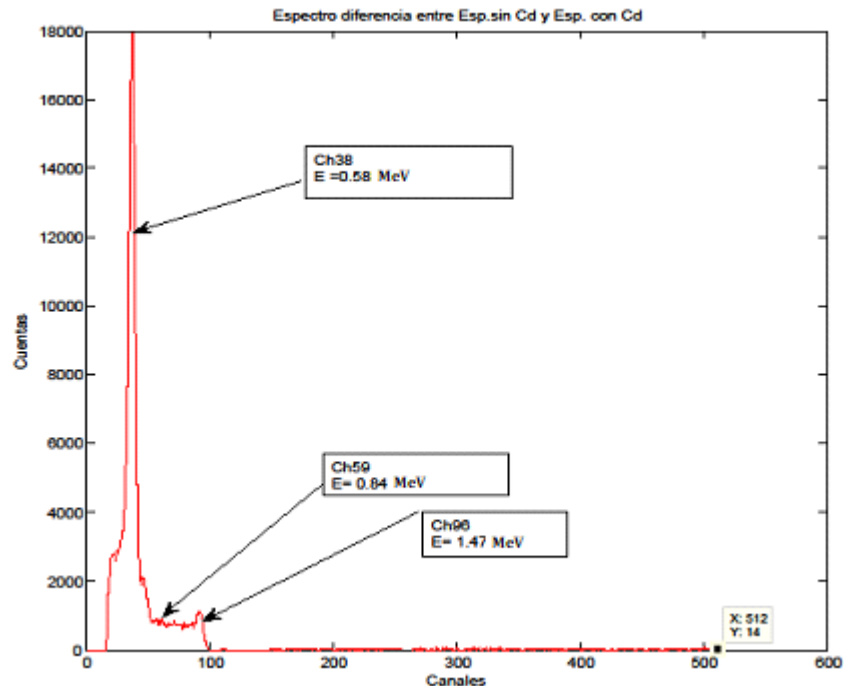


Figura 3.3.6. Espectro diferencia (detector sin apantallar-detector apantallado con Cd). En el eje horizontal se muestran canales, las energías que se indican son las inferidas luego de un análisis similar al realizado en la figura 3.2.6, del apartado anterior.



El procedimiento llevado a cabo para realizar las mediciones comentadas conlleva una serie de pasos que son los siguientes:

- Al sistema se le introduce la muestra incógnita en su interior y se hace vacío, se debe retirar el aire del mismo porque el oxígeno perjudica la multiplicación, como se comentó en capítulos anteriores.
- Se llena con una mezcla de gases a una determinada presión. Luego, se ubica el detector en determinada posición dentro de la configuración moderadora. A esto le sigue conectar el detector a la cadena espectroscópica, reproduciéndose la configuración electrónica considerada óptima. Finalmente se coloca la fuente de Am-Be en la configuración de trabajo.
- Además, se debe realizar otra medición equivalente con el detector blindado con cadmio.
- Luego de esto, idéntico procedimiento habría que realizar para la muestra patrón, para después comparar resultados.

Las mediciones siempre han resultado muy prolongadas, de uno a dos días de medición continua para obtener un espectro, ya que el conteo es bajo.

Es importante destacar que este método posee varias etapas las cuales deberían ser reproducibles tanto para la muestra como para el patrón, para que luego puedan ser comparables. Recordando que nuestro



interés es poder determinar concentraciones de ^{10}B en partes por millón en muestras de material biológico.

Por todo lo comentado anteriormente, se pensó en fabricar un nuevo detector, el cual pueda realizar dos mediciones simultáneas: por un lado, la muestra referencia y por el otro la muestra incógnita, ambas muestras dentro del detector y sometidas a la misma presión, con la misma mezcla de gases. Esta situación debería proporcionarnos un control mayor sobre el procedimiento de medición. Por ejemplo, los flujos promedio de neutrones térmicos recibidos tanto por la muestra como por el patrón serían comparables.

La configuración electrónica se replicaría en ambas mediciones (o sea se requerirían dos líneas de espectrometría si se quisiese trabajar en simultáneo). La forma de cuantificar sería mediante muestra incógnita comparada con un patrón, o sea, constituiría un método secundario.

Con estas consideraciones y la experiencia acumulada por las tareas desarrolladas anteriormente, se avanzó en el diseño del nuevo detector.

Citas en este capítulo; Ref. [3]. [13]. [14]. [15]. [16]. [17]. [18]. [19].

Capítulo 4

4.1 Diseño y fabricación del contador proporcional doble - consideraciones teóricas y simulación

Entre las principales consideraciones en el diseño y posterior fabricación del detector, se estableció la premisa de realizarlo con las facilidades que podrían proporcionar los laboratorios y talleres de CNEA. Por tal motivo, se realizó un relevamiento y consulta de los talleres y personal disponible que pudieran estar interesados (además de contar con el tiempo para la tarea) en el proyecto de fabricación. Cabe destacar que se requería de personal especializado en manejo de maquinaria de taller, torno, limadora, sierra eléctrica, etc.

Detalles de la fabricación figuran en el Apéndice F. Por tal motivo aquí solo se comentará que los laboratorios involucrados fueron el LMR-CAE, L.I.D-CAE. Luego se trabajó en los talleres de IDB-CAE y Taller de PPFAE.

Como se comentó en el capítulo 2, la simetría cilíndrica facilitará algunas predicciones sobre el funcionamiento del contador gaseoso. Por tal motivo, para el diseño y posterior construcción, se buscó mantener dicha geometría para el nuevo detector. También se continuó con el concepto de que la muestra se aloje en el interior del detector, como fue comentado anteriormente, dado que es importante contar con todos los eventos que sean posibles de detectar y la situación más favorable es que estos ocurran directamente en el interior del detector.

Al igual que en la etapa anterior, se comenzó con algunas simulaciones con el Software SRIM (Ref. [2]), para determinar el rango de las partículas alfa y litio, desplazándose en el P10 a diferentes presiones, con el objetivo de lograr que la mayor cantidad de partículas dejen su energía disponible en el gas, sin colisionar en las paredes del detector con la consiguiente pérdida de energía. La simulación contribuye a determinar si el diámetro del cátodo es adecuado para dicho objetivo siempre considerando las demás variables del problema como la presión, el radio del ánodo y la tensión suministrada.

Recordar la figura:

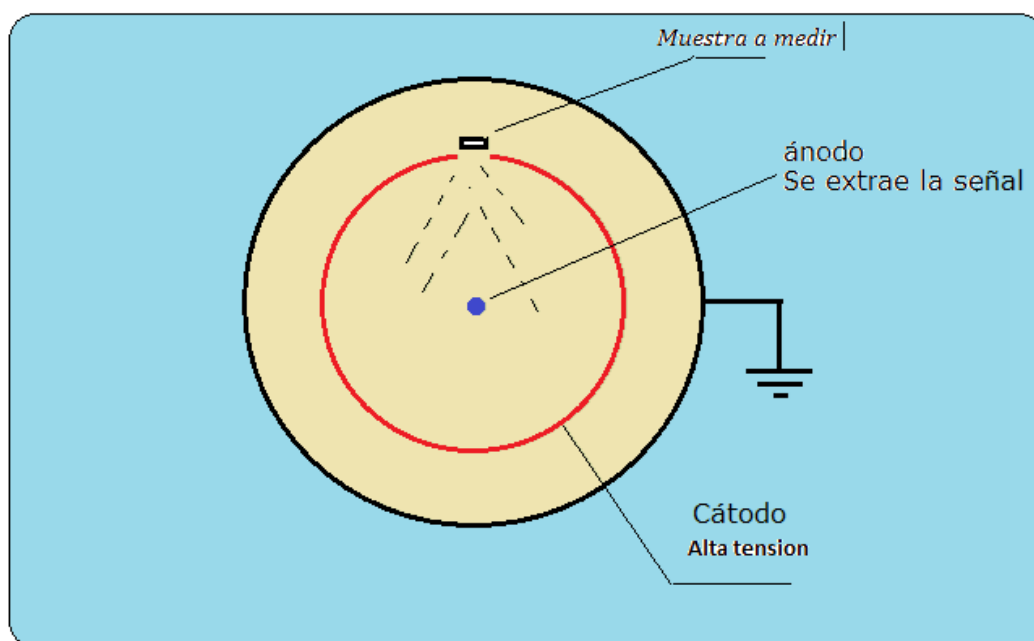


Figura 4.1.1 Corte lateral, detector cilíndrico.



Dado que la partícula alfa puede entregar 1.47 MeV, (93.7 % de las veces) entonces, en el gas P10 a una atmósfera de presión, puede desplazarse una distancia inferior a 1 cm. Ver figura 4.1.2.

Idéntico procedimiento puede realizarse con el átomo de ^7Li y el protón de 0.58 MeV, siendo los rangos de 5 mm y 12 mm, respectivamente.

Se optó por simular una presión de P10 de 1 atmósfera (absoluta), pensando que el detector se llenaría a esa presión ya que esto implica requerir menor tensión, pudiendo trabajar en zona de contador proporciona reduciendo el riesgo de descargas in el interior del mismo.

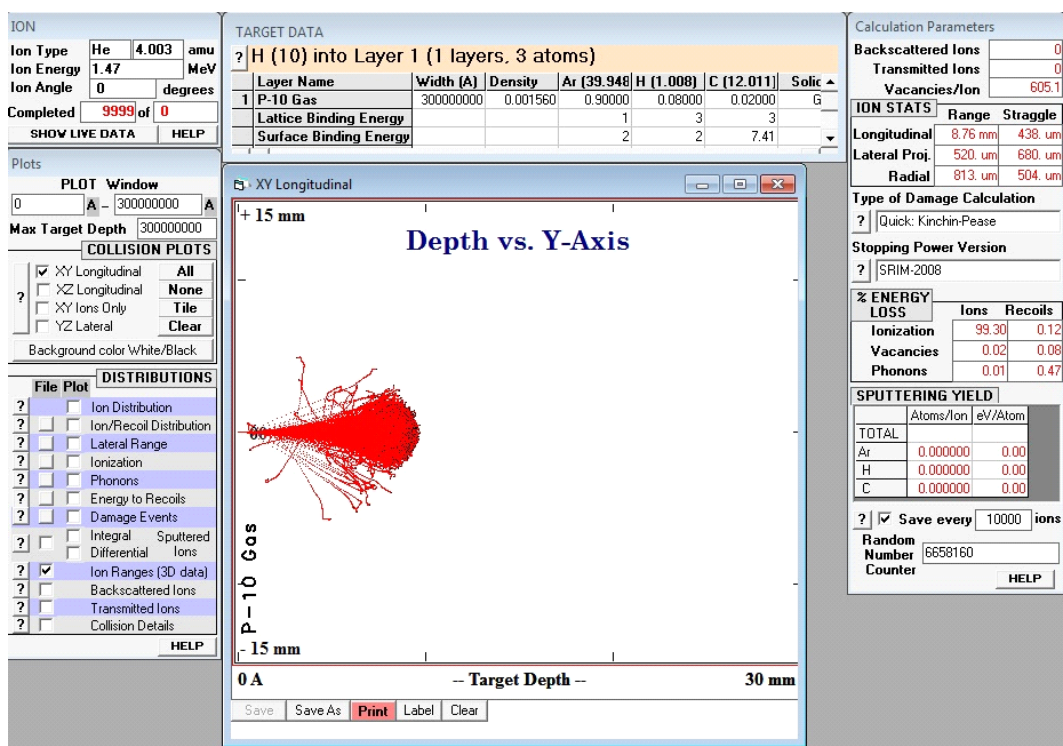


Figura 4.1.2. Simulación del rango de la partícula alfa de 1.47 MeV, en el gas P10. Código SRIM, Ref. [2].



De la ecuación deducida de la aproximación de cilindro infinito (Capítulo 2),

$$\Delta V = \left(K r_1 \ln \frac{r_2}{r_1} \right) P \quad \text{Ec. 2.2.2.}$$

Tenemos una relación que involucra el diámetro del cátodo r_2 , el diámetro del alambre interno r_1 (ánodo), la presión de trabajo y la tensión. La tensión indica que, a partir de dicho valor con los demás valores fijados, comienza la región de trabajo donde se produce la multiplicación de carga. El valor de K se extrae de la Tabla 2.1.b.1, para el gas P10. Ver figura 4.1.3.

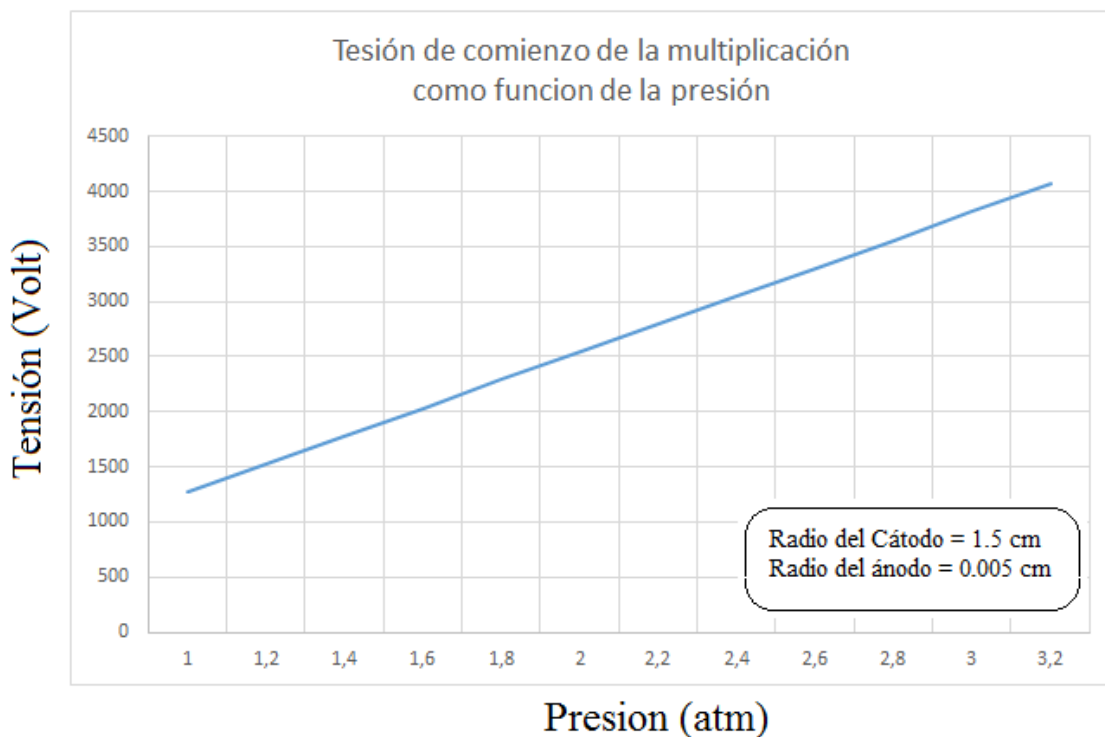


Figura 4.1.3. Tensión de inicio para el proceso de multiplicación, como función de la presión.



Como indican las curvas del gráfico anterior, mientras menor diámetro tenga el ánodo, menor tensión es requerida para comenzar la multiplicación. Pero en la práctica, resultó complicado soldar alambres de diámetros inferiores a 50 μm . Por lo tanto, 100 μm fue el diámetro del ánodo elegido.

Para el caso en el cual el cilindro cátodo mantenga una longitud varias veces superior (en nuestro caso, factor 10 aproximadamente) respecto de su diámetro y estando la muestra de interés en la parte central del detector, respecto de la variable longitudinal, puede considerarse que el campo es aproximadamente uniforme axialmente en la zona central. Recordar que los productos de la reacción no se desplazan más de 12mm. Con estas consideraciones, se asume satisfactoria la aproximación de cilindro infinito para aplicar en la práctica la ecuación 2.2.2.

4.2 Consideraciones constructivas - pruebas mecánicas

En este apartado se realizará un resumen de algunos aspectos constructivos relevantes. Mayores detalles pueden encontrarse en el apéndice F. Al igual que el primer detector con el que comenzamos a trabajar, éste se encuentra formado por un cilindro con tapas en sus extremos, lo que hace de cámara de presión (ver figura 4.2.1). Una de las tapas posee dos entradas tipo BNC para conectar cables de señal,





una entrada de alta tensión y la llave de paso de gas. Esta tapa es la que se extrae cada vez que hay que cambiar alguna muestra. La otra tapa es fija y no posee conexiones. El cierre es hermético y se produce mediante anillo de goma (o-ring) para impedir pérdidas de presión y también incluye sujeción mecánica mediante tornillos.

En el interior de este cilindro se encuentra un sistema de doble cátodo (cilindros idénticos) que poseen un ánodo independiente cada uno. La muestra y el patrón se coloca en la zona central del mismo, una en cada cátodo. El detector está construido con sistema de guarda. Como se comentó en el capítulo 3, se trata de una característica de diseño que impide que puedan introducirse corrientes de fuga a la señal de medición (ver Knoll- Ref. Cap. 5 y 6).

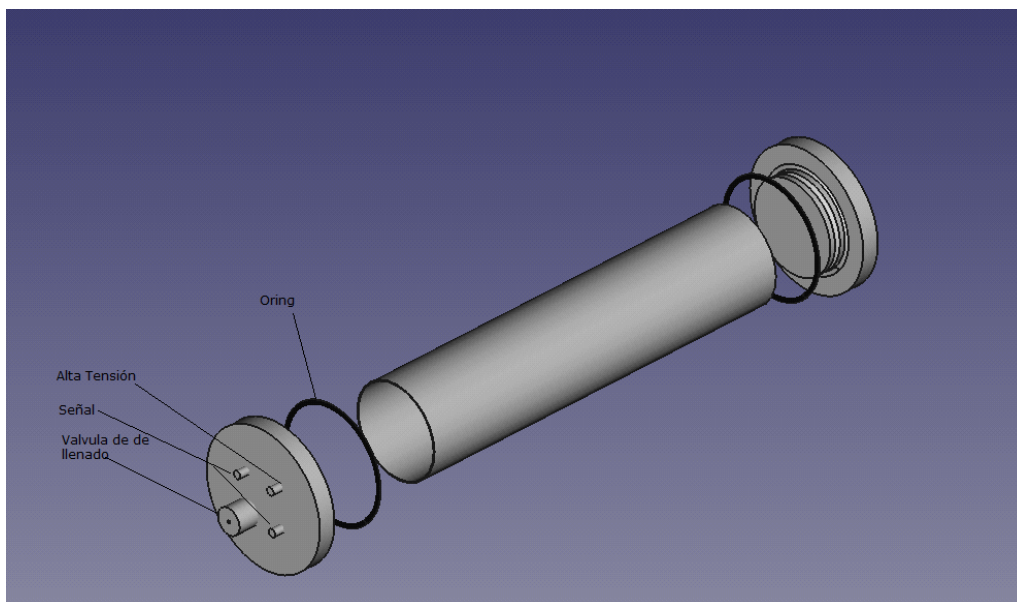


Figura 4.2.1. Diseño del cuerpo externo del detector.

La conexión de alta tensión se realiza directamente al detector, sin pasar por el preamplificador. El cátodo se conecta a tensión negativa, estando el ánodo sin tensión. Ver figura 4.2.2.

Con el detector ya fabricado, comenzaron las pruebas y puesta a punto del mismo. Las mismas consistieron inicialmente en pruebas de estanqueidad. Se llenó el detector con helio a determinada presión y luego con un equipo detector (disponible en el laboratorio L.I.D) se observó si existían pérdidas. Luego de estas pruebas con helio, se realizó un control más prolongado en el tiempo que consistía en llenar con gas P10 el detector a 2 atmósferas y registrando con un manómetro conectado al mismo se controlaba si había descenso de presión con el paso del tiempo (dos días, aproximadamente). Ver Apéndice F.

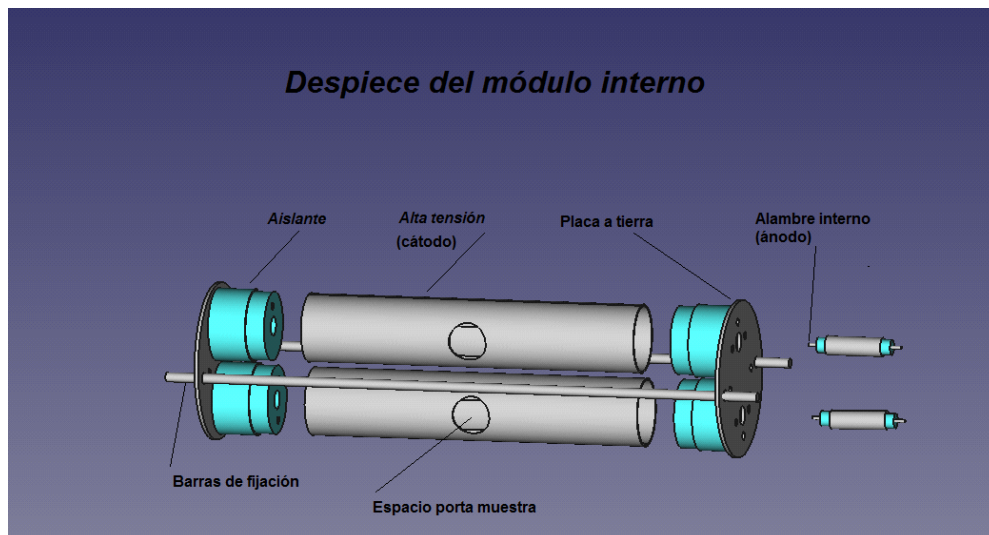


Figura 4.2.2. Diseño del sistema de doble cátodo.
Observar que la muestra se ubica en el centro del cátodo (espacio porta muestra).



La figura 4.2.3 muestra el sistema de cátodos construido en base al diseño de la figura 4.2.2. Cada cátodo está sostenido por dos cilindros de nylon (material aislante) que separan el conductor con alta tensión respecto del conductor conectado a tierra.

Para tener algunos valores de referencia de resistividad eléctrica podemos comentar que el aire seco tiene una resistencia del orden de $3 \times 10^6 \text{ V.m}^{-1}$, el vidrio de $8 \cdot 10^6 \text{ V.m}^{-1}$ y el nylon de $14 \cdot 10^6 \text{ V.m}^{-1}$.

La tensión del equipo rondará los 2000 V, por lo tanto, se considera adecuado el nylon como aislante en nuestro caso.



Figura 4.2.3. Sistema doble cátodo al final de su construcción.



Figura 4.2.4. Cuerpo externo del detector, modelo final.
Con este equipo se realizaron las mediciones finales de este trabajo
y se sacaron conclusiones útiles para posibles mejoras en el futuro.

4.3 Pruebas eléctricas y de adquisición de datos con fuentes de ^{241}Am .

En lo siguiente se hará referencia al cátodo N o cátodo V (el nombre con el que se identificaron los cátodos), como una manera de abreviar cuando se habla de los espectros adquiridos por cada cátodo. Las muestras son fijadas sobre los porta-muestras, para luego ser ubicadas en las ventanas de los cátodos. Luego este conjunto de doble cátodo es introducido en la cámara del detector para llenarlo de gas, ver figura 4.3.1. El sistema de medición adquiere un espectro por cada cátodo (los cuales trabajan independientemente), que luego serán comparados como se verá más adelante.

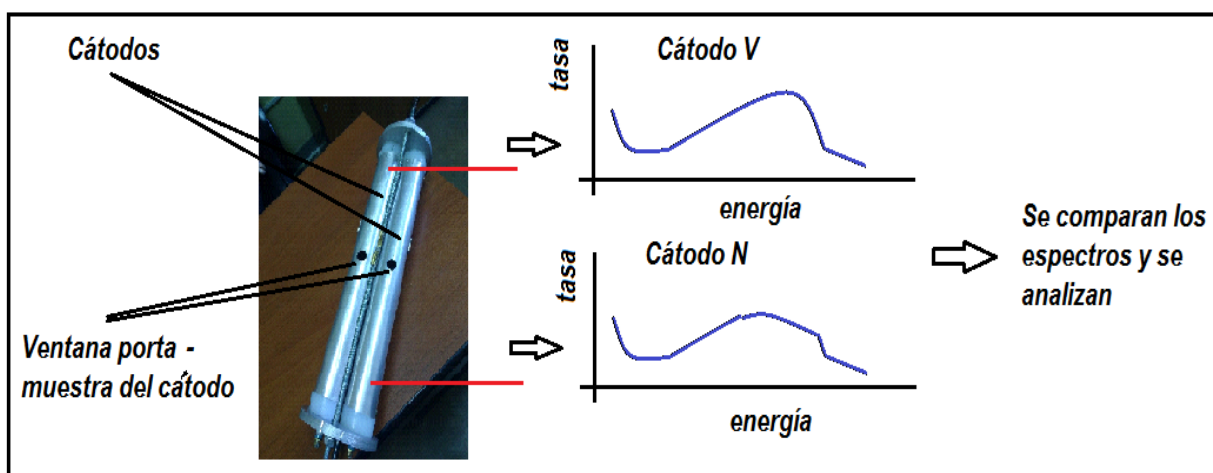


Figura 4.3.1. Esquema de la adquisición de los espectros por cada cátodo. La identificación de los cátodos con las letras N o V surge porque la conexión de señal de uno de ellos estaba más próxima a la válvula de carga de gas del detector, el otro estaba más lejano (no válvula).

Habiendo realizado las pruebas mecánicas, se conectó el detector a una cadena espectroscópica y se trabajó en la adquisición de espectros, que en un principio, eran producidos por una fuente alfa de ^{241}Am (la emisión de esta fuente en 2π es de 2400 (3%) alfas por segundo). Entre las pruebas realizadas en esta etapa, se estudiaron los niveles de ruido electrónico como función de la tensión de trabajo, se estudió la simetría de adquisición entre ambas cátodos (es decir, se intercambiaba la fuente de un cátodo al otro y se revisaba el conteo registrado en cada caso). Luego se trabajó con una fuente triple alfa (ver tabla 4.3.1) para comprobar si resolvía apropiadamente, en energía, las tres emisiones de la fuente. El espectro puede verse en figura 4.3.2., donde el detector resuelve en esta experiencia los picos de ^{241}Am y de ^{239}Pu con una diferencia entre ellos de 0.321 MeV. El resultado es importante porque en las pruebas próximas, con neutrones térmicos y ^{10}B , debería ser posible distinguir entre partículas según sus energías.

Aquí se recuerda que estamos interesados en ver diferentes partículas, como las alfa de 1.47 MeV, y el ^7Li de 0.84 MeV y además el protón de 0.58 MeV.

Fuente alfa	MeV	ΔE MeV
^{239}Pu	5.159	0.321
^{241}Am	5.48	0.320
^{244}Cm	5.80	

Tabla 4.3.1. Energía de los radioisótopos de la fuente triple alfa.
 ΔE es la diferencia entre las energías de emisión indicadas.



A modo de comparación, se muestra el espectro de la misma fuente triple alfa, obtenido con el detector de silicio de 100 mm (diámetro) perteneciente al laboratorio (LMR), ver figura 4.3.3.

Observar el bajo nivel de ruido del detector de Silicio respecto del contador proporcional, el detector de silicio (100 mm de diámetro) se conecta a una tensión 70 V, mientras que el contador proporcional se encuentra 1600 V. Puede observarse que los picos de la fuente triple alfa son bien resueltos por el contador, al igual con que el detector de silicio.

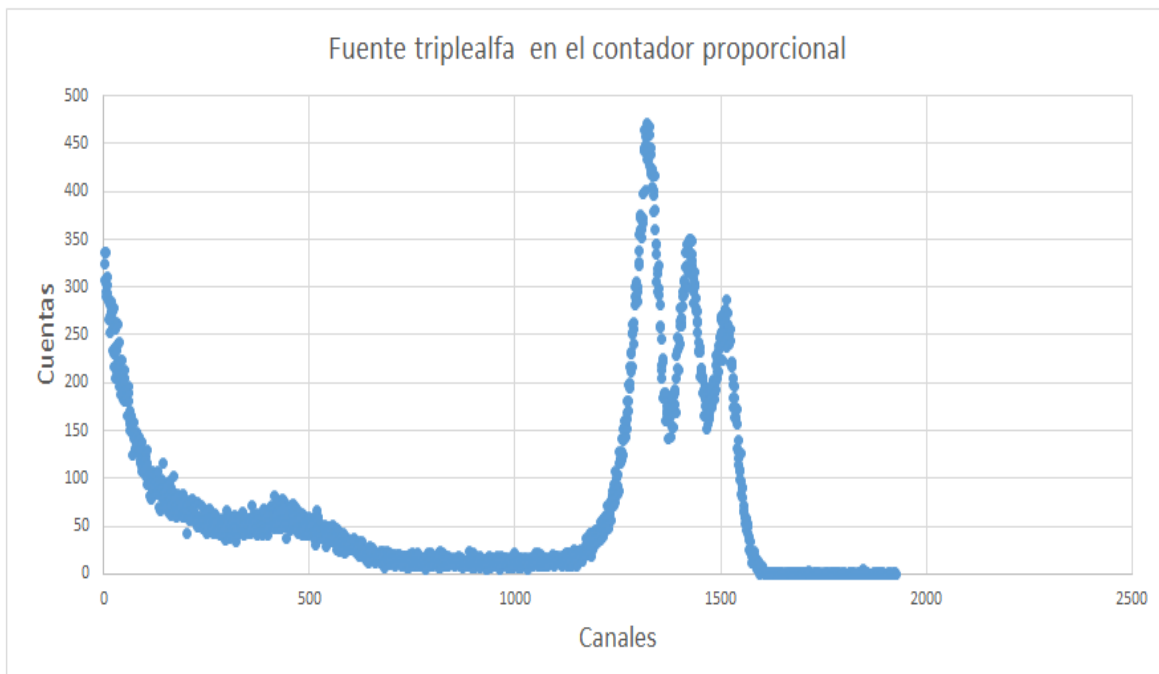


Figura 4.3.2. Espectro de fuente triple obtenido con el contador proporcional.



Aquí se trae a consideración que el diseño y la fabricación de un contador proporcional es un problema técnico que se puede resolver con el equipamiento con el que se cuenta en los laboratorios del CAE, permitiendo la posibilidad de mejorar los diseños.

La discrepancia es de 1.28%. Algunas otras experiencias realizadas pueden ser vistas en el apéndice B.

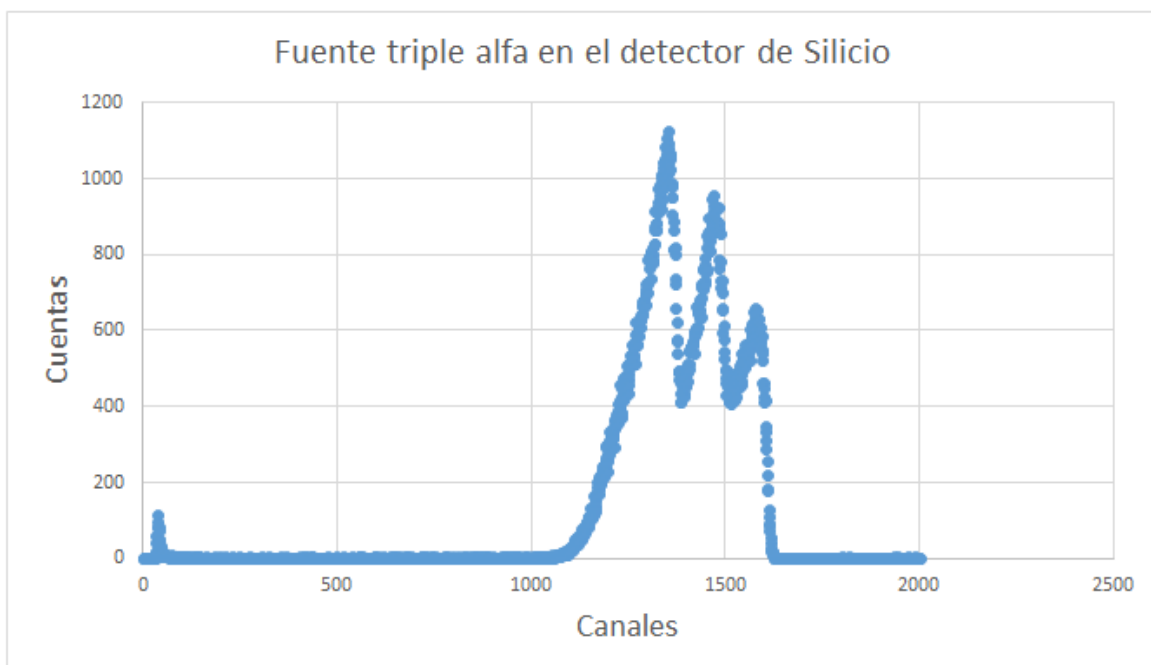


Figura 4.3.3. Espectro de fuente triple obtenido con el detector de Silicio.



Por último, en este apartado, se describe la prueba en la cual se intenta determinar la energía de una fuente alfa (^{241}Am) colocada en un cátodo (cátodo N), usando como referencia la fuente triple alfa ubicada en el otro cátodo (cátodo V), realizando una recta de calibración con la misma, usando sus tres picos.

La figura 4.3.4 muestra los espectros superpuestos, obtenidos por cada cátodo. Obteniendo una recta de calibración con los tres picos de la fuente triple, se logró predecir una energía de 5.5 MeV (2%) recordando que para el ^{241}Am es de 5.48 MeV, ver tabla 4.3.2

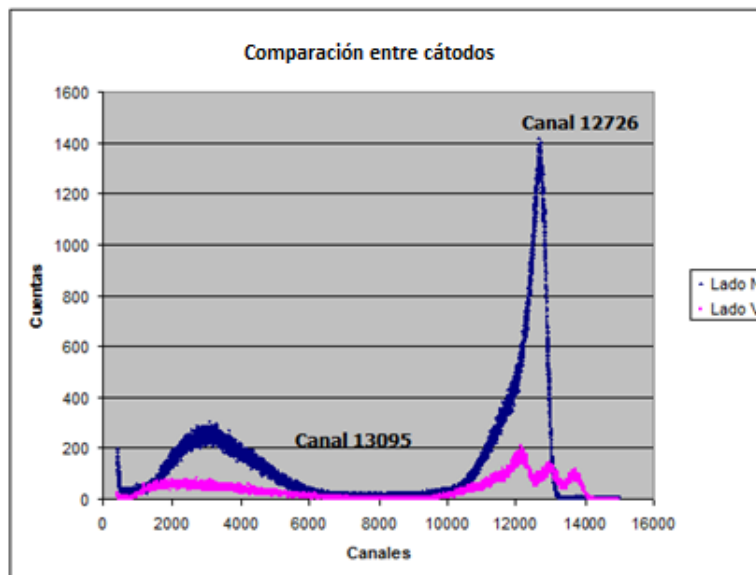


Gráfico 4.3.4. Superposición de espectros obtenidos con cada cátodo. Fuente triple alfa y fuente de ^{241}Am .

Como comentarios finales de este capítulo se menciona que lleva cierto tiempo encontrar la configuración electrónica óptima para lograr una definición correcta del espectro. Experiencias posteriores nos indicarían que esta configuración electrónica no sería la adecuada para próximas mediciones, donde cambian ciertas condiciones, como el tipo de muestra y las energías de las partículas involucradas y la mezcla de gas. Estas observaciones ya habían sido realizadas con el primer detector con el que se trabajó.

De todas formas, siempre resultó conveniente comenzar con las fuentes alfa de americio y la fuente triple alfa, las cuales son de baja auto-absorción (en nuestro caso), debido a que se sabe de antemano lo que se espera ver en el espectro, siendo importante en el proceso de caracterización del contador proporcional, ya que lo que nos puede dar detalles de su funcionamiento es, justamente, la fuente patrón utilizada.

Parametros de la recta:		Y = AX + B			
	Energia (MeV)	A	X	B	
Cátodo N	5.55	7.24E-04	12726	-3.658	
Cátodo V	5.48	Con este dato se calibra el espectro			
Discrepancia	1.28 %	Para Am241 en ambos cátodos			

Tabla 4.3.2. Recta de calibración realizada con la fuente triple.

Citas en este capítulo; Ref. [2]. [3]. [13]. [14]

Capítulo 5

5.1 Pruebas con ^{10}B en el contador doble

Lo primero que se comentará es que el detector doble, debido a las dimensiones que posee, no puede ser introducido en la configuración moderadora que veníamos utilizando (con el primer detector), la que proveía neutrones térmicos con flujos del orden de $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Esta configuración encontraba caracterizada por el laboratorio (L.I.C.) y por lo tanto se tenía una estimación de los neutrones térmicos que arribaban a la zona de irradiación, donde se ubica el detector, (como fue comentado en capítulos anteriores). Observar en la figura 5.1.1, el moderador rodea totalmente al detector, (configuración de la izquierda).

La nueva configuración de moderación se realizó con unas placas de parafina, por lo tanto, no envolvían al detector como la configuración anterior (ver configuración figura 5.1.1 lado derecho). Esto produciría menos neutrones térmicos durante las experiencias.

Por tal motivo, surgió la necesidad de realizar una caracterización para la nueva configuración que se iba a utilizar, o sea, conocer el flujo de neutrones térmicos que tendríamos disponible. Al mismo tiempo se necesitaba conocer si el flujo de neutrones térmicos que llega a cada cátodo era el mismo, además de conocer como es el perfil de flujo en función de la altura. Las experiencias mostraron que, con la nueva configuración, el flujo de neutrones térmicos se había reducido a un valor cercano a $7 \cdot 10^2 \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Las mediciones para conocer este flujo

se realizaron con una cámara de fisión. El procedimiento puede encontrarse en los apéndices C y E.

Ahora había que comprobar el comportamiento del detector en el campo de neutrones térmicos que disponíamos. Principalmente, evaluar el funcionamiento de un cátodo respecto del otro, en términos de conteo de partículas y determinar el fondo de radiación global. Para tal fin, se comenzó realizando pruebas con la mezcla de P10 más un 10% de ^{14}N , sin colocar boro en el interior, o sea para simplificar la observación.

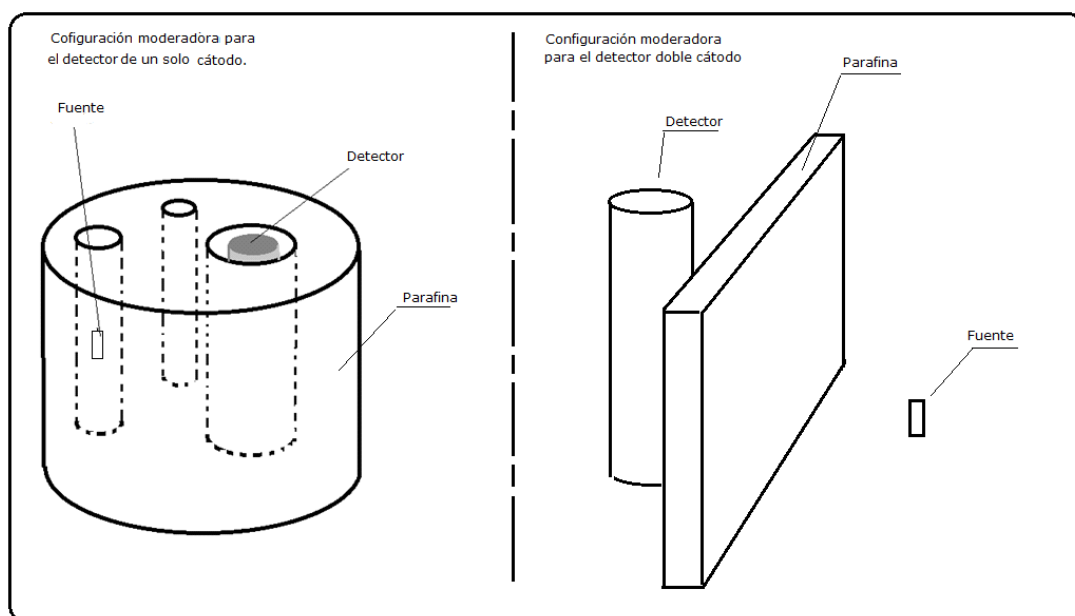


Figura 5.1.1. Antigua configuración, lado izquierdo y nueva configuración de moderación, lado derecho. Con la nueva configuración inevitablemente se redujo el flujo de neutrones térmicos de $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ a $7 \cdot 10^2 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Se eligió comenzar con una experiencia que se consideraba más simple de evaluar. Las figuras 5.1.2 y 5.1.3 muestran el detector en la configuración de moderación y una foto del osciloscopio donde se observa el pulso detectado, respectivamente.

El detector, por su diseño, permite realizar dos mediciones simultáneas (muestra y patrón) pero no se contaba con dos cadenas de espectrometría para este fin. Por lo tanto, cuando se trabajaba con muestras de ^{10}B en ambos cátodos, se realizaban mediciones con un cátodo y luego a continuación, se medía sobre el otro.

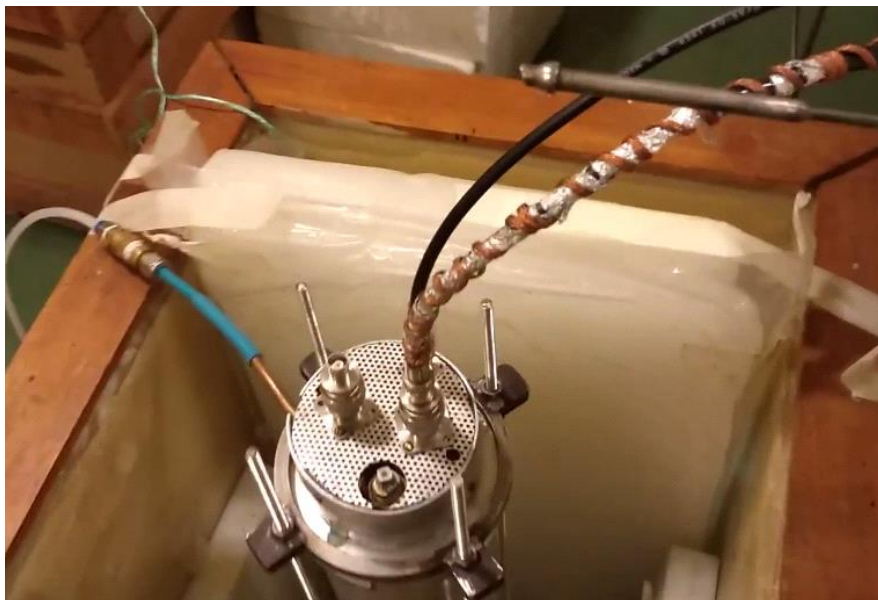


Figura 5.1.2. Detector conectado dentro de la configuración moderadora. Con esta configuración se obtenía un flujo de neutrones térmicos del orden de $7 \cdot 10^2 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. (L.I.D). Ver apéndice F.

La figura 5.1.4, muestra la superposición de los espectros obtenidos por ambos cátodos. En el espectro (al igual que se comentó en el capítulo 3) se observa el pico proveniente de la reacción del ^{14}N con los neutrones que logran ser termalizados por la configuración. Se debe recordar que el protón de 0.58 MeV se produce en el mismo gas, donde la energía liberada se emplea en ionización y por tal motivo no se observa el efecto de auto-absorción (espectro continuo), lo que permite tener un buen pico de referencia para la energía.

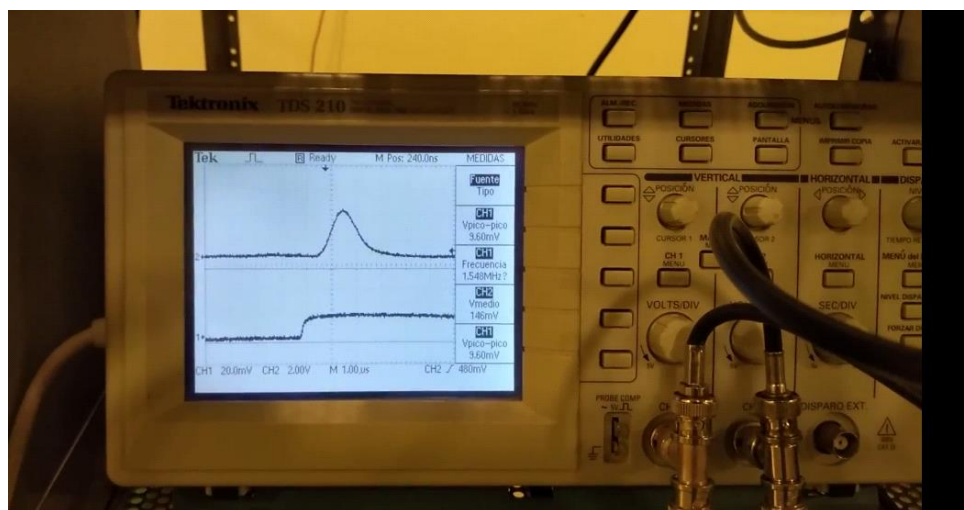
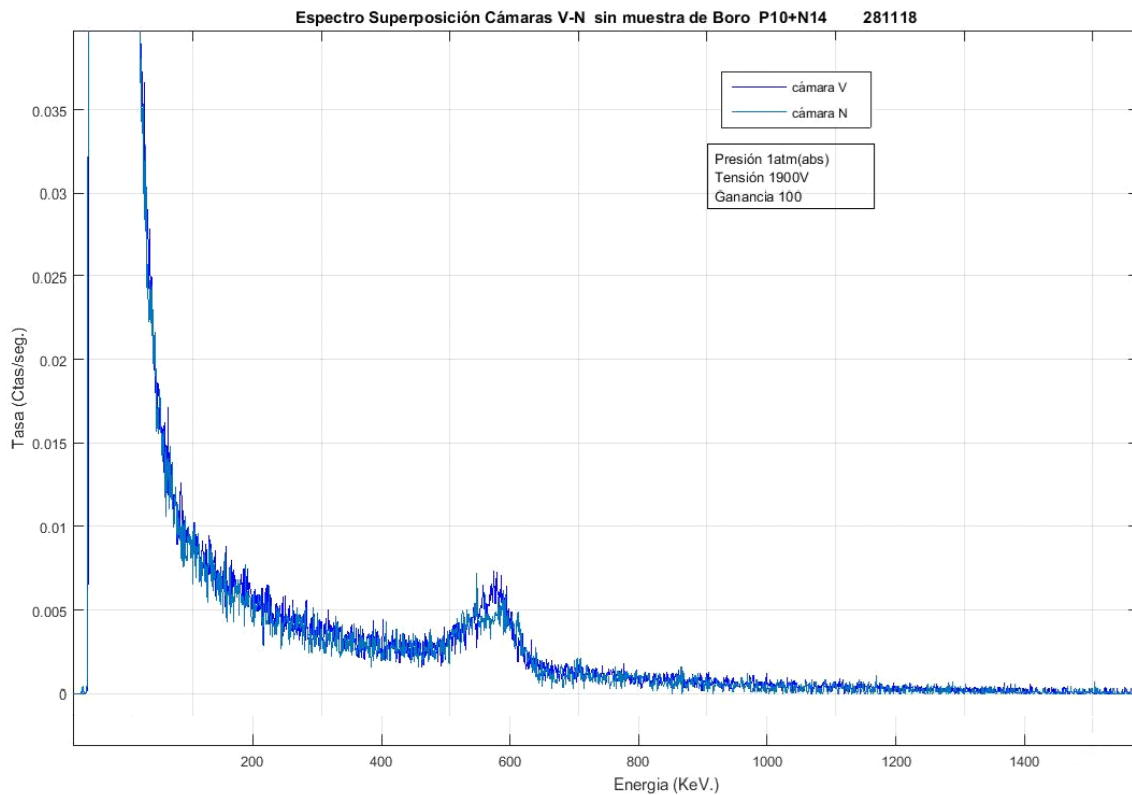


Figura 5.1.3. Foto del osciloscopio en el momento en que registra el pulso proveniente del detector. La curva superior muestra la salida del amplificador, la curva inferior muestra la salida del pre-amplificador (L.I.D).



En la figura 5.1.4 se puede ver la superposición de los espectros obtenidos con ambos cátodos. Pico de protones provenientes de la reacción del neutrón térmico con el ^{14}N .



5.1.b Cuantificación del área del espectro

En la bibliografía del tema es común referirse al área del espectro, expresada en *cuentas*. Si se desea realizar una comparación entre dos espectros adquiridos en diferentes momentos de un experimento, es común realizar la adquisición de los mismos, durante un intervalo de tiempo similar, de esta manera es posible independizarse del tiempo de medición y realizar la comparación deseada del área del espectro y expresarla en cuentas.

En las experiencias realizadas con la fuente de neutrones en este trabajo, diferentes experimentos de adquisición de espectros se realizaron en intervalos de tiempo no idénticos, esto debido a cuestiones experimentales y de logística, relacionadas al tiempo disponible de la configuración experimental para las prácticas.

Por este motivo, todas las comparaciones realizadas entre diferentes espectros, se expresan en tasa de conteo (cuentas/segundo) para cuantificar diferentes regiones de interés de los espectros y compararlos entre sí. Entonces si se necesita comparar dos espectros diferentes, se selecciona un rango de energías en el espectro (la región de interés) y se calcula la tasa en ese sector del espectro. Luego se comparan las tasas de conteo.

Con el criterio comentado, se estimó la tasa de conteo de cada pico para evaluar la discrepancia que se tiene entre el espectro obtenido entre un cátodo y otro ante la misma mezcla de gas. Se definió un área de



cálculo que contiene al pico de protones para cada caso. Se calibró en energía un espectro respecto del otro. Luego se determinó una manera de asignar una incerteza al área seleccionada de interés (no se detalla el método, pero sí se comenta que se basa en la observación visual del espectro y los rangos de energía que abarcan la zona de interés), la cual implicaba, como máximo, un 3% de error en el cálculo de dicha tasa de conteo, resultado que más adelante se repitió en posteriores ensayos con muestras diferentes.

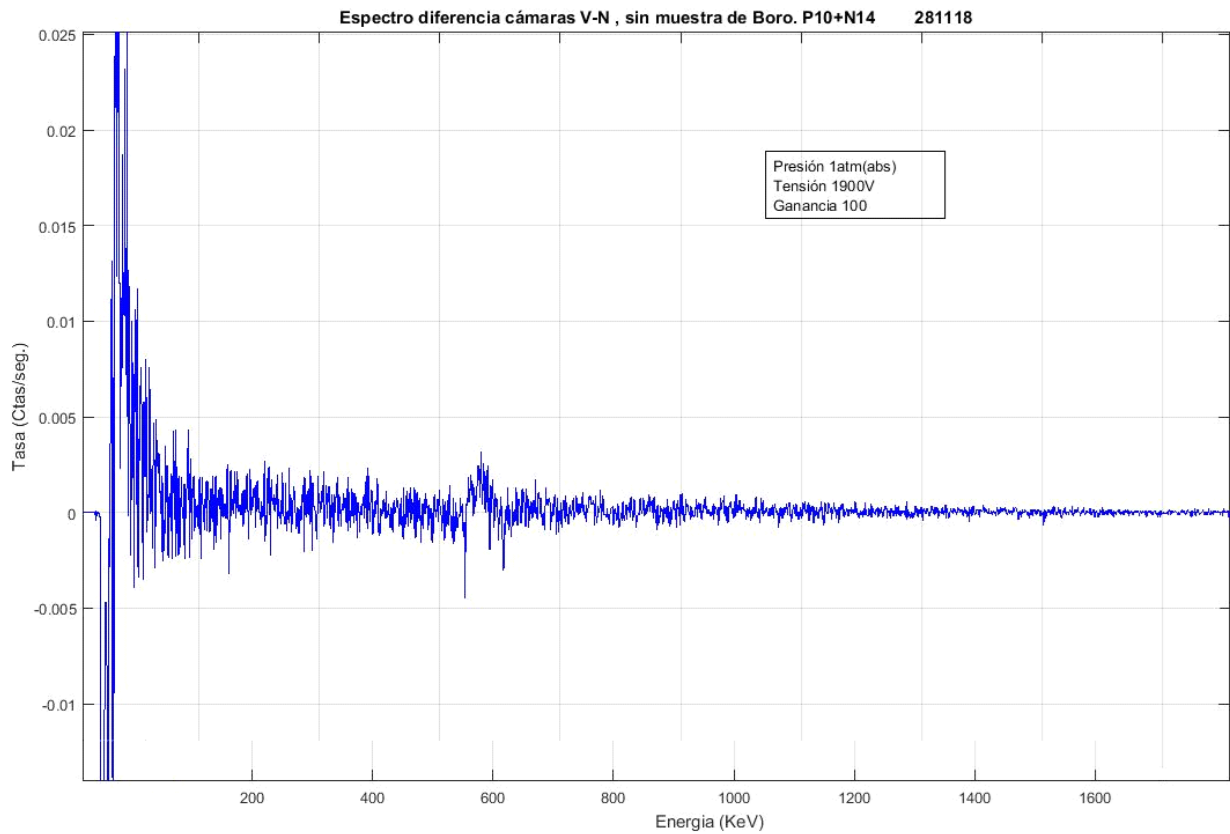
El valor de cada tasa de conteo fue:

Cátodo identificado como (V), tasa de conteo = 0,675(3%) cts/s.

Cátodo identificado como (N), tasa de conteo = 0,659(3%) cts/s.

La discrepancia entre las mismas fue del 2.5%. El espectro diferencia puede verse en la figura 5.1.b.1. En diferentes pruebas, siempre aparecieron discrepancias entre la tasa de conteo del pico de protones registrada por un cátodo y el otro, pero siempre se mantuvieron por debajo de la incerteza en la estimación de la tasa de conteo de cada pico del espectro (Apéndice D).





La figura 5.1.b.1 muestra el espectro diferencia entre ambos cátodos V y N. En este caso, podría deberse a una pequeña diferencia en el proceso de generación de la multiplicación de carga.





5.2 Espectros obtenidos con muestra de ^{10}B enriquecido en uno de los cátodos.

Una vez finalizada las pruebas con gas P_{10} y ^{14}N (sin boro en el detector) se comienza a realizar las pruebas con ^{10}B (ver figura 5.2.1) en uno de los cátodos dejando el otro libre de muestra de ^{10}B . Se adquieren espectros de ambos cátodos (no en simultáneo, por los motivos explicados anteriormente) para restar un espectro respecto del otro para eliminar el fondo. Es así que el espectro obtenido del lado que no tiene ^{10}B , hace a la vez de fondo de medición, ya que las mediciones son hechas consecutivamente, una después de la otra, con la misma cadena espectroscópica y sin cambiar el gas ni la configuración electrónica de medición. Por cuestiones de fijación de la muestra, el ^{10}B es ubicado en soportes de papel, para luego ser ubicados dentro del detector.





En la figura 5.2.2 se muestran los espectros obtenidos por cada cátodo superpuesto en un mismo gráfico. Allí se observa como pico principal, el aporte del ^{14}N (pico ubicado a 0.58 MeV) el cual está presente en ambos espectros, pero el espectro perteneciente a la muestra que tiene ^{10}B , puede notarse que tiene más cuentas que el espectro sin muestra.

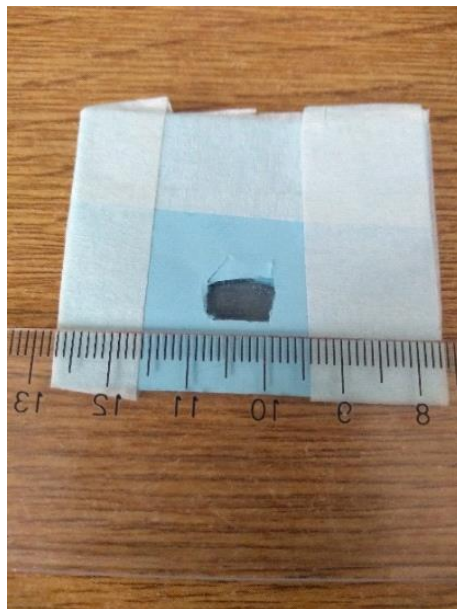


Figura 5.2.1 Muestra de ^{10}B enriquecido en porta-muestra de papel.



Aquí hay que recordar (capítulo 3) que estamos observando el aporte de la partícula alfa y del litio, pero estas mismas emergen de una matriz muy densa, (el ^{10}B), sufriendo el efecto de auto-absorción.

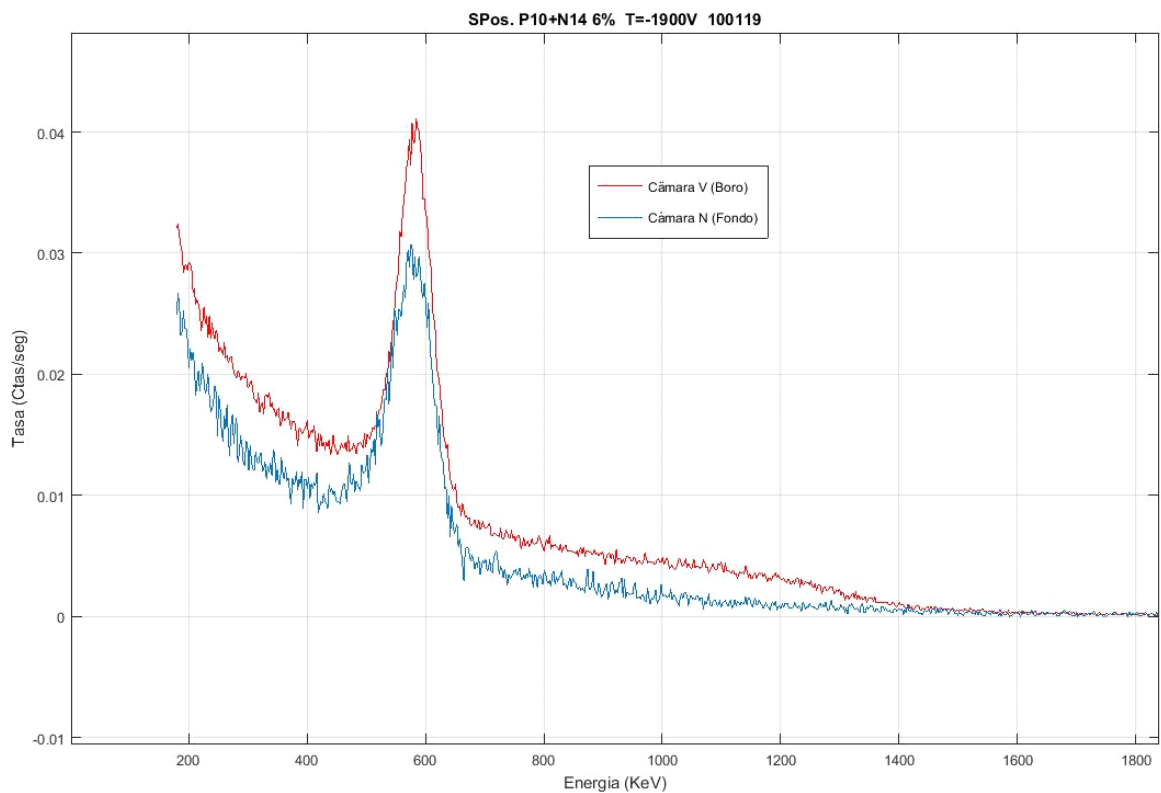


Figura 5.2.2. Espectro superposición, lado fondo- lado ^{10}B .



Haciendo la resta de ambos espectros de la figura 5.2.2, previa calibración en energía, se obtiene la figura 5.2.3. Se observa un pequeño aporte en la zona del pico proveniente del protón del ^{14}N , el que podría deberse a pequeñas diferencias asociadas a la multiplicación que se produce en cada cátodo, diferencias muy pequeñas en el flujo promedio de neutrones térmicos y/o un posible ineficiente contacto interno entre el ánodo y la salida al BNC.

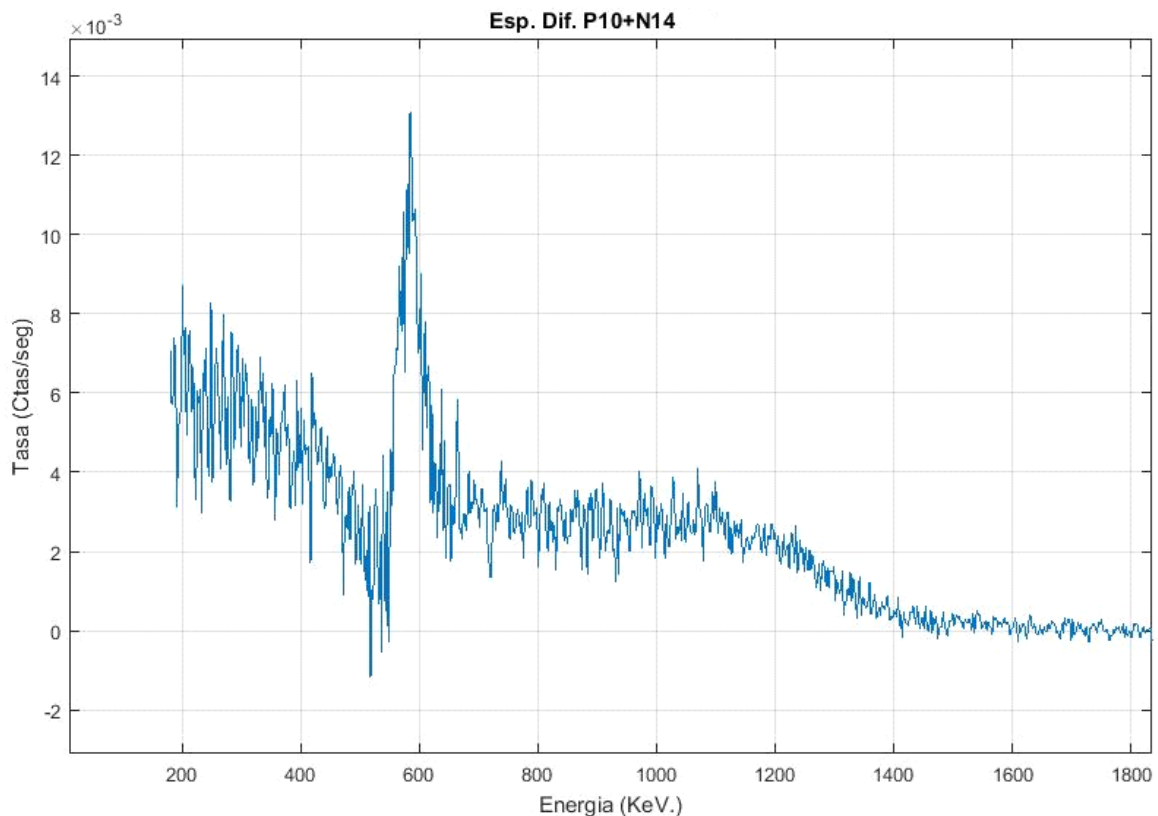


Figura 5.2.3. Espectro diferencia entre lado Boro –Lado fondo.

Para eliminar este conteo aportado por los protones de 0.58 MeV, se aplicó la técnica Monte Carlo mediante la cual se reemplaza esa porción del espectro por una curva que posee una dispersión similar a la que mantiene el espectro diferencia, de esta manera se puede eliminar dicho pico, completando el espectro diferencia y luego puede calcularse el área. Con este procedimiento (de restar los espectros), se tiene como objetivo restar efectos de fondo electrónico y además posibles efectos producidos por interacción de neutrones no termalizados que puedan generar algún conteo no deseado, el cual no provenga de la reacción de interés. Ver figura 5.2.4.

Posteriormente, se repite la experiencia anterior, utilizando la misma muestra de boro ubicada en el mismo cátodo, salvo que se cambia el gas de llenado y esta vez se usa la mezcla Ar+ ^{14}N 10 % a presión 1atm (absoluta). En esta prueba se intenta observar posibles efectos en la multiplicación, en el interior del cátodo al incluir solo Ar con ^{14}N . O sea, no existe metano en la mezcla de gas (figura 5.2.5).

Ocurrió que si bien, el espectro pudo ser adquirido, se observaron lo que parecían ser descargas durante el proceso de configuración electrónica y suba de tensión (lo que coincide con lo explicado en el capítulo 2). El llenado de gas del detector se realizó en el laboratorio **L.I.D.**

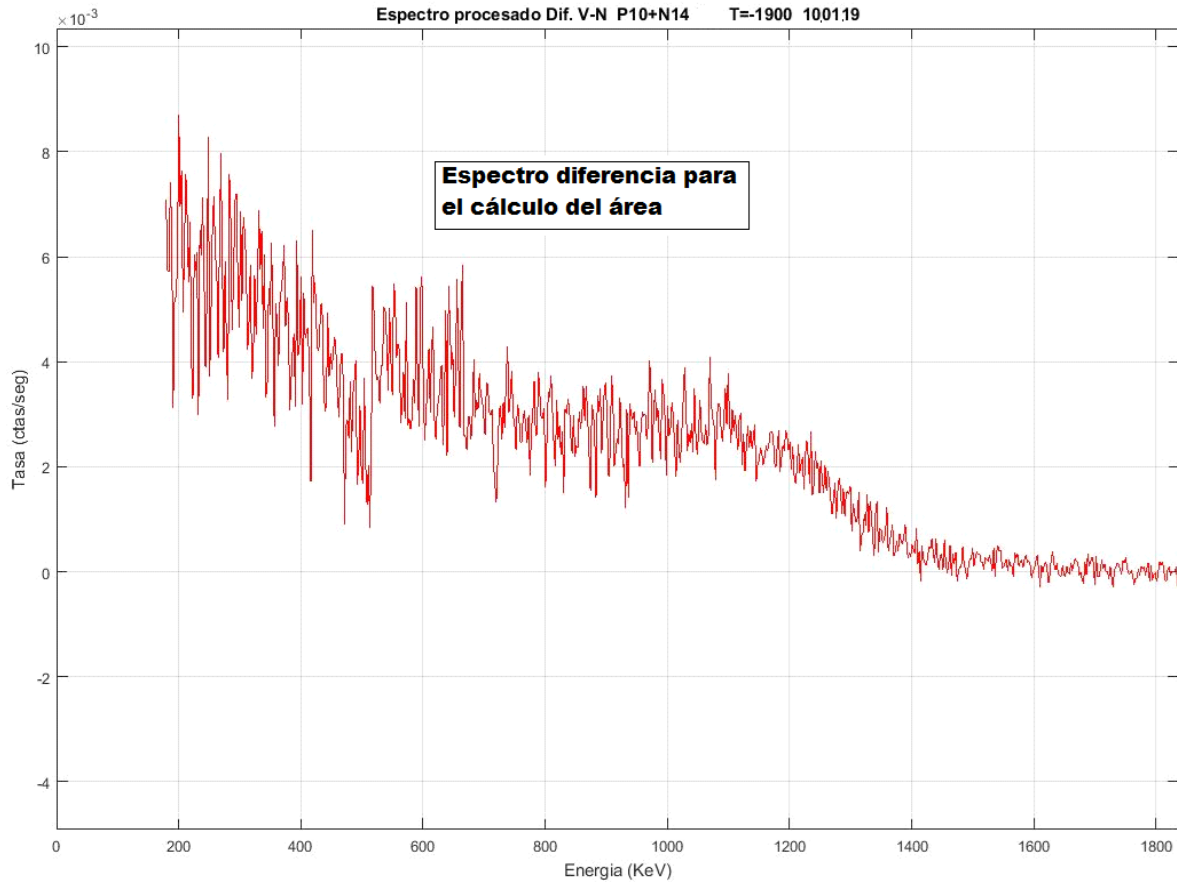


Figura 5.2.4. Espectro diferencia, modificado mediante la estrategia matemática comentada (Monte Carlo) para eliminar la diferencia en el pico de protones.



Aquí resultó que el espectro diferencia fue más fácil de interpretar que el anterior luego de la calibración de energías de cada espectro, por tal motivo no fue necesario emplear método comentado para el cálculo del área (ver gráfico 5.2.6).

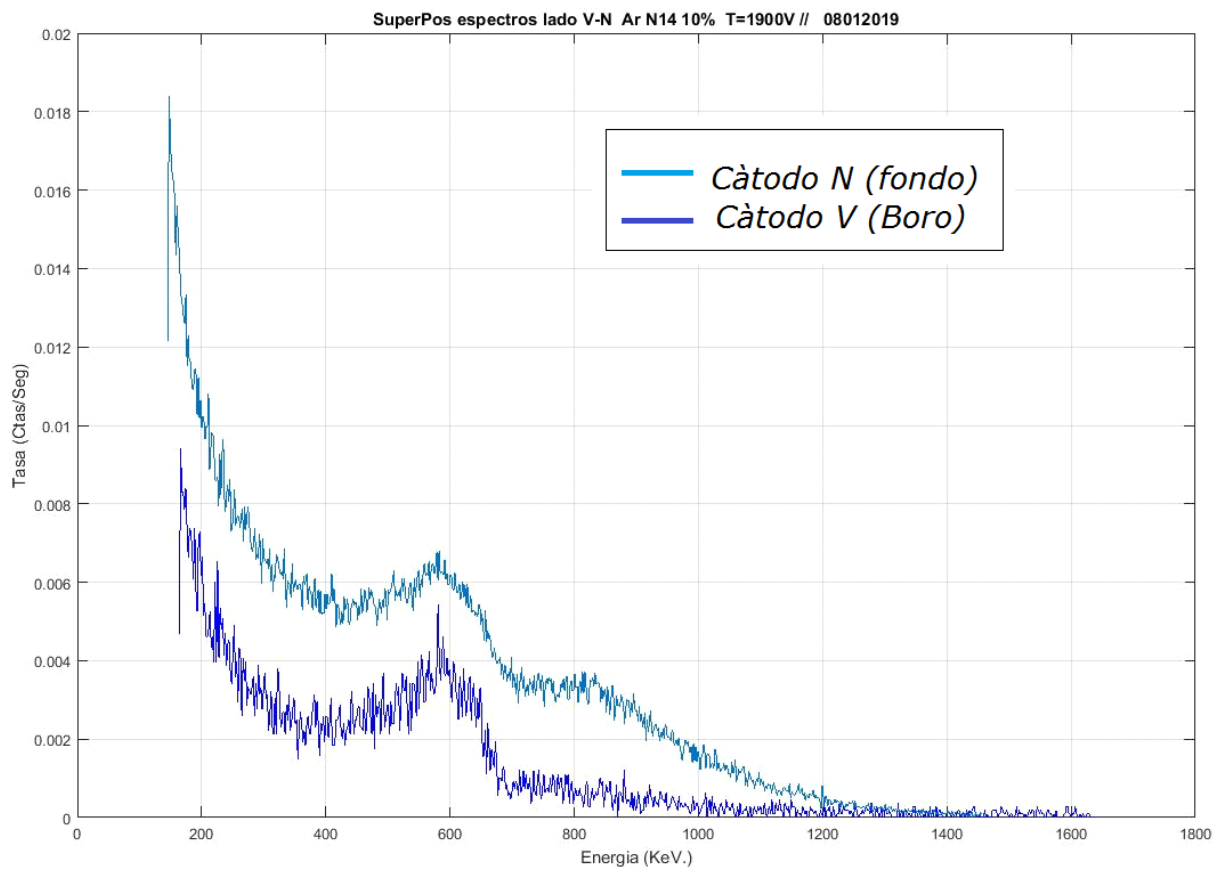


Gráfico 5.2.5. Espectro superposición, espectro fondo- espectro ^{10}B .





Aquí el área bajo la curva del espectro diferencia entrega una tasa de 2.86 cts/s (9 %), al igual que antes se trata de cuentas provenientes de partículas alfa y litios. Se recuerda que estamos haciendo la comparación entre tasas de conteo para los dos espectros en la misma región de interés, debido a que los diferentes experimentos no se realizaron durante un mismo intervalo de tiempo, como fue comentado anteriormente.

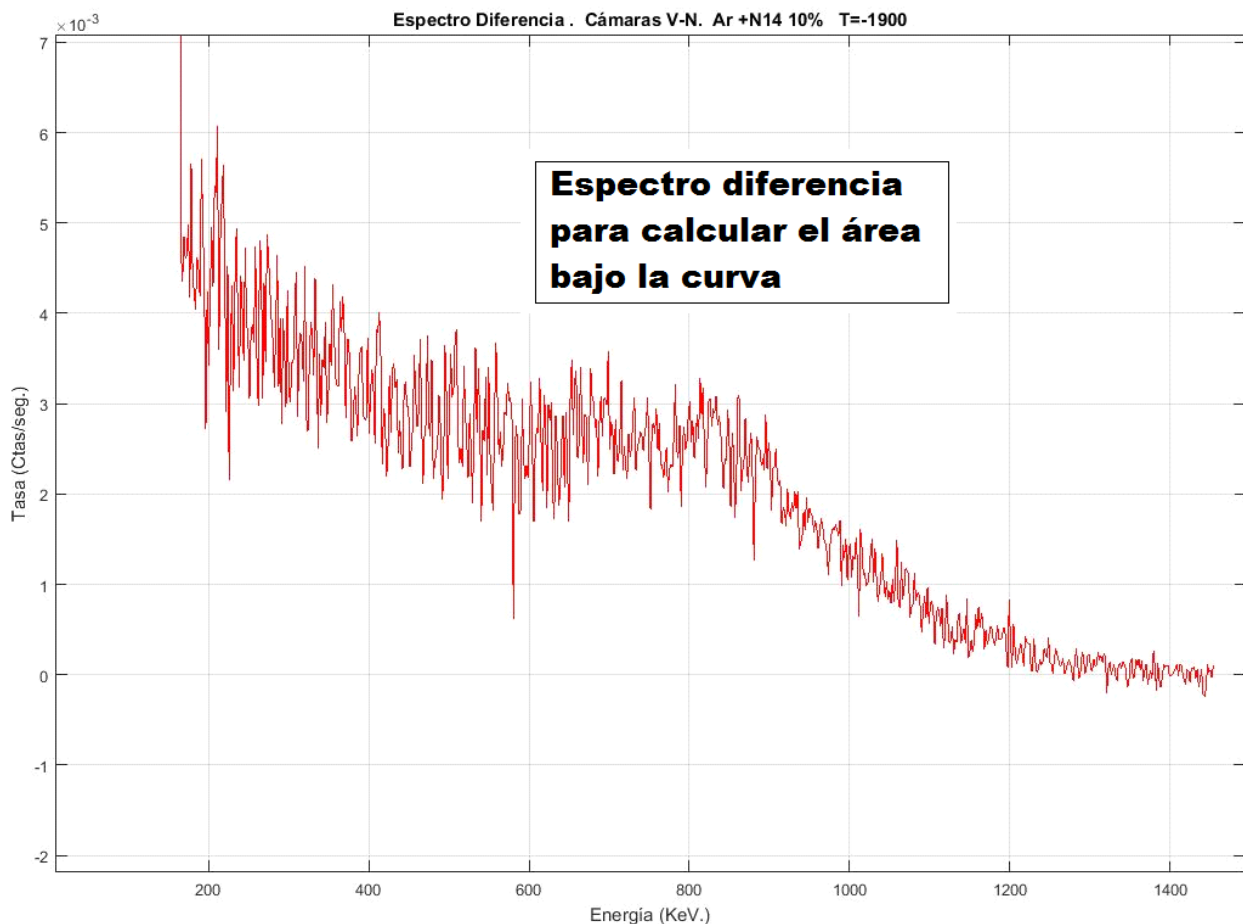


Gráfico 5.2.6. La tasa de conteo bajo la curva fue de 2.86 cts/s (9 %). No se volvió a usar la mezcla argón nitrógeno durante todo este trabajo y se continuó con la mezcla P10.



Estas experiencias realizadas nos indicaban que se obtuvo un resultado comparable. O sea, con la misma muestra habiendo utilizado mezclas diferentes de gases, se pudo reproducir el área bajo la curva con una discrepancia entre ellas inferior al 5 %.

Se observó que el cálculo de área mediante este método tiene como inconveniente que mantiene una incertidumbre importante, rondando el 10%. Experiencias posteriores donde se redujo la cantidad de boro en la muestra indicaron que este método de cálculo del área diferencia, tenía inconvenientes de aplicación y no se siguió avanzando en esta forma de cálculo.

Finalmente se comenta que esta prueba sirvió para evidenciar que referir un cátodo respecto al otro podría ser un buen procedimiento.

5.3 Experiencias realizadas con el contador doble apantallado con Cadmio

Como un ejercicio siguiente, se pensó reducir la cantidad de ^{10}B a detectar de forma que resulte evidente a simple vista (figura 5.3.1). Se decidió no usar la balanza para pesar las muestras porque no se dispone de mucha cantidad de boro metálico enriquecido en ^{10}B y el hecho de realizar pesadas de las muestras, puede ocasionar pérdida de material.

Paralelamente, se sometió al boro a una nueva molienda para lograr una disminución del tamaño respecto del logrado anteriormente (usado en



pruebas anteriores) y si bien no fue posible en esta ocasión hacer la microscopía para conocer el tamaño final del grano, se logró observar en los espectros, en la región de energías vinculadas a las partículas alfa, que se notaba más definida (como se verá más adelante).

Al comenzar con las mediciones (configuraciones de la figura 5.3.2), se notó que la tasa de conteo había disminuido considerablemente respecto los ensayos anteriores (lo que era esperable porque había menos boro). Las cuentas que aportaba la reacción del ^{10}B al espectro eran muchas menos que las que aportaba el ^{14}N . Se necesitaba un tratamiento especial para el cálculo del área en la zona donde solo aportan cuentas las partículas alfa.

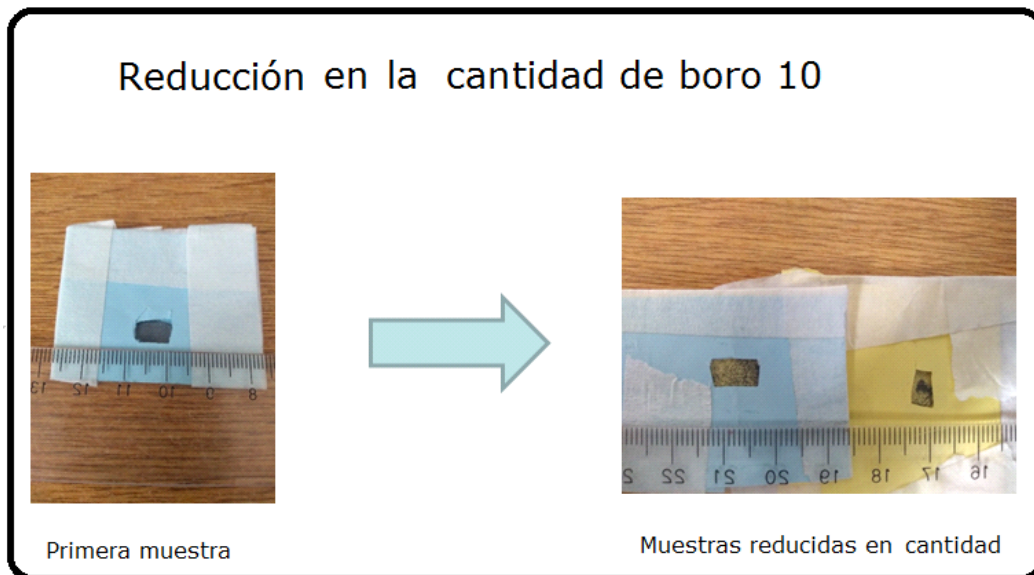


Figura 5.3.1. Reducción de la cantidad de ^{10}B en muestras para caracterización.

Esto motivó a pensar que se debía separar el espectro en dos regiones, una que contenga solo el pico provocado por la reacción del ^{14}N y otra aquella zona de mayor interés donde solo había un aporte efectivo de cuentas provenientes únicamente de la reacción del ^{10}B con el neutrón térmico. En el apéndice (D) se comenta sobre las primeras mediciones realizadas, observaciones y algunas conclusiones que fueron obtenidas al respecto.

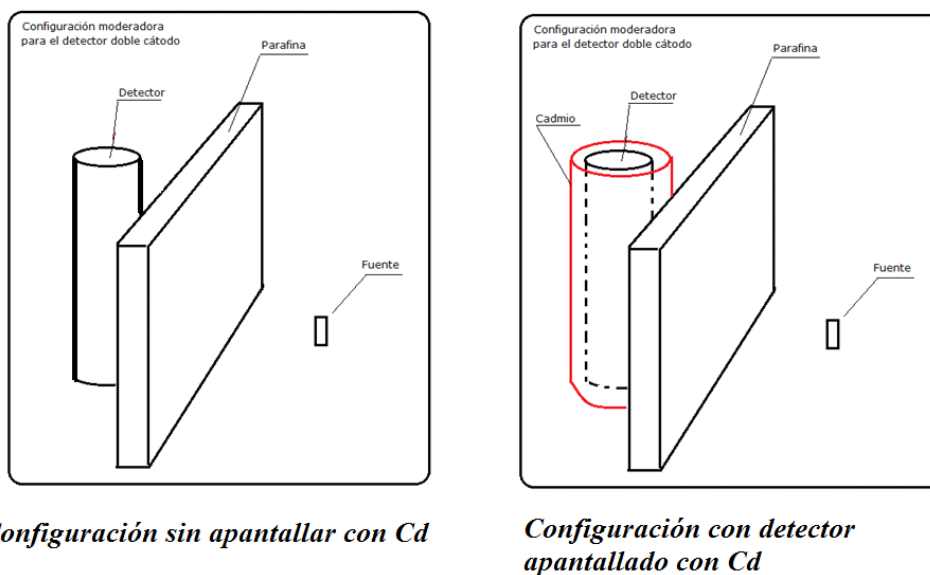


Figura 5.3.2. Configuraciones de medición, con y sin envoltura de Cadmio rodeando al detector.



La figura 5.3.3 muestra el espectro de fondo obtenido con un cátodo y el espectro con el detector apantallado superpuesto (lado fondo). La figura 5.3.4 muestra el espectro obtenido con el cátodo que posee la muestra (lado muestra), allí se observa cómo en la zona donde se espera solo el aporte de las partículas alfa al espectro, se distingue la presencia de las mismas, a pesar de que se había reducido considerablemente la cantidad de boro.

Sin embargo, esta observación de presencia de boro en el espectro se tornaba algo más complicada de apreciar a simple vista. Para volver a mejorar esta apreciación visual en el espectro, (con menos boro en la muestra) se procedió a reducir levemente el porcentaje de ^{14}N en la mezcla de gases con el propósito de mejorar la multiplicación dentro del detector. Entonces la mezcla que se comenzó a usar usada fue P10 + 6% de ^{14}N . Con este cambio se pudo observar en los espectros que se mostrarán siguientemente (apartado 5.3.a), tanto en la muestra de boro como en las muestras de agarosa con ^{10}B (más adelante, apartado 5.4), una mejora en la definición del espectro (es decir, que se aprecia una elevación en la zona donde se espera ver el aporte de las partículas alfa espectro). Aquí intervienen la acción combinada del efecto de reducción en el espesor de la muestra, sumado a la mejora de la multiplicación.



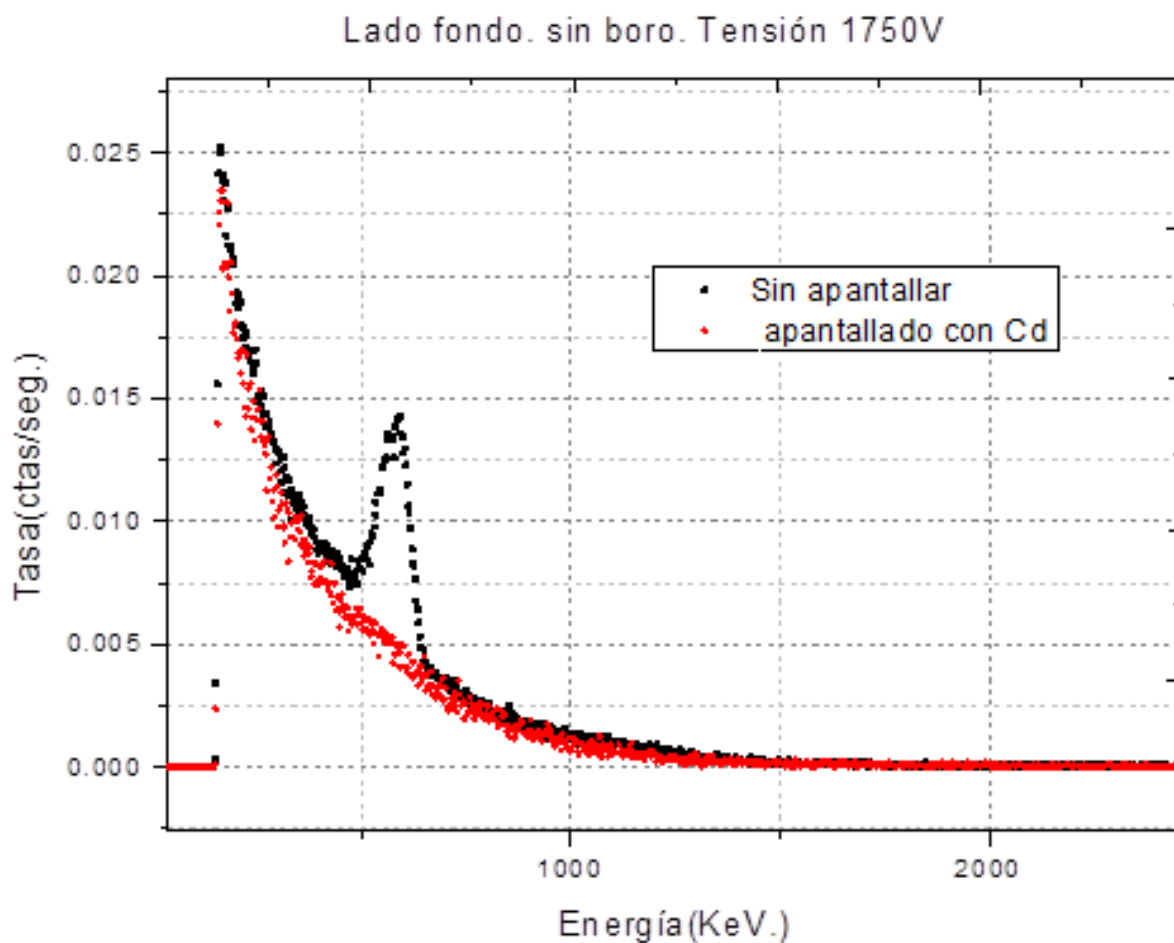


Figura 5.3.3. Lado fondo, superposición de espectros. Se muestra el pico del nitrógeno, medición realizada sin apantallar el detector y el espectro que corresponde al detector apantallado con la lámina de cadmio.

Observar en la Figura 5.3.4 la región entre 900 keV y 1500 keV. Allí se revela la presencia de partículas alfa en el espectro. La contribución del litio no se resuelve porque queda apantallada por el pico de protones, por estar más cercano en energía a este último.

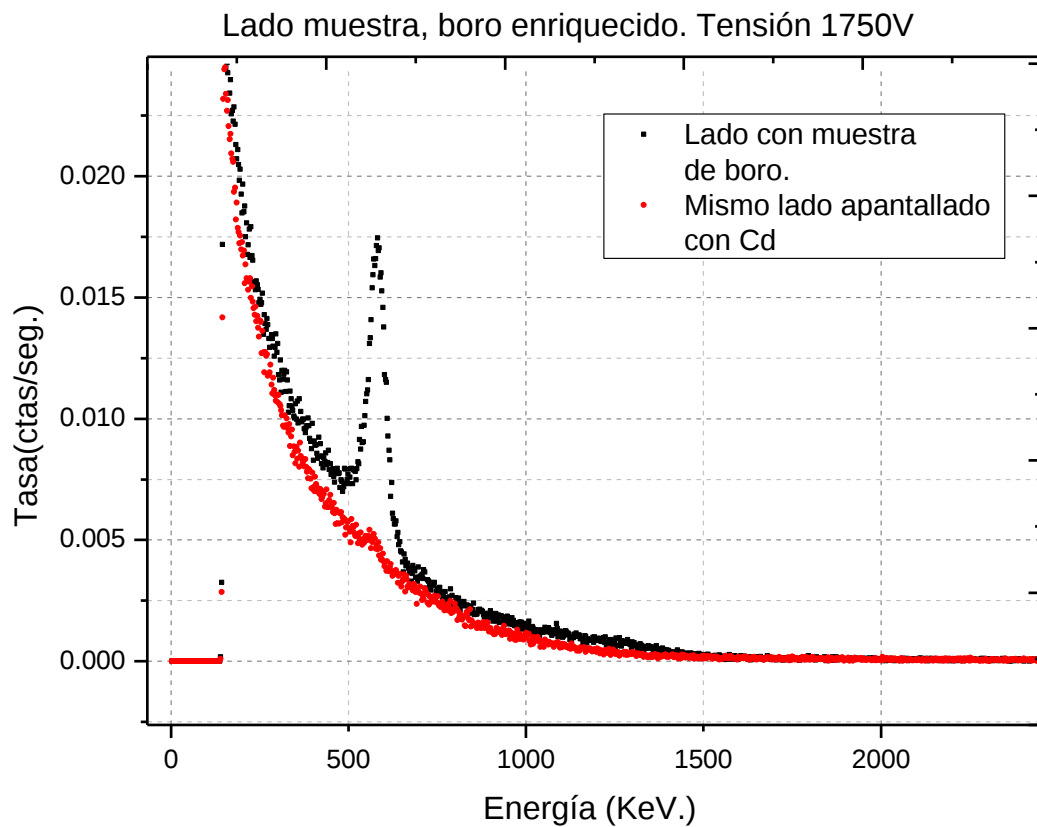


Figura 5.3.4. Lado muestra. Superposición de espectros muestra y muestra apantallada con Cd. Recordar que esto fue logrado con un flujo del orden de $700 \text{ n. cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$.

5.3 a Boro en ambos cátodos del detector

Los ensayos siguientes se realizaron con boro en ambos cátodos. Ya se había observado que el haber reducido la cantidad de boro en la muestra hacía más complicada su apreciación a simple vista en el espectro. Entre ensayos se utilizaba siempre la misma configuración electrónica (que se consideraba la más adecuada). Las únicas variaciones consistían en abrir la tapa del detector, volverlo a cerrar, hacer vacío hasta 50 mtorr y luego volver a cargarlo realizando la mezcla de gases. En este procedimiento no se movían las muestras de su posición.

Lograr siempre la misma mezcla de gases entre cada medición resultó ser el procedimiento más complicado, debido a que la instrumentación con la que se contaba en el laboratorio (L.M.R) no estaba diseñada para tales efectos. Tampoco se podía adquirir una mezcla preparada porque también se intentaba descubrir la mejor mezcla de gases, que permitiera multiplicación y una buena identificación de las partículas producto de la interacción del ^{10}B y el ^{14}N con el neutrón termalizado. (Recordar que el agregado de nitrógeno al P10 perjudica la multiplicación).

Entre las acciones para estudiar cómo mejorar y caracterizar el proceso de medición, se proponen las siguientes:

a) Las mediciones deberían ser más prolongadas para lograr una cantidad de cuentas que mejore la estadística.



b) Como se trabaja en el desarrollo de un método secundario de medición, se introducirán muestras con boro en ambos cátodos y se referenciará un cátodo respecto del otro, como si se tratase de un patrón de boro caracterizado, proveniente de alguna otra técnica de medición (algo que podría ocurrir en un futuro).

Se busca relacionar el área del espectro obtenido por el cátodo que posee la muestra "supuesta como patrón", con el área del espectro producido por el otro cátodo con la muestra "supuesta como incógnita". Esto permitirá estudiar cómo debería ser en un futuro, el procedimiento de colocar un patrón en un cátodo y la muestra en el otro cátodo y luego inferir la concentración incógnita.

En concordancia con lo comentado anteriormente, se puede realizar una especulación teórica acerca de cómo debería ser el procedimiento para medición de muestras y posterior cuantificación de ^{10}B .

Se plantea las siguientes condiciones experimentales;

- I. Se tienen dos muestras del tipo biológicas, una identificada como muestra patrón y la otra como muestra incógnita. Ambas muestras mantienen una geometría similar como así mismo, propiedades fisicoquímicas que las hacen





comparables una con otra. En las mediciones por métodos secundarios es deseable que el patrón se asemeje lo más posible a la muestra incógnita, esto reduce la aplicación de factores de multiplicación o aproximaciones que podrían aumentar la incertidumbre de medición.

II. Características constructivas del detector, hacen esperable que la eficiencia de detección del cátodo (V) y el cátodo (N), sean similares, en las condiciones del apartado anterior, sumado a la condición de que el detector recibe el mismo flujo térmico en ambos cátodos (se observó experimentalmente, ver Apéndice C).

III. Para la muestra patrón, se conoce la cantidad de ^{10}B en ppm y la misma es ubicada en el cátodo (V). La muestra incógnita, a la que se le desea conocer las ppm de ^{10}B es colocada en el cátodo (N).

Una vez finalizada la adquisición de los espectros, la muestra patrón indica un conteo correspondiente al área del espectro de interés (por ejemplo, la zona donde solo aportan las partículas alfa). Se identifica esta área como A_{ap} para identificarla como *Área del espectro alfa del patrón*.

Paralelamente se realiza la medición en el cátodo (N) de la muestra incógnita y luego a las cuentas que formaran el área





de interés se las identifica como A_{am} y nos referimos al *Área alfa de la muestra*, dato extraído del espectro. La medición es en simultáneo, por lo tanto, no sería necesario trabajar con la tasa de conteo.

Con el área del espectro ya determinada y las ppm conocidas del patrón, podemos definir una eficiencia como sigue:

$$\mathcal{E}_p = \frac{A_p}{ppm(patrón)}$$

(Ec. 5.3.a.1)

Lo mismo podemos hacer con la muestra incógnita (recordando aquí que las cuentas A_{am} son dato y la incógnita son las ppm), entonces tenemos:

$$\mathcal{E}_m = \frac{A_{am}}{ppm(muestra)}$$

(Ec.5.3.a.2)

Ahora utilizamos el hecho de que la eficiencia es la misma en ambos cátodos, entonces igualando las ecuaciones (5.3.a.1) y (5.3.a.2) tenemos:





$$\frac{A_{am}}{ppm(muestra)} = \frac{A_{ap}}{ppm(patrón)}$$

(Ec. 5.3.a.3)

Operando matemáticamente:

$$ppm(muestra) = A_{am} \frac{ppm(patrón)}{A_{ap}}$$

(Ec. 5.3.a.4)

Esta sería la manera en que, bajo las hipótesis mencionadas, se podría estimar las ppm de ^{10}B en la muestra, con la ayuda de un patrón calibrado.

c) Finalmente, para la experiencia de laboratorio a realizar, se propone hacer una serie de mediciones y calcular un valor medio de las mismas y su desvío estándar. Analizar este desvío puede dar una idea de cuan comparables son dos experimentos, en donde la mezcla de gases es similar pero no es idéntica entre cada ensayo y determinar un desvío estándar para estudiar la muestra incógnita.





En todo este análisis se asumió que ambas muestras a medir poseen la misma masa, esto para simplificar el razonamiento, pero no necesariamente podría ser así, entonces deberíamos hablar de concentración de boro en la muestra.

Con el objetivo de ensayar el procedimiento teórico comentado anteriormente y la estabilidad de éste (principalmente respecto a una variable sensible, que en nuestro caso es la preparación de la mezcla de gas), se pensó realizar una serie de mediciones y comparar sus resultados.

Entonces, se coloca boro enriquecido en ambos cátodos (en cantidades diferentes). Este boro enriquecido, hará de patrón (en un lado del cátodo) y muestra incógnita (en el otro cátodo). Estos primeros ensayos se hicieron con boro enriquecido (luego se usará agarosa con ^{10}B en ppm, como se verá más adelante).

Una vez colocado el boro se continúa con el procedimiento usual de carga del detector, o sea, se realiza vacío en el detector hasta la presión establecida y luego se lo llena con la mezcla de gases a presión de trabajo.

A partir de ahí, se realiza la adquisición de los espectros provenientes de ambos cátodos (con el detector sin apantallar con Cd), luego se rodea el detector con cadmio (Cd) y se vuelve a medir en ambos cátodos. Todo este procedimiento conforma **una medición**.

La siguiente medición se diferenciará de la anterior porque el procedimiento implica la apertura del detector con la consiguiente





liberación del gas usado en la medición anterior. Luego se cierra nuevamente y comienza la repetición del procedimiento anterior, sin retirar las muestras de boro de cada cátodo. Se realiza el vacío inicial para luego volver a llenarlo, tratando de replicar la mezcla de gases preparada anteriormente.

Estos ensayos también permiten verificar la estabilidad del detector, en términos mecánicos (o sea su robustez respecto al desarmado). O sea, si su funcionamiento no es afectado cada vez que se desmonta desde la tapa para introducir una muestra (aquí se recuerda que, dado que se trabaja con tasas de conteo muy bajas, se pueden producir diferencias que con tasas de conteo elevadas no son visibles). En segundo lugar, se sabe que la mezcla $P10+^{14}N$ no se puede preparar exactamente igual cada vez que se hace el llenado del detector y esto podría generar diferencias en el proceso de multiplicación entre diferentes ensayos. Entonces, se realizarán una serie de mediciones para analizar valores medios, como se comenta en el apartado siguiente.



5.3.b. Análisis del espectro

Con el nuevo procedimiento, lograr un conjunto de mediciones consideradas apropiadas, demoraba unos cinco días, esto es debido a que se está trabajando con un flujo de neutrones estimado de $7.10^2 \text{ n.cm}^{-2}\text{seg}^{-1}$. Este tiempo era el necesario para obtener un número de cuentas adecuado. Cada cátodo aportaba dos espectros, uno con el detector sin apantallar y otro con el detector apantallado con la plancha de cadmio, la cual se acomoda de manera que rodee al detector. La figura 5.3.b.1 muestra una superposición de estas dos mediciones.

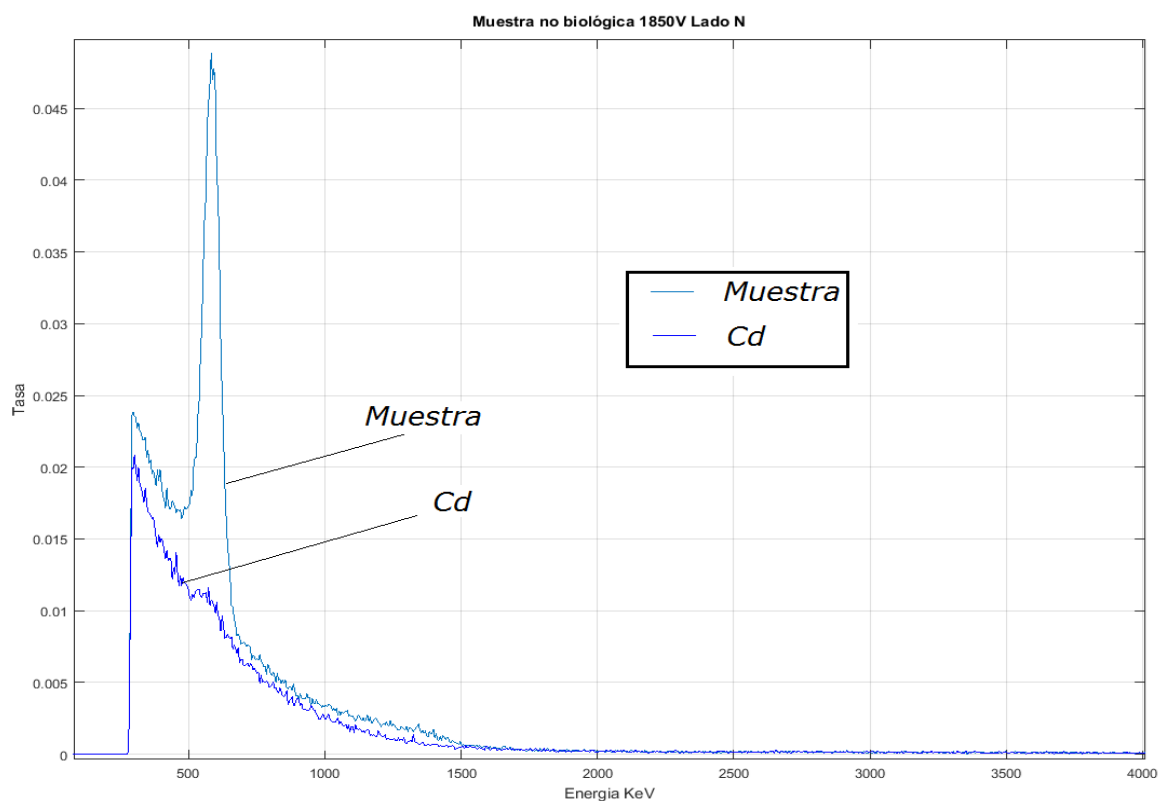


Figura 5.3.b.1. Espectros superpuestos de un mismo cátodo. Detector apantallado y sin apantallar. Cátodo identificado como N.



Una vez obtenidos los espectros de interés para cada cátodo, luego se restan de la siguiente forma: al espectro obtenido de la medición del detector sin rodear con cadmio se le resta del obtenido con el detector rodeado con cadmio (Cd), esto se realiza para cada cátodo. Ver figura 5.3.b.2.

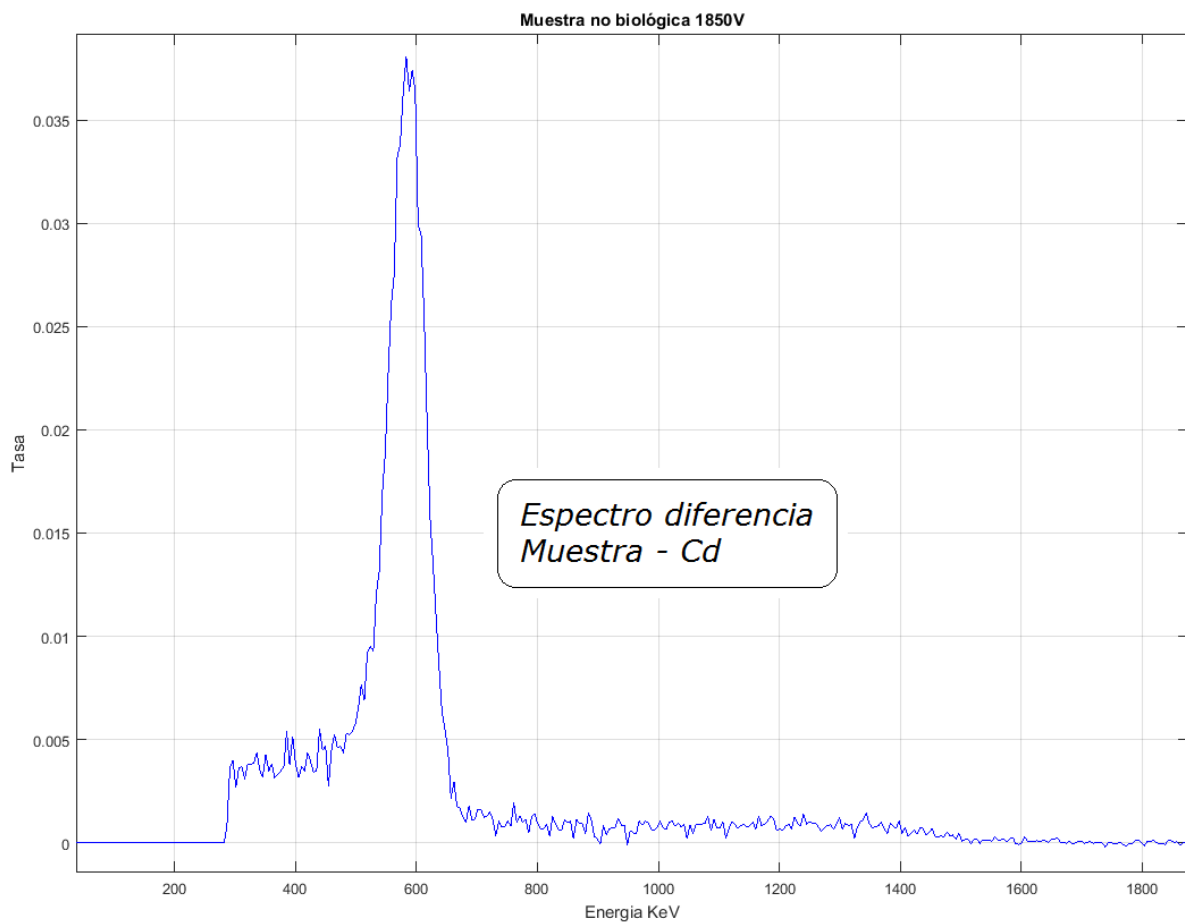


Figura 5.3.b.2. Espectro diferencia entre cátodo N sin Cd y cátodo N con Cd.

Diferentes ensayos (como se comentó anteriormente) llevaron a la conclusión de que se puede establecer una relación de áreas del espectro diferencia obtenido de cada cátodo, dividiendo el espectro diferencia producido por cada cátodo en dos partes de interés. Ver figura 5.3.b.3.

Entonces, por un lado, se identifica el *área del pico de protones*, luego se etiqueta o denomina (por ejemplo) como A_{pp} , luego se identifica el área que es *aporte de las partículas alfa y litio* producidas por la reacción, y se identifica como A_{aL} . Esto se repite para cada espectro (cátodo V y cátodo N).

Como se comentó, para el análisis de las áreas de los espectros se partió de la hipótesis de que la relación entre los cátodos debe mantenerse, aunque no se puedan igualar las condiciones de llenado y mezcla de gases entre diferentes ensayos. Más precisamente, se está afirmando que, por cada ensayo, si hacemos:

$$\frac{A_{aL}^V}{A_{aL}^N} = R_{aL} \quad (\text{Ec.5.3.b.1})$$

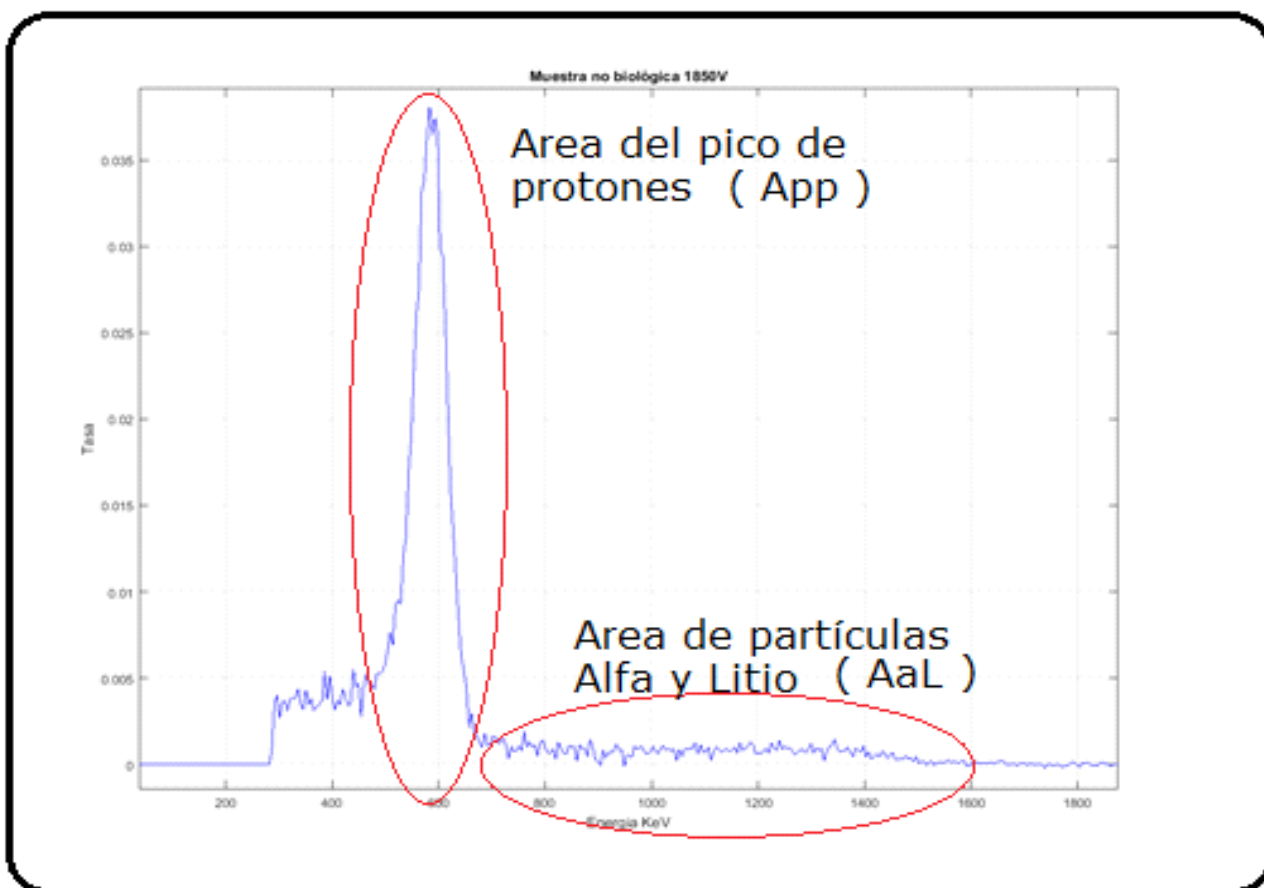


Figura 5.3.b.3 Áreas de interés del espectro diferencia.



Donde el supra-índice V o N hacen referencia al espectro obtenido con la muestra en el cátodo V o N respectivamente.

Lo mismo podemos hacer con el área del pico de protones, obteniendo:

$$\frac{App^V}{App^N} = R_{pp} \quad (\text{Ec.5.3.b.2})$$

El siguiente paso luego de calcular las relaciones indicadas por las expresiones 5.3.b.1 y 5.3.b.2, para cada experimento de medición, se genera una lista de valores R_{pp} y R_{aaL} y así se calcula un valor medio de estas cantidades. Se espera la situación en la cual puedan existir diferencias en la multiplicación producida en el detector entre cada ensayo, debido a pequeñas diferencias en la mezcla de gases preparada para cada medición. El apéndice (D) comenta algunas experiencias que se realizaron para estimar el conteo en cada sector del espectro.

Se obtuvieron tres valores de cocientes de áreas R_{pp} y R_{aaL} , por cada valor de tensión de -1750 V y -1850 V.

Se elevó la tensión en 100 V para observar si existía alguna diferencia significativa en el conteo, respecto de una variación de tensión, que no superaba el 7% de la tensión aplicada, esto es para detectar si variaciones de pequeños rangos en la tensión, podrían modificar el comportamiento proporcional de manera que un cátodo ya no conservara relación con el otro, lo cual no fue observado.





El criterio de tomar dichos datos como elementos de un mismo conjunto de mediciones a pesar de provenir de experiencias donde se había aplicado diferentes tensiones, se consideró aceptable luego de observar que estos datos (en su mayoría) se mantenían dentro de una discrepancia de 3σ respecto del promedio de las áreas, aquí se recuerda que también se vuelve a preparar la mezcla de gas y se llena en detector con el mismo y luego se lo coloca en la configuración de moderación, esto para cada medición.

Entonces, los resultados obtenidos fueron tratados como parte de un mismo conjunto y se realizó un promedio y se calculó su desvío estándar y la incerteza del promedio. Ver tabla 5.3.b.1.

Aquí es conveniente aclarar que para simplificación de notación, en las tablas y gráficos que siguen, a las áreas del espectro calculadas, las llamaremos V o N según el cátodo que adquirió el espectro. A las relaciones R_{pp} o R_{aL} (del ejemplo comentado anteriormente), las llamaremos V/N y en las mismas tablas y gráficos se aclara si pertenece al sector del espectro correspondiente al pico de protones o al conteo relacionado con las partículas alfa y litios.

Mientras no se cambien las dos muestras en el interior del detector y el único cambio realizado sea el comentado anteriormente, o sea, vaciar y llenar de gas el detector, entonces es de esperar obtener cierta relación entre las áreas obtenidas con un cátodo y el otro. La multiplicación no será la misma entre cada ensayo, pero esto les sucede a ambos cátodos, entonces podemos intentar observar la correlación que mantienen las áreas de interés en cada medición.





Para conocer el coeficiente de correlación $\{R\}$ en los valores de las áreas que se obtienen de ambos cátodos (para el pico de protones y para la región alfa-litio), graficamos el área indicada como V respecto del área identificada como N de cada ensayo y esto se hace tanto para el pico de protones como para el área correspondientes a las partículas alfa y litio (ver figura 5.3.b.4). Es importante porque el método de cálculo requiere de esta correlación, como se comentó anteriormente.

	V neto	N neto	N/V
1850_3	0.652	1.037	1.589
1850_2	0.531	0.857	1.615
1850_1	0.517	0.829	1.604
1750_3	0.349	0.640	1.834
1750_2	0.300	0.530	1.768
1750_1	0.226	0.433	1.915
		Promedio	1.721
		Desvio	0.127
		Incert. %	3

Tabla 5.3.b.1. Relación en el área de pico de protones
Aquí el valor promedio de la relación entre ambos cátodos es $R_{pp} = N/V = 1.721$ (3 %).



La correlación de datos indica un valor de $R = 0.997$ (fuertemente correlacionados).

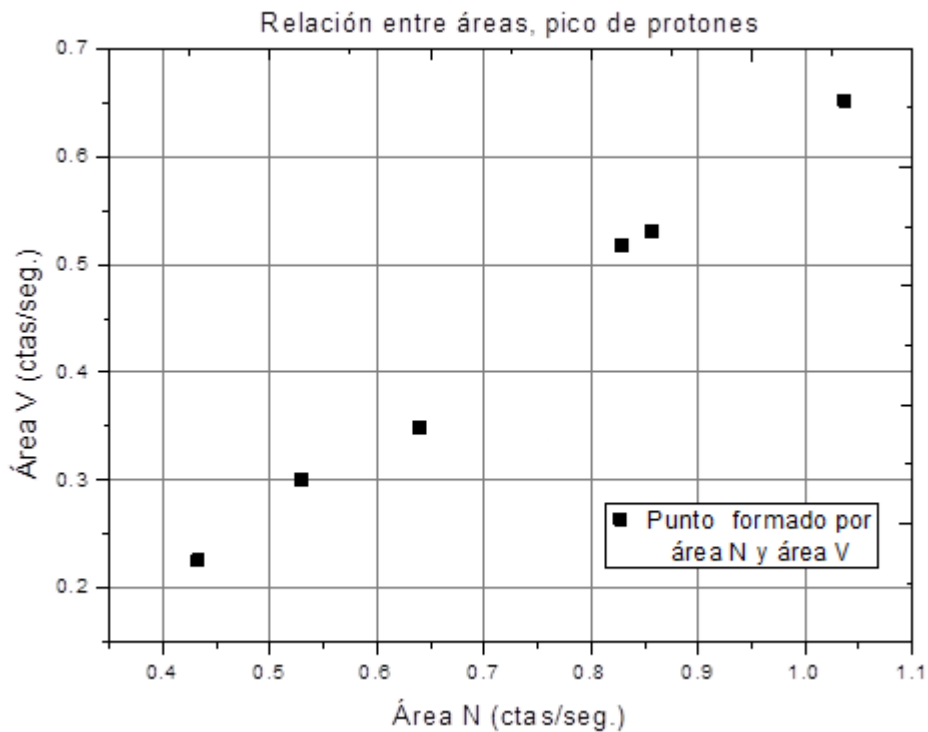


Figura 5.3.b.4. Se observa la correlación que mantienen las áreas calculadas con los espectros que entrega cada cátodo.

Esta relación encontrada entre las áreas del cátodo N y el cátodo V es indicadora del buen funcionamiento del equipo. La mezcla de gas puede cambiar entre diferentes ensayos, pero la multiplicación de cargas que se produce en cada cátodo debe aumentar o disminuir de la misma manera en ambos, porque ambos están inmersos en el mismo gas. Si esto no ocurriese, no se podría comparar o referir el espectro obtenido con un cátodo contra el otro, o sea, no se podrían comparar las áreas.

La figura 5.3.b.5 muestra cómo se comporta el cociente de las áreas hallado $R_{pp} = N/V$, datos de la tabla 5.3.b.1. Se aplica un criterio (criterio de Student) para el análisis de datos donde el conjunto reducido, esto para determinar si algún valor es no aceptable.

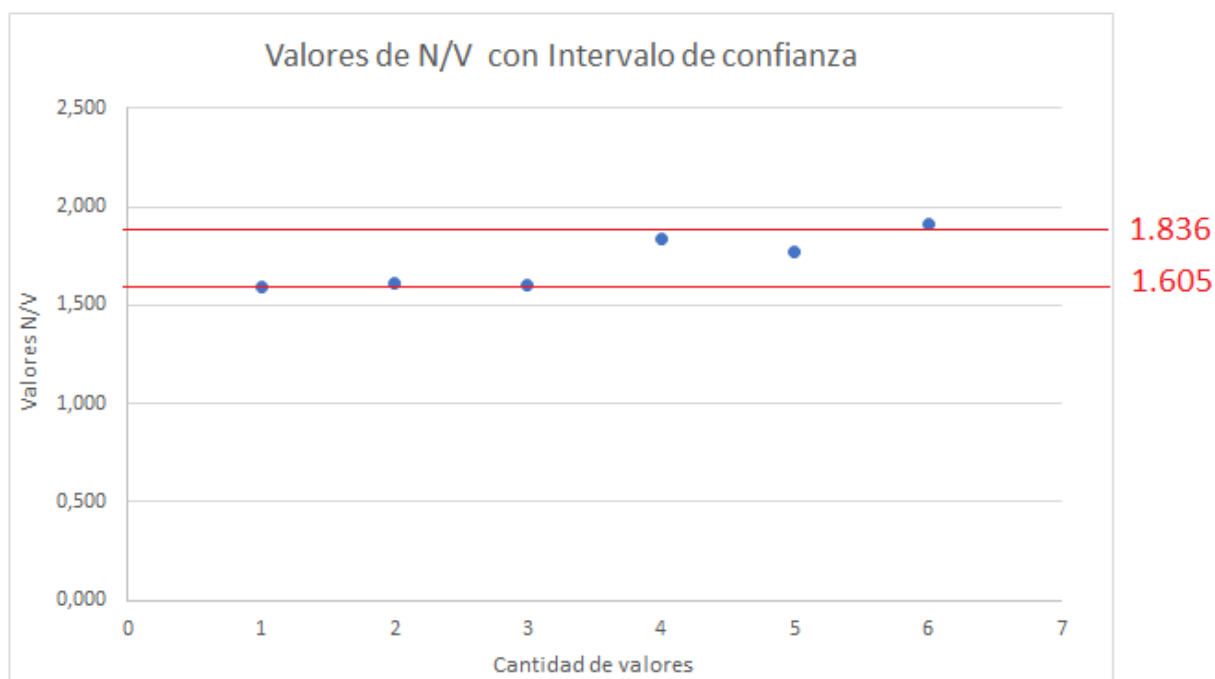


Figura 5.3.b.5. Relación del cociente N/V correspondiente al área del pico de protones junto con su desvío estándar. Aquí N/V representa a la relación R_{aap} (Ec. 5.3. b.2). Las líneas horizontales representan valores de coeficientes de confianza (95 %) para conjuntos de datos < 30 , criterio de Student.

Ahora interesa aplicar el mismo tratamiento de los datos a la siguiente región de interés en los espectros, o sea, donde solo hay aportes de las reacciones de captura en boro, es decir, partículas alfa y litio.

Realizando idéntico procedimiento al conjunto de datos, pero esta vez en el área de interés del espectro donde mayormente hay aporte de partículas alfa y litio, pero no del protón del nitrógeno, se confecciona la tabla de valores (Tabla 5.3.b.2):

El valor identificado como promedio = 3.395 es obtenido de las relaciones $R_{aal} = N/V$ realizadas con las mediciones del cátodo N y V, contiene la información que relaciona las tasas de conteo producidas por ambos cátodos para la región de interés indicada en la figura 5.3.b.3 como A_{aL} , donde se toma en cuenta aporte de las partículas alfa y litios.

Luego del tratamiento realizado de datos, se intentó observar una esperable correlación entre los valores obtenidos con un cátodo, respecto del otro. Con este objetivo se graficó el área de interés que se obtenía del análisis del espectro que proveía la muestra en el cátodo (V) contra su equivalente del cátodo (N).

En la figura 5.3.b.6 se observan variaciones entre diferentes mediciones sucesivas de la misma muestra (a dos tensiones de trabajo, igual que antes), lo cual se denota en la muy baja correlación entre los grupos de mediciones (cosa que no se observa en el pico de protones).

La falta de correlación entre los resultados de las áreas es impedimento para el uso del método, porque indicaría un cambio en la multiplicación de un cátodo respecto del otro.

Med.	V neto	N neto	N / V
1850_3	0,132	0,450	3,404
1850_2	0,121	0,447	3,679
1850_1	0,094	0,426	4,524
1750_3	0,143	0,433	3,021
1750_2	0,135	0,406	3,007
1750_1	0,140	0,380	2,721
		Promedio	3,395
		Desvio	0,590
		Inc. %	7

Tabla 5.3.b.2. Valores de tasa de conteo obtenidos en los cátodos V y N, También se observa la relación entre cátodos $R_{aal} = N/V$ para boro enriquecido en ^{10}B .

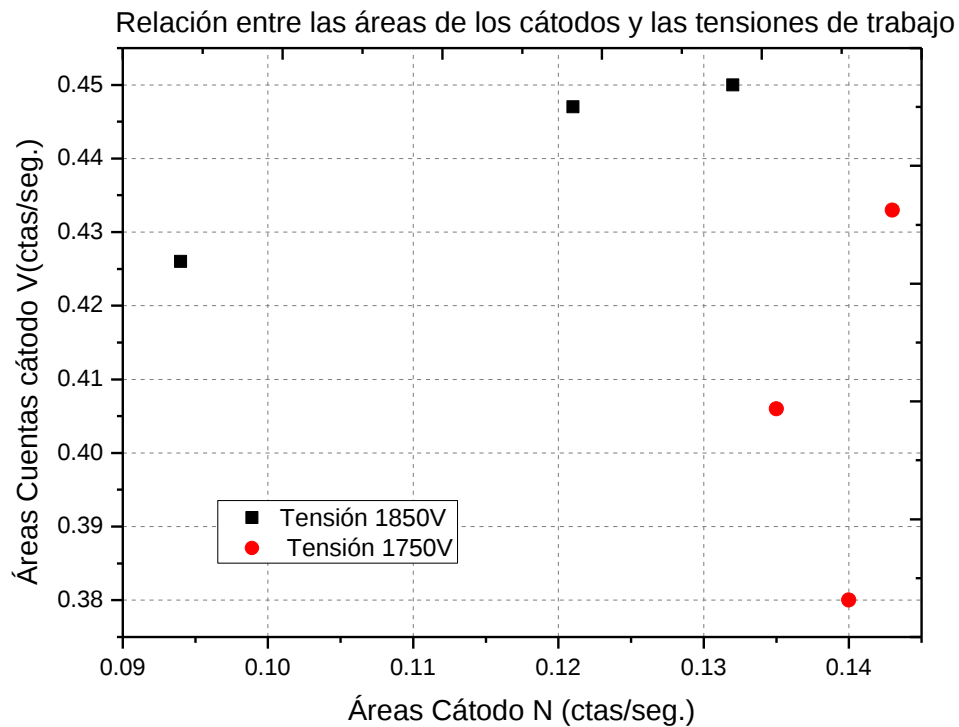


Figura 5.3.b.6. Áreas asociadas a la detección de las partículas alfa y litio, para la tensión de 1750V se tiene; Correlación = 0.434. Interpretese el área en unidades de ctas/s. Áreas asociadas a la detección de las partículas alfa y litio, para la tensión de 1850V, se tiene una Correlación = 0.987. Interpretese el área en unidades de ctas/s.



Haciendo un análisis similar al realizado anteriormente, aplicamos el criterio de Student y puede verse como el criterio descarta dos valores de los calculados, figura 5.3.b.7.

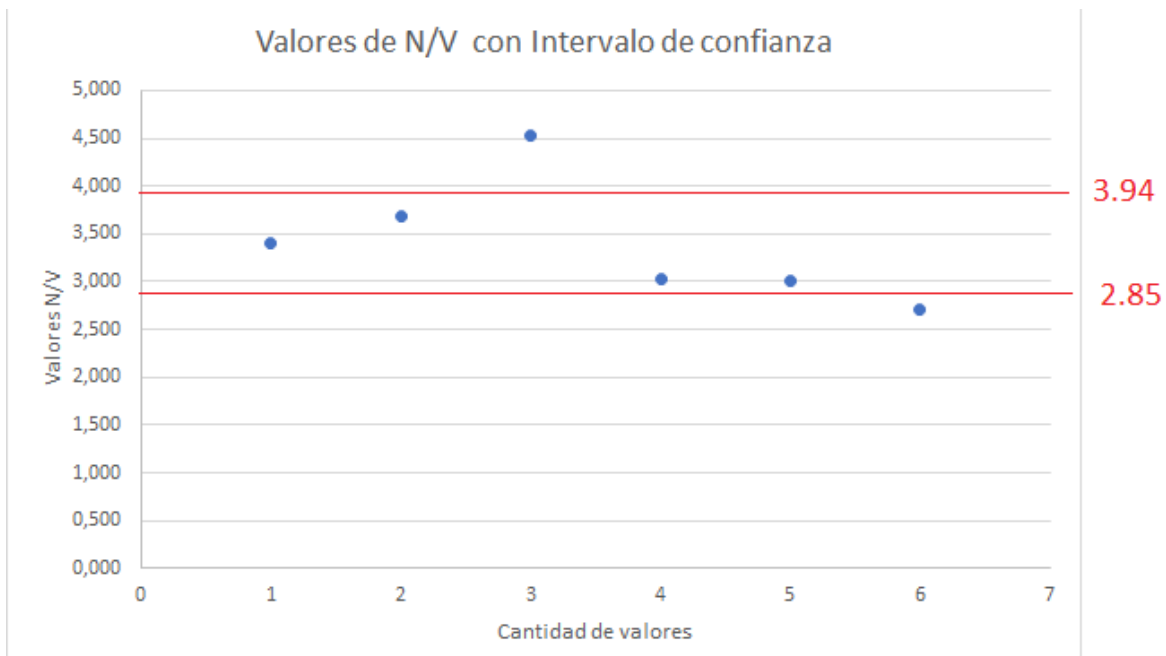


Figura 5.3.b.7. Relación del cociente $R_{aaL} = N/V$ correspondiente al cociente de las áreas obtenidas de las muestras de ^{10}B . Aquí vemos (igual que antes) que las líneas horizontales representan valores de coeficientes de confianza (95%) para conjuntos de datos < 30 , criterio de Student.



Entonces, esta situación podría deberse a que se necesitaría una mayor tasa para analizar esta parte del espectro, ya que esta falta de correlación no es observable al estudiar el pico de protones de la misma medición, donde la tasa es mayor. De todas formas, se debe considerar que el número de datos es bajo (6 datos).

Finalmente se comenta que la tasa de conteo aumenta con el flujo de neutrones térmicos, lo que se puede obtener mejorando la configuración de moderación (o aumentando el número de fuentes).

Las mediciones que se realizan llevan además incluidas una forma de controlar si el detector se encuentra bien apantallado con cadmio, observando los espectros obtenidos por ambos cátodos, luego de apantallar al mismo. Haciendo una superposición de estos espectros, no debería verse diferencia entre uno y otro, ya que los neutrones térmicos no logran pasar hacia el detector, ver figura 5.3.b.8.



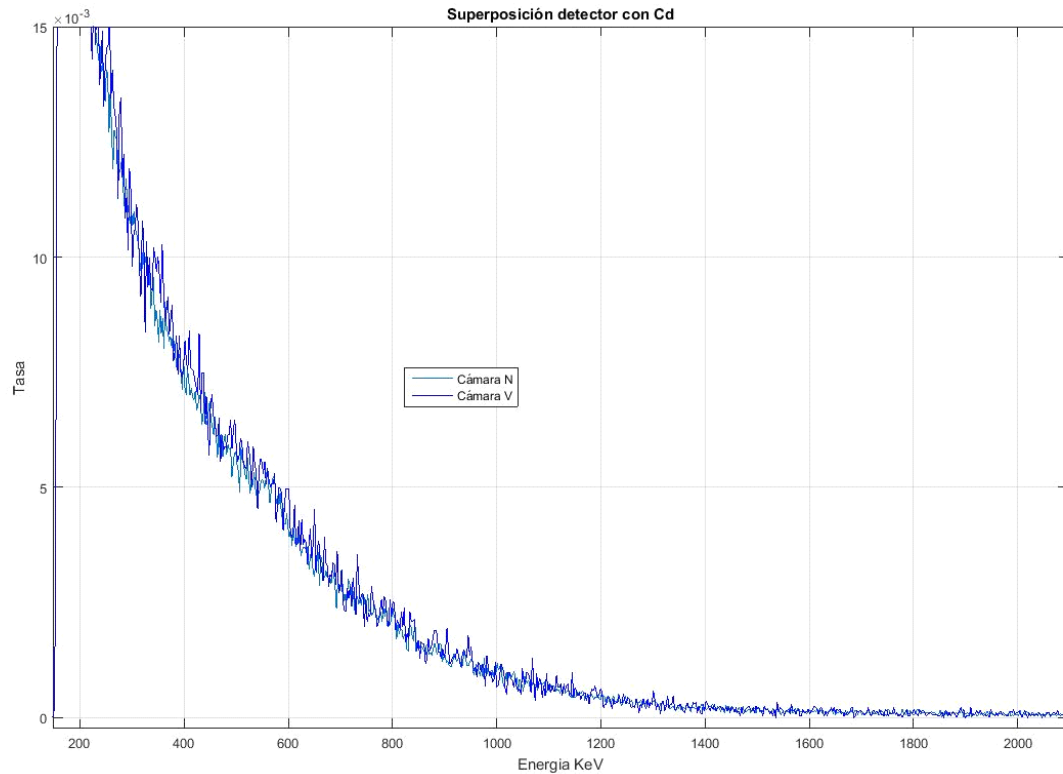


Figura 5.3.b.8. Superposición de espectros, cátodos V y N. Detector apantallado con Cd. Siempre se realiza este control de los cátodos, para ver la coincidencia del espectro fondo entre ambos.

5.4 Pruebas con ^{10}B en agarosa

Esta etapa experimental resultó importante ya que se trabajó con muestras cuya concentración de ^{10}B era conocida. Esto fue posible con la colaboración y experiencia del grupo de BNCT de “Imagenología del Boro”, perteneciente al Departamento de Radiobiología de la CNEA. Uno de los aspectos más importantes en BNCT es el conocimiento de la “microdistribución” del boro a escala celular. Para ello es necesario contar con un método que permita “mapear” la distribución de boro en una muestra de tejido. El grupo de Imagenología del Boro ha desarrollado y puesto a punto en CNEA la técnica de autorradiografía neutrónica, específicamente en BNCT.

La misma permite obtener la información deseada con una practicidad tal que la hace apropiada para el estudio sistemático de muestras de tejidos de animales o biopsias de pacientes. Además, el grupo de Imagenología del Boro ha desarrollado patrones de concentración de boro en matrices equivalentes a tejido para la completa caracterización cuantitativa de mapas de distribución de boro a escala microscópica.

El grupo emplea diferentes tipos de geles de agarosa, a los cuales se les adicionan cantidades conocidas de boro para luego ser utilizados como patrones para cuantificación de ^{10}B , (el laboratorio utiliza SSNTD como detectores y aplica la técnica descripta en el capítulo



1). De esta forma se comenzó a realizar mediciones con muestras de agarosa con ^{10}B que aportó el grupo de Imagenología. Esta valiosa colaboración nos permitió avanzar en las siguientes cuestiones:

- a) Este tipo de patrón posibilitaba trabajar con una muestra que contiene concentraciones conocidas de ^{10}B , las cuales también se miden con otros sistemas de análisis cuantitativo elemental y que a su vez por sus características resulta comparable con muestras de tejido biológico. De esta forma los resultados obtenidos durante el desarrollo de esta técnica, también podrían compararse con otros métodos de medición implementados en CNEA.
- b) La densidad de la agarosa que contiene el ^{10}B es de aproximadamente 1.03 g.cm^{-3} , similar a la densidad de los tejidos blandos. Esto resulta conveniente porque se esperaría ver un espectro generado por las partículas alfa y litio comparable con el que se obtendría con una muestra de tejido, principalmente por cuestiones asociadas a auto-absorción de las partículas en la muestra (para espesores comparables).
- c) Las muestras de agarosa fabricadas por el grupo de Imagenología poseen una cantidad de boro conocida en ppm en un rango tal que nos permitirá comenzar a medir muestras con cierta concentración de ^{10}B que sea detectable en nuestro sistema para





luego empezar a reducirla hasta determinar el mínimo valor detectable por nuestro equipo. Detectar cantidades inferiores a 50 ppm sería un resultado de aplicación en BNCT.

5.4.a. Agarosa con ^{10}B en ppm dentro del contador proporcional

El patrón, luego de su preparación, se deshidrata con el paso del tiempo y esto produce la reducción de su espesor. Luego de un lapso de entre dos a tres semanas el contenido de agua se estabiliza, pero se reseca volviéndose algo frágil, lo que se hace más notable para espesores delgados (alrededor de 30 μm). La agarosa se prepara sobre una lámina de **lexan** (nombre comercial del material detector que se usa en el laboratorio de imagenología del boro tipo SSNTD) de aproximadamente 0.5 mm de espesor (detalles de la preparación de las muestras pueden verse en las referencias, Ref. [20]. [21]).

La fragilidad de la muestra complica la manipulación del patrón y su ubicación en el porta-muestra diseñado para el detector, debido al riesgo de que se quiebre durante el proceso, se decidió continuar usando los soportes de papel, al menos para las primeras experiencias, según se muestra en la figura 5.4.a.1.



Las opciones para las muestras ofrecidas por el grupo de imagenología del boro, permitía optar por concentraciones de 500 ppm, 200 ppm y 80ppm de ^{10}B en agarosa (valores medios). Se comenzó probando con la de menor cantidad de ^{10}B (80 ppm) y se hicieron algunas mediciones donde se notaba cierta dificultad para observar a simple vista en los espectros la presencia de boro.

Por ejemplo, considerar el grupo de figuras 5.4.a.2-3, donde se observa los espectros de una muestra de agarosa con 80 ppm de ^{10}B ubicada en el cátodo V, y una muestra de agarosa sin boro, ubicada en el cátodo N.



Figura 5.4.a.1 Foto de las primeras muestras con agarosa colocadas dentro del detector, con 500 ppm de ^{10}B . El porta-muestra de papel surgió como solución de compromiso, debido que al ser tan frágil la muestra, se corría el riesgo de que esta se quiebre en la manipulación y con el riesgo de que esto ocurra dentro del detector, lo que traería serios inconvenientes (contaminación muy difícil de eliminar, por ejemplo).

La figura 5.4.a.2, muestra una superposición de espectros que definen una región delimitada entre el espectro producto del detector midiendo sin estar apantallado con cadmio y el detector midiendo apantallado. Para la observación, se utiliza el conteo del área en la zona del espectro donde privilegia la acción de las partículas alfa (entre 1000 keV y 1600 keV). Cualitativamente, se observa que los espectros muestran pulsos en la región donde se espera la contribución de las reacciones de captura en boro. Los valores de conteo fueron los siguientes:

Para 80 ppm (figura 5.4.a.2) la tasa de conteo es 0.138 (10 %) cts/s. Para la muestra de agarosa sin boro (figura 5.4.a.3), 0.062 (10 %) cts/s. O sea, el conteo para 80 ppm (0.138 cts/s) se mantiene un poco mayor al doble del fondo (2. 0.062 cts/s), este es un umbral mínimo que usamos en este trabajo, para indicar que se observa partículas provenientes de la reacción. El criterio se basa en la experiencia que aportó la inspección visual de los espectros. Se puede distinguir a simple vista la aparición de las partículas alfa (principalmente) en los diferentes espectros con los que se trabajó. A modo de ejemplo, en espectrometría gamma es usual descontar parte del fondo de un espectro, por inspección visual. Por supuesto es una apreciación subjetiva que está respaldada en la experiencia del observador.

Se realizaron otras mediciones con estas muestras donde no siempre era fácil distinguir el boro.

Pero estas eran las primeras mediciones con el nuevo material contenedor de ^{10}B y la experiencia acumulada en mediciones anteriores indica que no suele observarse inmediatamente lo buscado, sobre todo con un cambio relevante en las condiciones de trabajo.

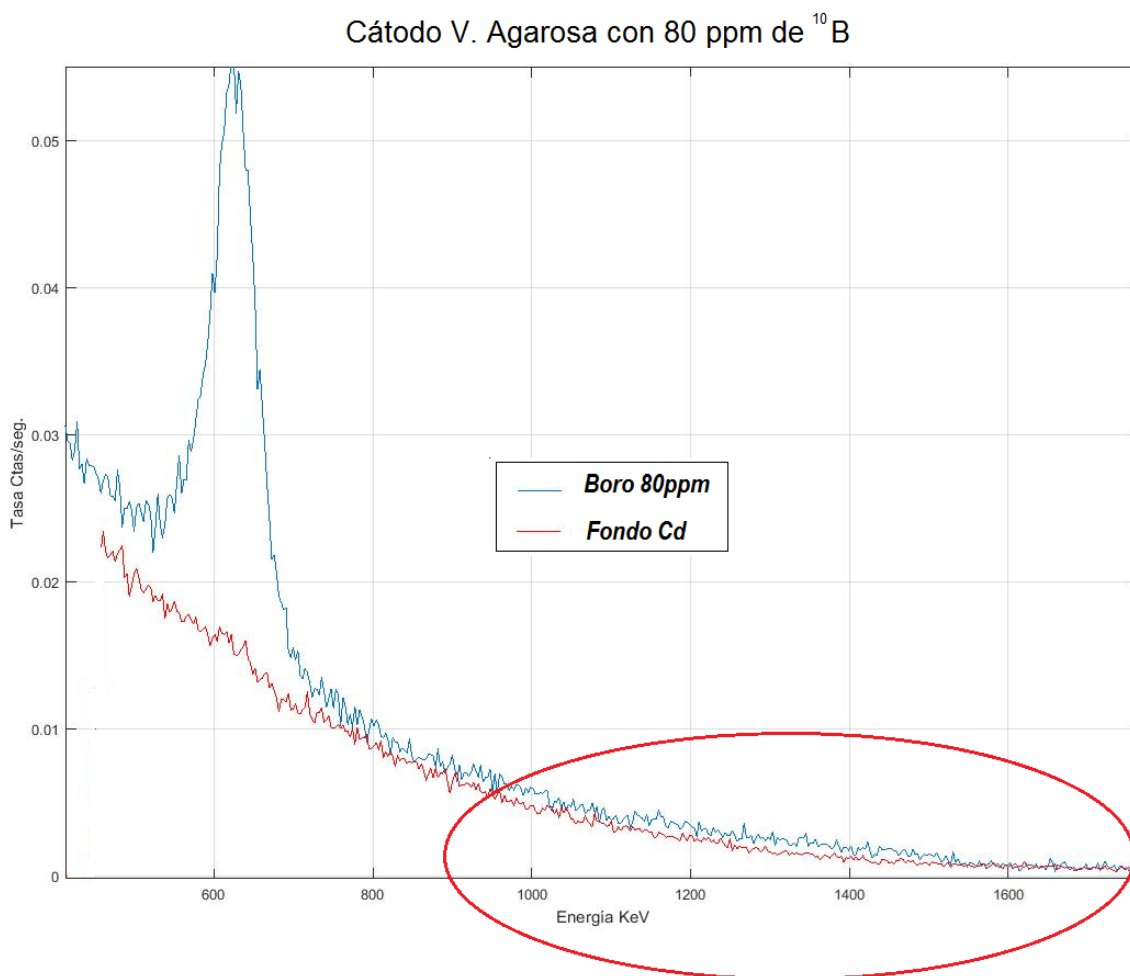


Figura 5.4.a.2. Espectro producido por ^{10}B en agarosa con 80 ppm. La zona marcada indica la región en donde se calculó el área, a partir de los 1000 keV, para trabajar en la zona de pulsos de partículas alfa.



Por los motivos comentados, como acción siguiente se continúa el trabajo con muestras de agarosa de mayor concentración de boro, para facilitar la contribución en el espectro en la región de interés.

Paralelamente se realizó una modificación en la configuración de moderación utilizada hasta el momento. Ver figuras 5.4.a.2 y .3.

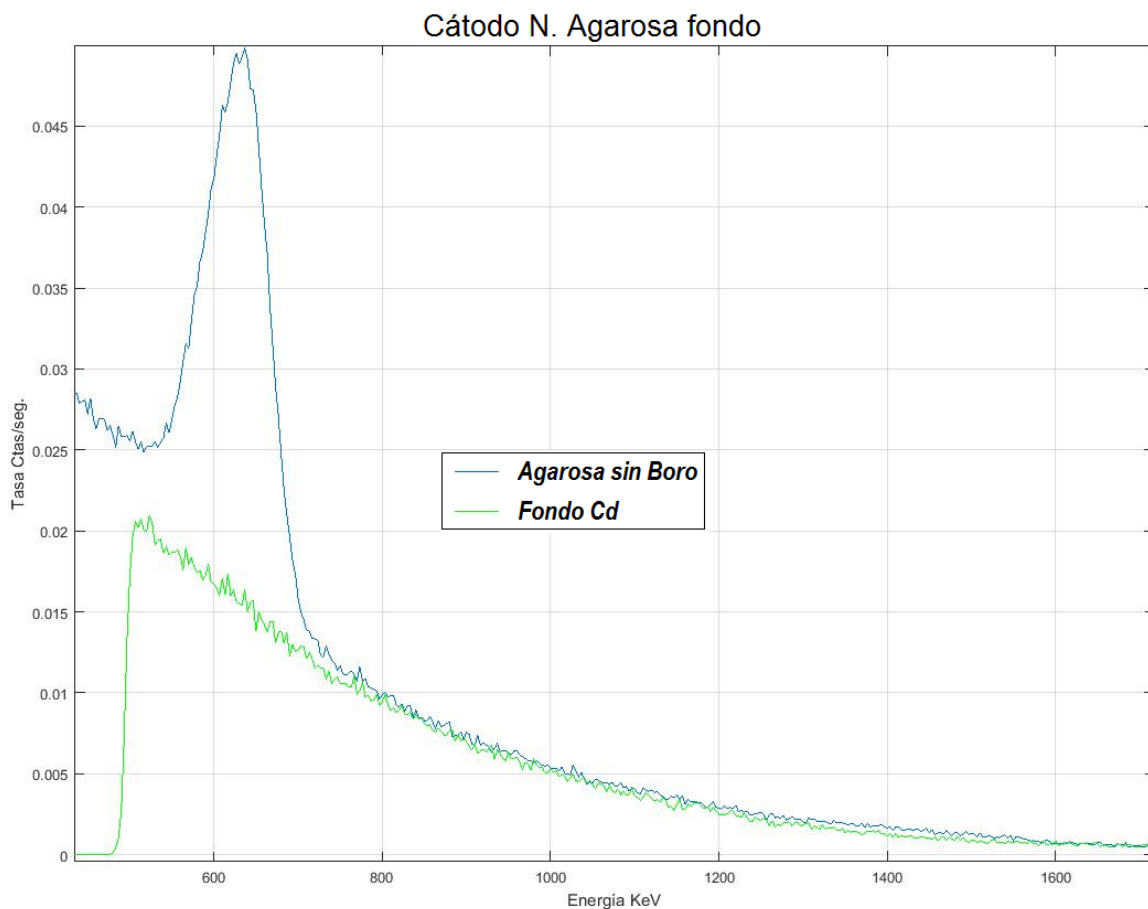


Figura 5.4.a.3. Espectro producido por agarosa sin boro, junto con el espectro apantallado con Cd.

La configuración de la figura 5.4.a.4 fue la más utilizada y la que se pudo modelar mediante mediciones con cámara de fisión y luego las simulaciones por Monte Carlo, como se comentó anteriormente y por tal motivo se utiliza de referencia en el próximo capítulo, pero no fue la última ensayada.

Se realizó una modificación en la geometría de moderación que lograba una distribución del moderador más envolvente, como muestra la figura 5.4.a.5. Esta geometría mejoraba (aumentaba) el flujo de neutrones térmicos, lo que se notaba en el tiempo de medición. Lamentablemente razones de fuerza mayor (la pandemia de los años 2020 hasta 2021 inclusive) impidieron realizar una caracterización como se hizo con la configuración anterior. Sin embargo se puede asumir que los valores de flujo se encuentran entre $700 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ y $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Entonces, con esta configuración se llevaron a cabo todas las mediciones que siguen de aquí en adelante.

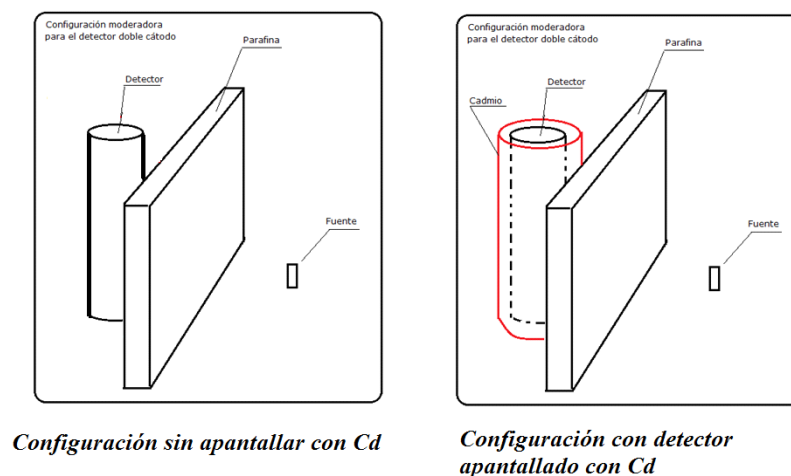


Figura 5.4.a.4. Configuraciones de medición más usada.

Continuando con las acciones tendientes a mejorar las mediciones se efectuaron algunos ajustes en los contactos del detector (esto es una cuestión que deberá mejorarse a futuro) y se comenzó a utilizar los porta-muestras del diseño original, a riesgo de tener problemas con la muestra, como se comentó anteriormente (ver figura 5.4.a.6). La motivación principal fue que el porta-muestra fue diseñado para lograr que la muestra se encuentre completamente en el interior del cátodo (al ras del interior del cátodo), ya que posee un alto relieve (indicado en la figura) para esa función, cosa que no se lograba con el soporte de papel (de esta forma se espera que más partículas puedan llegar al gas, por una cuestión geométrica). El porta-muestra original es del mismo material que los cátodos, aluminio.

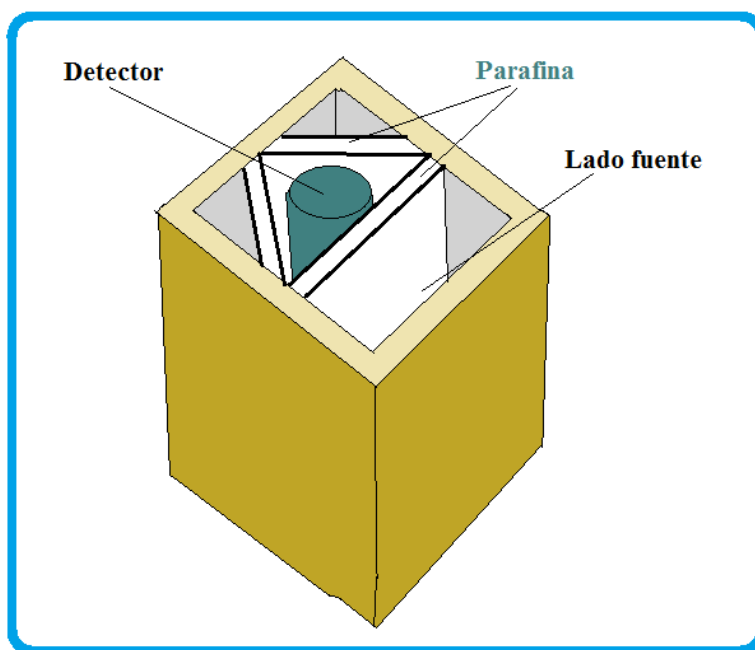


Figura 5.4.a.5. Última configuración de medición utilizada para las mediciones de ^{10}B en agarosa.



En la figura 5.4.a.6 se muestran los dos porta-muestras con la lámina de lexan y sobre este, la agarosa con ^{10}B . La lámina de lexan se adhirió con cinta tipo “*doble cara adhesiva*” para unirla al aluminio. Se observó que trabajar con recortes pequeños de lexan en algunas ocasiones traía la consecuencia de desprendimientos de la agarosa del mismo (como se suponía por lo frágil de la muestra), pero también se lograban muestras que mantenían su estructura fija, y con éstas se comenzó a trabajar.

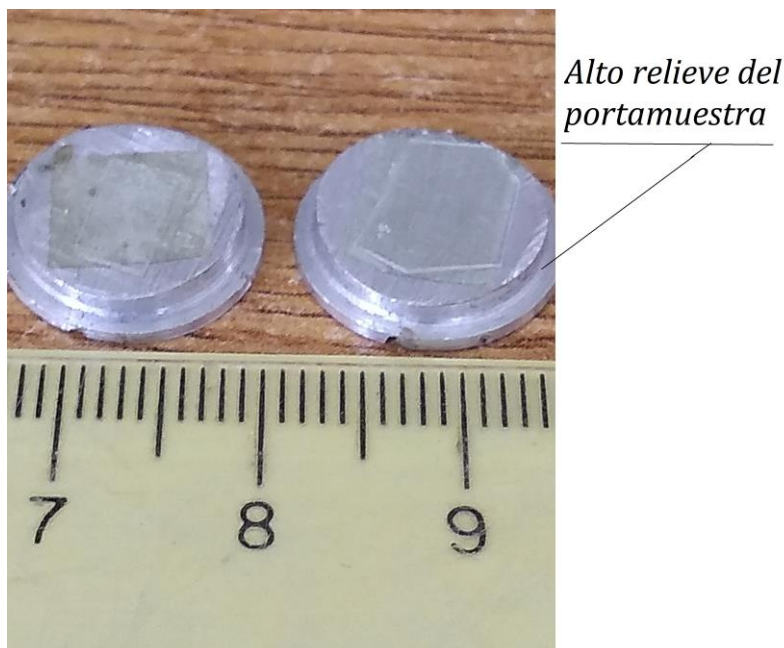


Figura 5.4.a.6 se muestra los dos porta-muestras con la lámina de lexan y sobre éste, la agarosa con ^{10}B





Con todas las acciones comentadas, se realizaron mediciones con 500 ppm de ^{10}B en agarosa en ambos cátodos. La figura 5.4.a.7 muestra el espectro obtenido en el cátodo N, (ídem la figura 5.4.a.8, para el cátodo V). Observar que la región del espectro donde hay sólo aporte de las partículas alfa puede distinguirse con mayor claridad respecto a los gráficos anteriores. La mezcla de gas utilizada es idéntica a las últimas realizadas, donde se redujo el porcentaje de nitrógeno al 6% en la mezcla P10. La tensión aplicada es de -1800V, valor que fue utilizado múltiples veces.

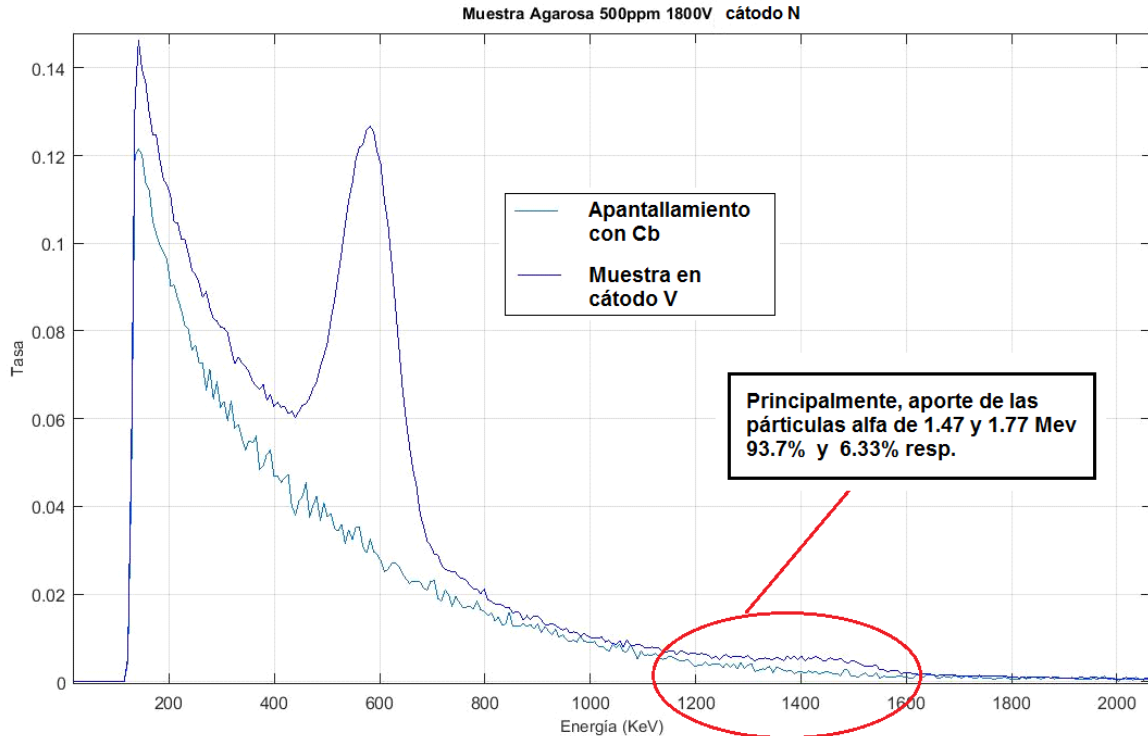


Figura 5.4.a.7. Agarosa 500 ppm. Cátodo N. Observar que se aprecia claramente la región alfa.

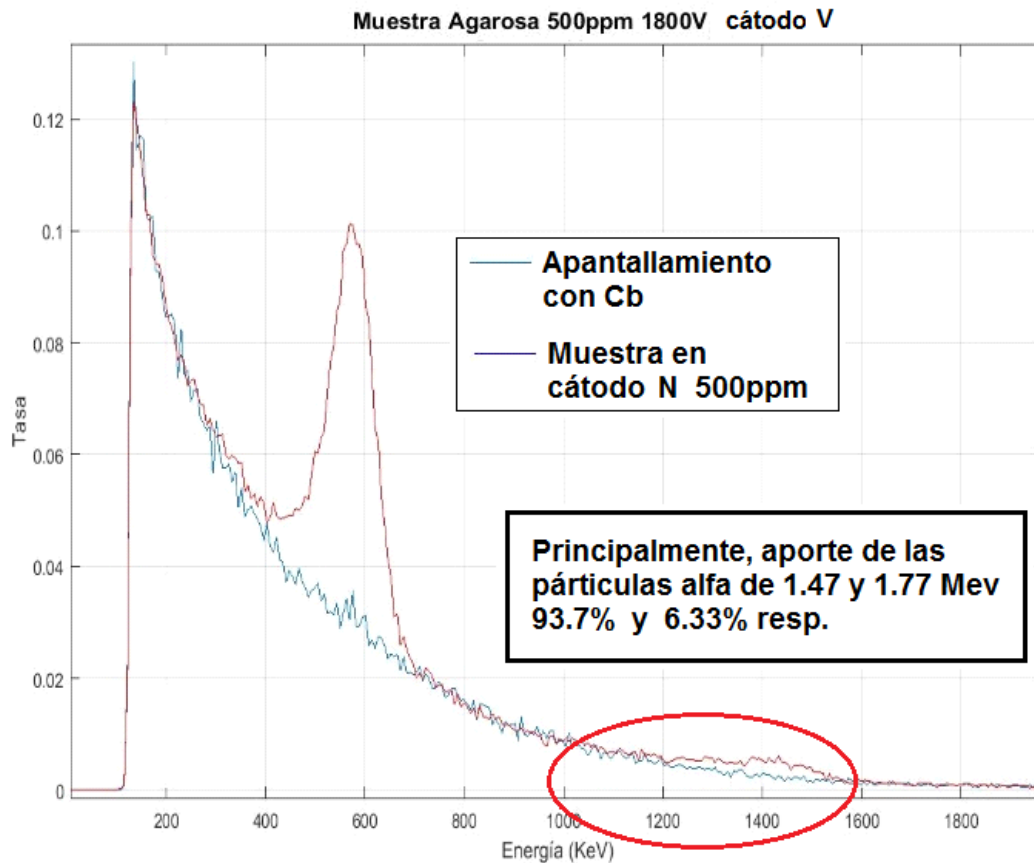


Figura 5.4.a.8. Agarosa 500 ppm. Cátodo V. Observar que se aprecia la región alfa pero no se observa contribuciones del litio. Esto podría estar relacionado con el espesor de la matriz de agarosa. Se observó que un mismo corte de muestra puede tener un espesor irregular. Recordamos que el espesor nominal es de unos 30 micrones.



Apantallando el detector con Cd, se puede ver el espectro de cada cátodo sin la acción de los neutrones térmicos. Observar que se encuentran perfectamente superpuestos, que es lo que se espera obtener. Observar gráfico 5.4.a.9.

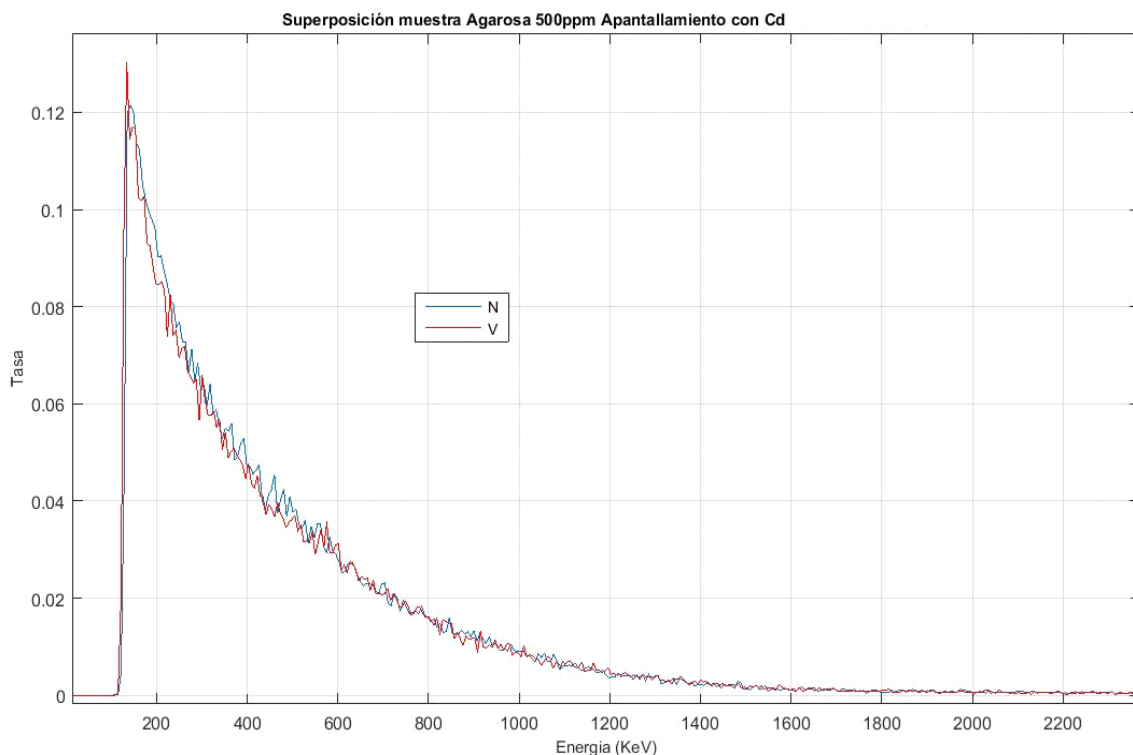


Figura. 5.4.a.9. Comparación de los cátodos apantallados, siempre se hace a modo de control para observar que el apantallamiento sea el mismo para ambos cátodos.

Las siguientes mediciones se hicieron con 200 ppm de ^{10}B en agarosa y también comprobó la detección de reacciones de captura en ^{10}B .

Entonces se planteó el ejercicio siguiente;

Se coloca una muestra de agarosa con 500 ppm de ^{10}B en el cátodo N y se lo deja fijo para las próximas mediciones (como si esta fuese un patrón). En el cátodo V se colocan muestras con 200 ppm de boro (siempre en agarosa). Estas muestras con 200 ppm de ^{10}B tienen diferentes masas, para luego ver si las cuentas que se midieron con el detector en la región de interés, mantienen relación directa con la cantidad de boro en la masa de la muestra. Es de esperar que la muestra tenga una distribución homogénea del ^{10}B en la agarosa, lo que se consultó con el laboratorio proveedor.

En figura 5.4.a.10, se observa una de las mediciones realizadas donde se ve el espectro producido por el cátodo N con las 500 ppm de boro y la figura 5.4.a.11, donde se ve la muestra con 200 ppm. Observar que se definen muy bien la región alfa y región del litio, esta última no se podía observar con otras muestras. Su observación está relacionada con el espesor de la misma (es más delgada).



Cátodo N. 500ppm Boro en agarosa

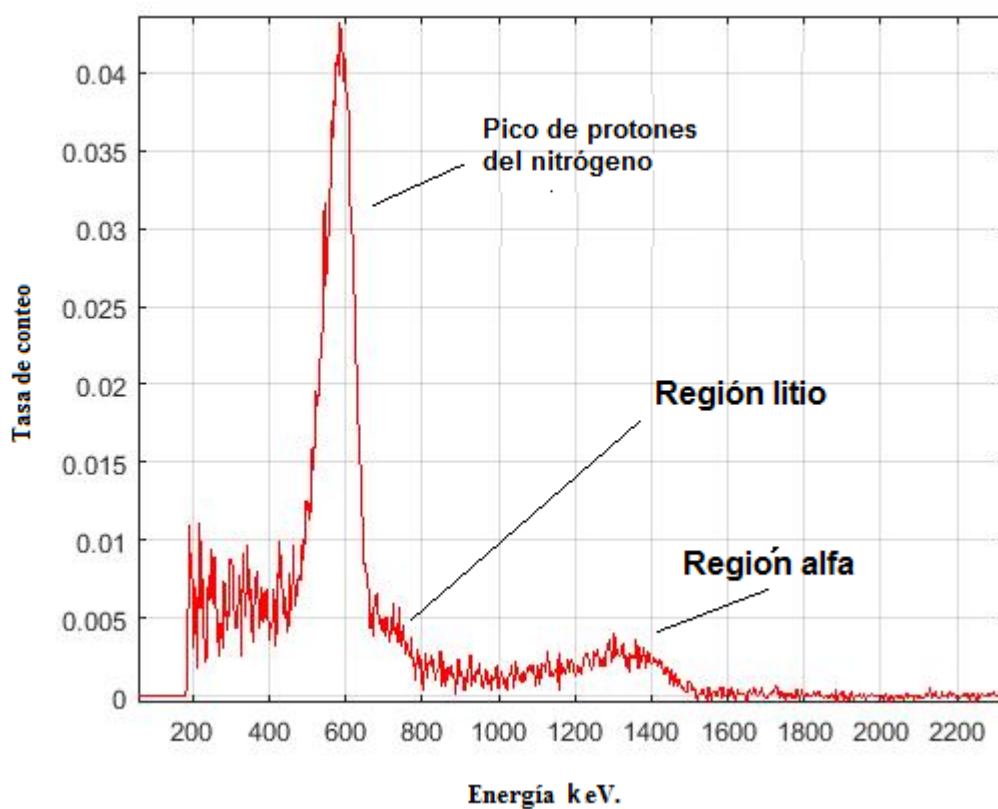


Figura 5.4.a.10. Espectro producido por el cátodo N con las 500 ppm en agarosa. Se mantuvo fija en este cátodo. El peso de esta muestra se determinó en 401 microgramos.



Luego de las mediciones con el contador proporcional, se desprende la lámina de lexan del porta- muestra (figura 5.4.a.12) y se procede a despegar la agarosa con el ^{10}B de la lámina lexan, mediante un instrumento de corte (tipo navaja).

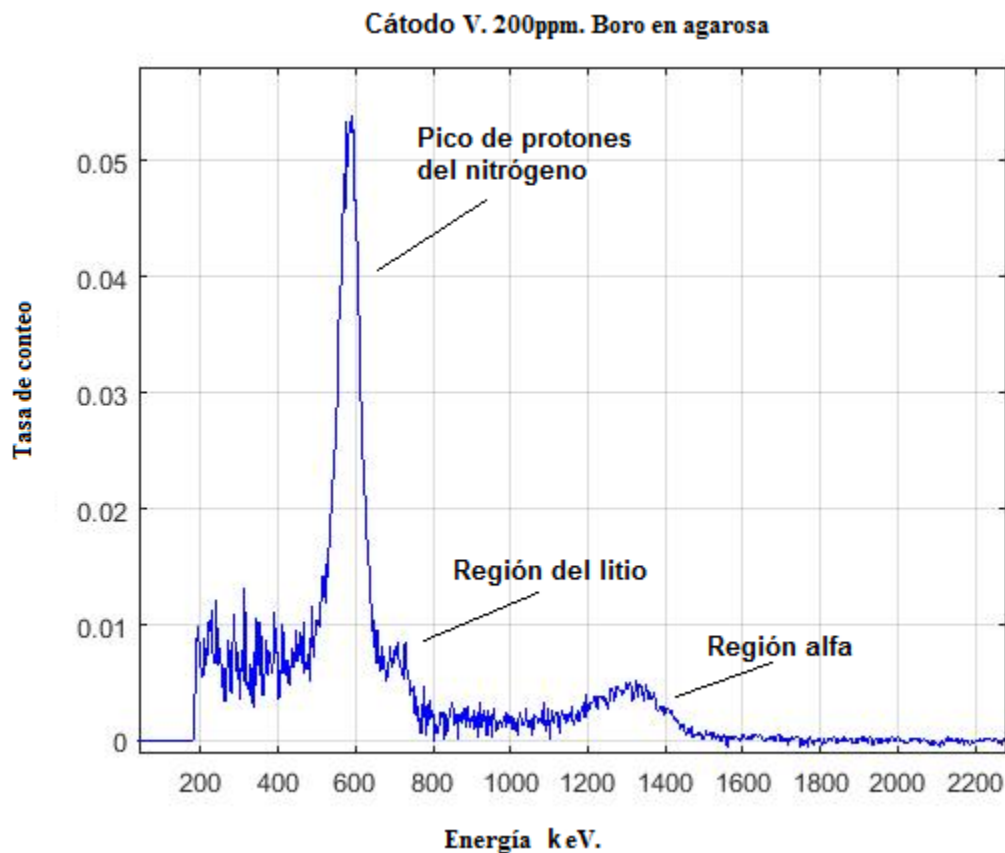


Figura 5.4.a.11. Muestra con 200 ppm de ^{10}B en agarosa, observar que se definen muy bien la región alfa y la región del litio. Esta muestra pesó 298 microgramos.



Luego de desprender la agarosa de la lámina de lexan, se deposita la muestra en un soporte de vidrio (figura 5.4.a.13) y es llevada a la balanza (figura 5.4.a.14). Previamente el soporte de vidrio fue pesado para colocar el cero de referencia. La balanza pesa con una incertidumbre de 1.10^{-6} gramos.



Figura 5.4.a.12. Agarosa con el ^{10}B sobre la lámina lexan observar la forma irregular de las muestras

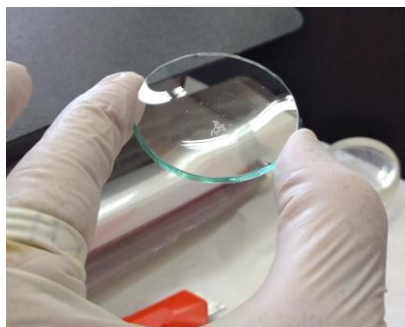


Figura 5.4.a.13. Muestra de agarosa en el soporte vidrio para llevar a pesar (L.M.R).

Se realizaron varias mediciones durante el proceso de optimización, como se comentó y se seleccionó (al azar) un grupo de las últimas para hacer pruebas buscando relacionar la masa de las muestras medidas, con el conteo obtenido (las mismas se conservaban porque los ensayos son no destructivos). En la tabla 5.4.a.1, se aprecia el resultado del conteo obtenido de los espectros de cada cátodo junto con sus asociadas masas de agarosa con ^{10}B que fueron colocadas en el detector y luego pesadas en la balanza. Recordamos que un conjunto de mediciones para cada muestra se realiza en 5 días, (esto es, medir en el cátodo N, en el V y luego lo mismo con el detector apantallado con Cd), para obtener una estadística aceptable en el espectro.



Figura 5.4.a.14. Balanza y una de las muestras de agarosa que fue pesada entre otras (L.M.R).
 Se observan dos pesadas, una de 298 μg y otra de 50 μg .

De los resultados obtenidos indicados en la tabla 5.4.a.1, se puede observar que no se pudieron hallar las relaciones esperadas (mayor masa de muestra, entonces mayor conteo registrado). Por ejemplo, si se observa que para una masa de 50 μg se tiene una tasa de 0.350 cts/s, entonces para una masa de 298 μg (casi 6 veces más) se tiene una tasa de 0.423 cts/seg, (se esperaría cercano a un factor 6 también).

Hasta aquí se trabajó con las muestras de agarosa conteniendo boro en el orden de las ppm. Quedó determinada la posibilidad de detección de ^{10}B en concentraciones entre 80 ppm y 500 ppm en agarosa. Esta misma se produjo en una cantidad de masa muy reducida, las cuales eran inferiores a 500 μg . No es posible ofrecer valores cuantitativos de concentración de ^{10}B con los datos relevados por los motivos comentados anteriormente. En las conclusiones se discutirán posibles causas de este resultado.

Cátodo N	peso ug	tasa neta	Cátodo V	peso ug	tasa neta
500 ppm	401	0.19	200 ppm	298	0.389
500 ppm	401	0.308	200 ppm 2	298	0.423
500 ppm	401	0.168	200 ppm 3	98	0.249
500 ppm	401	0.278	200 ppm	52	0.350
Incertidumbre		< 10%	Incertidumbre		< 10%

Tabla 5.4.a.1 Resultados del conteo en la zona alfa, seleccionado entre 1000 keV y 1800 keV. Observar que se requiere una mínima cantidad de muestra para registrar el conteo. Tasa neta en cts/s.



A pesar de esto, la experiencia ganada fue suficiente como para realizar observaciones que serán necesarias de encarar en una futura etapa del trabajo ya tendiente a lograr la cuantificación, lo que requerirá también algún tratamiento especial en la muestra antes de ser ubicada en el porta-muestra, sumado a cuestiones técnicas que serán desarrolladas en el apartado conclusiones.



Capítulo 6

6.1 Simulaciones Monte Carlo para el desarrollo de una nueva configuración de moderación

Como se comentó en el inicio del capítulo 3, se utilizaron tres diferentes configuraciones de termalización, construyendo las mismas dentro de las posibilidades que podía brindar el laboratorio. Las experiencias indicaron que sería necesario aumentar la cantidad de neutrones térmicos para lograr una mayor tasa de conteo. Esto motivó a trabajar en un posible diseño, mediante técnicas Monte Carlo, para una configuración que cumpla este fin.

En este capítulo se intenta un diseño de una nueva configuración de moderación con las posibilidades que nos ofrece la simulación mediante métodos Monte Carlo. Los aspectos principalmente investigados serán: geometría de la configuración, cantidades de fuentes de neutrones y ubicación de las mismas en el moderador (parafina) para generar una mayor cantidad de neutrones térmicos en la zona detector.

Por otra parte, se incluirá una simulación Monte Carlo para evaluar el equivalente de dosis ambiental, establecido por una configuración de moderación que incluye dos fuentes de neutrones (apéndice G).

Para la simulación del moderador se utilizará el código Monte Carlo MCNP6.2 y los estimadores que proporciona el mismo, identificados como Tally F4 y Tally Mesh Tipo 1. En las referencias (Ref. [22]. [23]).



[24]), puede obtenerse una explicación más completa que la desarrollada aquí. El Tally 4 es un estimador del flujo de partículas registrado en un cuerpo geométrico cerrado (celda). Por otro lado, una Mesh permite obtener un estimador del flujo de partículas presente en una región que puede contener más de una celda, generando una red tridimensional que contiene la información del estimador del flujo de partículas asociado a una ubicación espacial dentro de la *mesh* generada. Según lo que se requiere observar, se opta por uno u otro estimador (tally) y las unidades de ambos son *partícula.cm⁻²*.

La parafina resulta ser el moderador conveniente que se elige para el proyecto de diseño. Para reducir la energía de los neutrones hasta niveles térmicos (por debajo de 0.5 eV) el neutrón debe perder su energía mediante colisiones con alguna estructura poli-atómica. Si la estructura posee hidrógeno, esta pérdida de energía se hace muy eficiente en el sentido de que no se requieren grandes espesores de material moderador (por ejemplo, para neutrones de energía media 5.4 MeV) ya que el neutrón colisiona contra otra masa comparable (el núcleo del átomo de hidrógeno). Por otro lado, la parafina posee la particularidad de mantenerse en estado líquido a cierta temperatura (entre 70 °C y 90 °C), pudiendo utilizarse para crear geometrías a partir de su volcado en un recipiente para luego solidificarse y mantener la geometría final deseada.



6.2 Primer diseño

Para comenzar, se analizará cómo se distribuyen esos neutrones de baja energía (térmicos) en torno a la región donde se ubicará el detector. Para esto, usaremos como referencia la configuración que fue la más utilizada y la cual se caracterizó mediante simulación Monte Carlo (ver Apéndice E). Usando resultados obtenidos sobre esta configuración como referencia, se estimará (al menos en orden de magnitud) en cuánto mejorará con los nuevos diseños propuestos, respecto al flujo de neutrones térmicos y su distribución en torno al detector.

La configuración de moderación utilizada de referencia se muestra en la figura 6.2.1. Observar que consta de dos placas de parafina de espesor estimado en 3 cm cada una. Estas son las que separan al detector de la fuente de neutrones de 5 Ci de $^{241}\text{AmBe}$. Como se indicó en capítulos anteriores, esta configuración aportaba un flujo de neutrones térmicos aproximado de $700 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ en la región del detector, lo cual fue medido mediante cámara de fisión, como se comenta en el apéndice E.

En todas las simulaciones aquí realizadas, a las fuentes de neutrones se las toma como puntuales, pero se observó en la literatura (por ejemplo Ref. [18]), que estas pueden tener 0.5 cm de diámetro y una longitud de entre 1 cm y 2 cm. Las mismas se encuentran encapsuladas en aleaciones de metal que forman un recubrimiento de hasta 4 cm de largo con un diámetro de 1 cm (en gral), pero estas aleaciones no siempre figuran especificadas y por tal motivo, se optó aquí de no incluirlas en la simulación.



Si se aplica el estimador de MCNP "mesh tipo 1", haciendo un corte de energía para valores superiores a 0.5 eV, (o sea, se pide que grafique la distribución espacial de neutrones cuyas energías se encuentran por debajo de 0.5 eV, luego de su historia transcurrida), entonces se podrá ver cómo se distribuyen los neutrones de interés, para nuestro moderador.

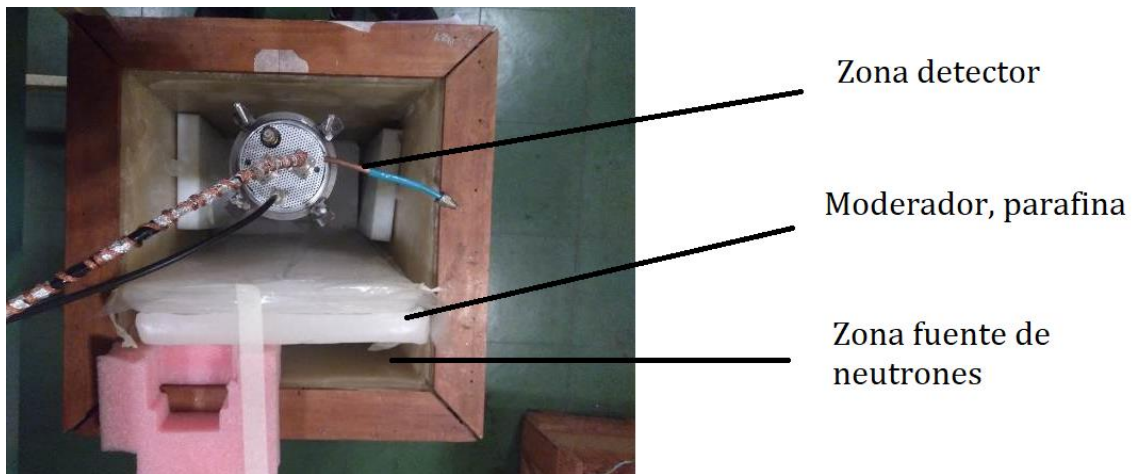


Figura 6.2.1. Configuración de moderación de referencia (L.I.D). Vista superior.

Este resultado se puede ver en la figura 6.2.2. La escala de colores, se puede asociar a la mayor o menor (rojo o azul) cantidad de neutrones con energías menores a 0.5 eV que se encuentran en la región. Observar que la distribución indica mayor cantidad de neutrones de interés en la región donde está la fuente respecto de donde está el detector.

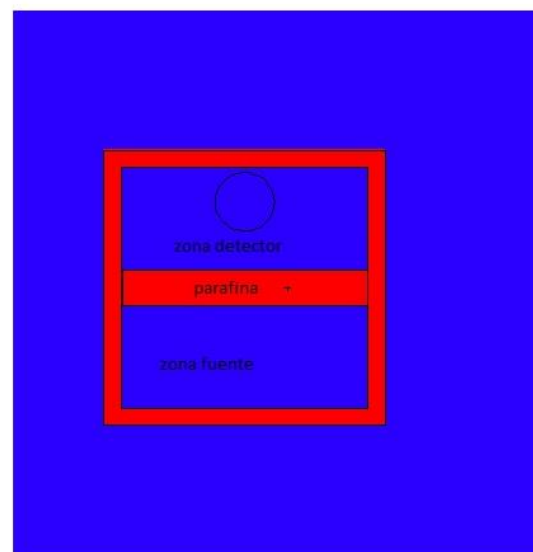
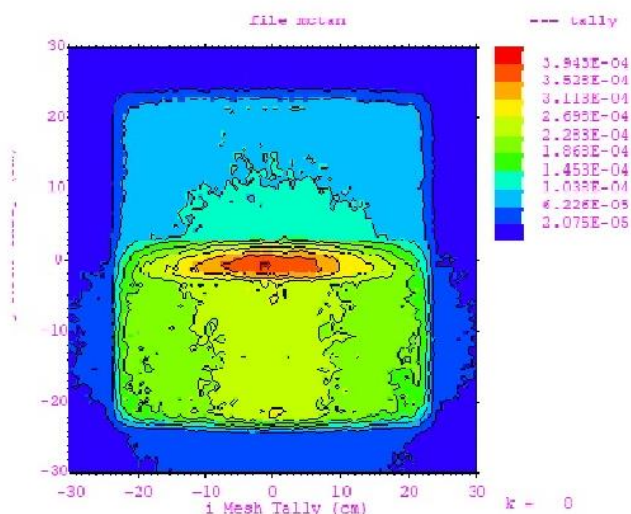


Figura 6.2.2. Estimación de la distribución de neutrones de baja energía (<0.5 eV.) entorno al detector (lado izquierdo), con la configuración de mediciones. Vista superior. El lado derecho, muestra la misma configuración, pero solo la geometría. Sin la aplicación del Tally.

Claramente, se necesita lograr que la mayoría de los neutrones de baja energía lleguen al detector. Entonces se debe intentar una geometría en la cual la parafina rodee al detector, pudiendo también aumentarse el volumen de parafina, para que ocurran más colisiones, ¿pero donde debería estar la fuente? ¿Cuál es su mejor posición dentro del moderador de manera de maximizar la cantidad de neutrones térmicos en la región del detector?

Ante los interrogantes que se presentaban, se propuso hacer simulaciones MC para encontrar la mejor ubicación de la fuente dentro del moderador y a su vez, entender qué fuente sería más conveniente, $^{241}\text{AmBe}$ o ^{252}Cf , ya que sus espectros de emisión de neutrones son diferentes y abarcan rangos de energías distintos, figura 6.2.2.a.

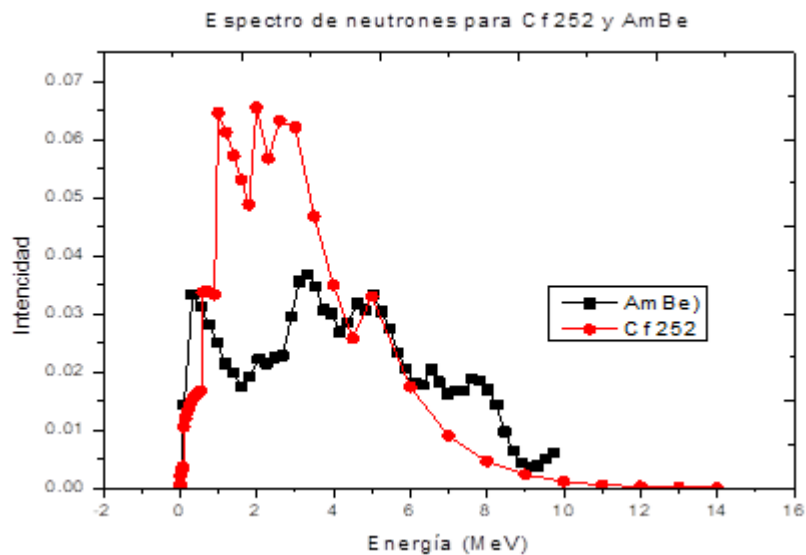


Figura 6.2.2.a. Superposición de los espectros de las fuentes de neutrones AmBe y ^{252}Cf . Ref[17].



Para comenzar se intentó en la simulación un moderador (parafina) de área rectangular, largo 120 cm, ancho 60 cm y altura 66 cm, donde la zona para ubicar el detector tiene 8 cm de diámetro y 66 cm de alto y se encuentra en el centro geométrico, figura 6.2.3.

La parafina se rodea con concreto a modo de blindaje, para disminuir el equivalente de dosis ambiental (H^*10) en la zona de trabajo (Esto se estudia en el apéndice G).

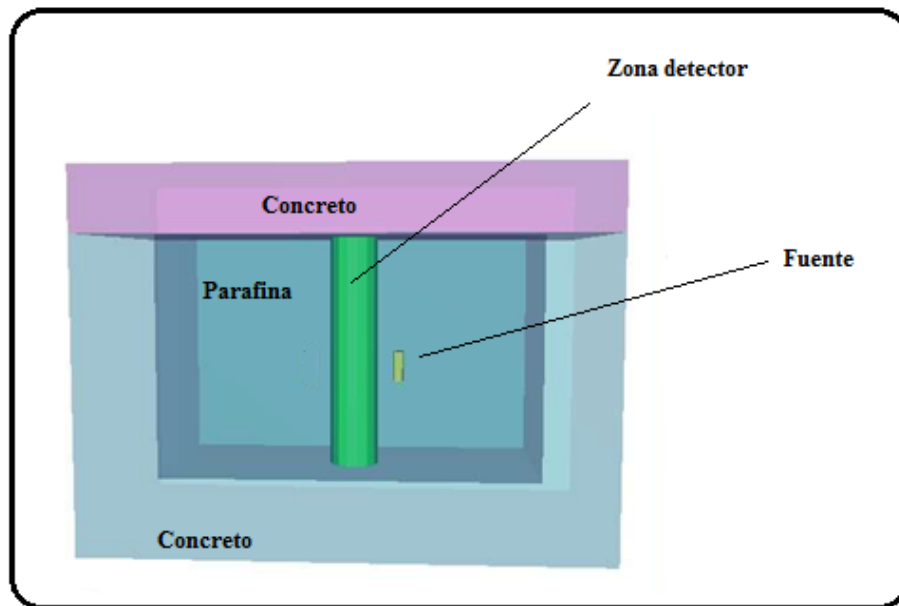


Figura 6.2.3. Primer modelo computacional con el que se elaboraron conclusiones sobre las características del sistema moderador.



Lo primero fue buscar la posición que maximizaba el flujo en la zona detector, para lo cual se simuló una fuente puntual dentro del cuerpo de parafina y se realizaron simulaciones con el estimador de flujo en la celda detector para diferentes posiciones con alejamiento radial, figura 6.2.4. Este estimador se lo selecciona de manera que devuelva el flujo de neutrones como función de su energía al ingreso en la celda, de forma de que se pueda elegir las energías de interés, por ejemplo, inferiores a 0.3 eV. Aquí se utilizó un corte de energía inferior al que se utiliza en otras simulaciones (0.5 eV), esto fue debido a que se realizarían varias simulaciones para estos modelos (alrededor de 20), entonces, con la reducción en el límite superior de energía simulada, se buscaba disminuir el tiempo de la simulación (ya que el código Monte Carlo no debería continuar historias de partículas con energía superior a 0.3 eV, esto no afecta las conclusiones que se pretenden extraer).

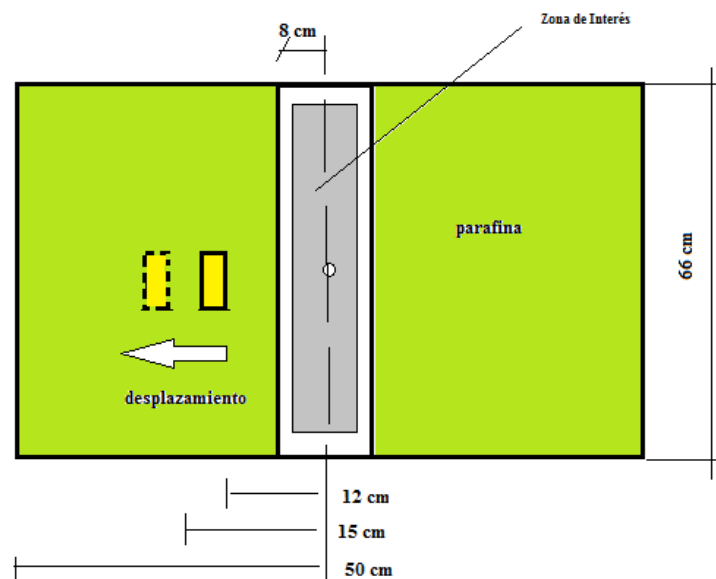


Figura 6.2.4. Esquema de la variación de la posición de la fuente de forma radial para las simulaciones propuestas



Para cada posición se tendrá una curva de flujo (estimador) como función de la energía.

Calculando el área de la misma se obtiene un estimado de cual posición entregaría más neutrones térmicos (ver figura 6.2.5), allí se muestran algunas de las curvas obtenidas.

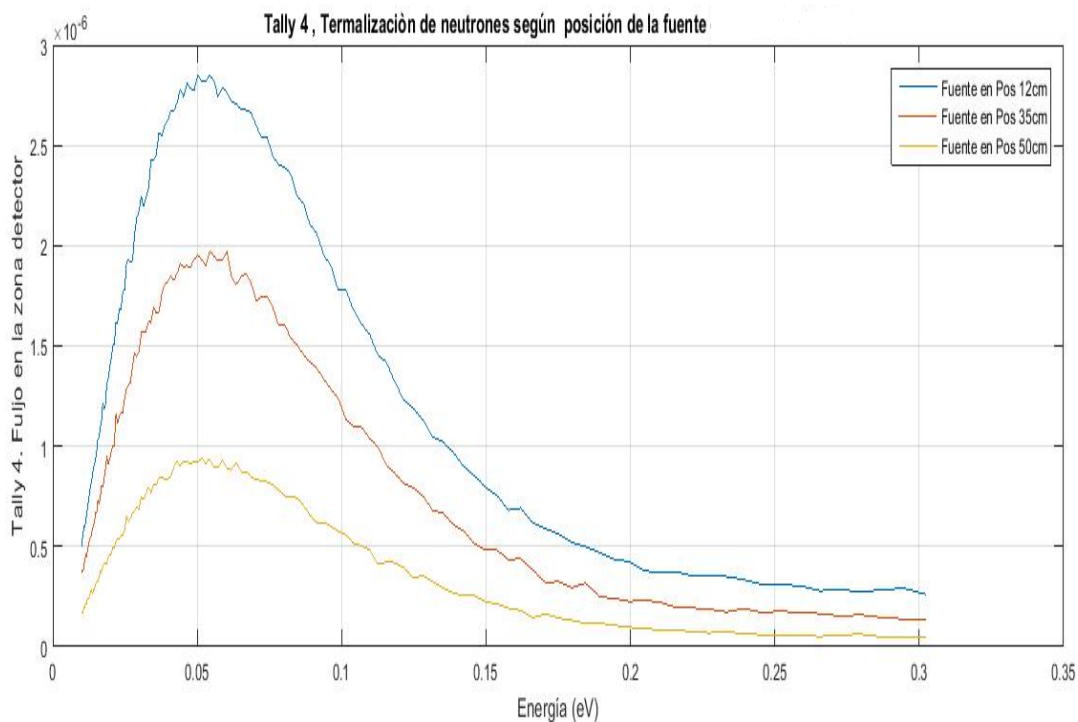


Figura 6.2.5. Curvas de estimador de flujo en la celda detector como función de la distancia radial de la fuente respecto de la zona detector.



Para cada curva que corresponde a una posición de la fuente, se calculó el área bajo la curva (estimador de la cantidad de neutrones de energía menor a 0.3 eV) y se graficó como función de la posición, figura 6.2.6. Observar que se aprecian dos curvas de puntos, la superior corresponde a la simulación de fuente puntual con el espectro del ^{252}Cf . La curva inferior corresponde a similar situación con el espectro de la fuente de $^{241}\text{AmBe}$. El espectro del ^{252}Cf resultó entregar más neutrones termalizados en la zona de interés ante la misma geometría del moderador y posición de la fuente. El punto de color rojo que está fuera de ambas curvas en la posición 15 cm, representa la misma situación comentada pero para la configuración experimental (recordar que aportaba un flujo del orden de $7 \cdot 10^2 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$), figura 6.2.2.

La información buscada es resumida en la tabla 6.2.1, podemos ver que un moderador de geometría tal que encierra al detector, puede aumentar 2.8 veces la cantidad de neutrones térmicos si se usa una fuente de $^{241}\text{AmBe}$ y 4.2 veces más si se usa ^{252}Cf . Estos valores son hallados utilizando como referencia la configuración utilizada para las mediciones (figura 6.2.2 y apéndice E).



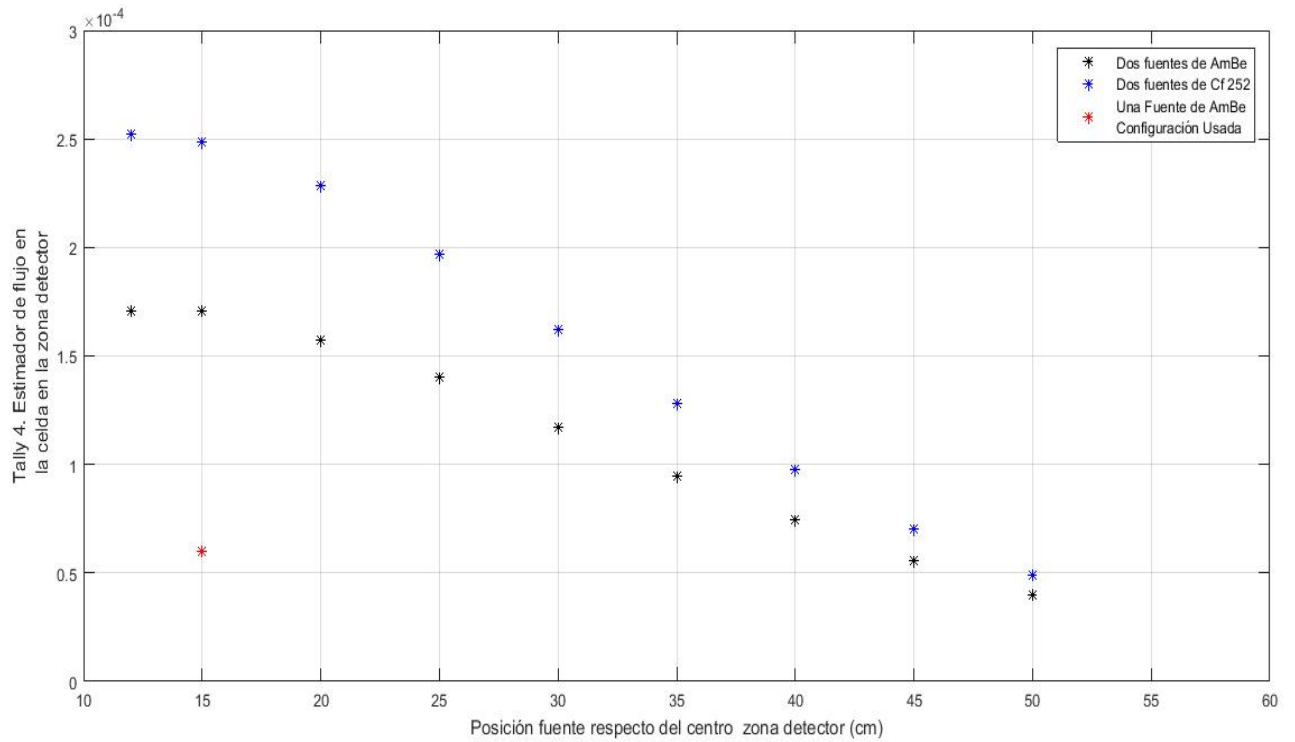


Figura 6.2.6. Valores obtenidos con las curvas proporcionadas por el estimador de flujo en la celda detector.

Finalmente se comenta que no se continuaron las simulaciones con este diseño, porque se avanzó con un diseño de geometría cilíndrica que se desarrolla en el proximo apartado, pero el mismo aportó información relevante para los futuros diseños.

Configuración	tally 4	Cantidad de Fuentes	Nuevo mod / Original	Fuente optima, Cf 252 Un nuevo moderador, podría aportar 4 veces mas neutrones térmicos que la configuración actual Actualmente, un conjunto de mediciones lleva entre 4 y 5 días. Con el nuevo moderador, se podría reducir el trabajo a un día o dos, como máximo.
Fuente de AmBe	0,000171	1	2,84	
Fuente de Cf252	0,000252	1	4,20	
Original F. AmBe	0,000060	1		
			Pos 12cm	

Tabla 6.2.1. Resultados de la comparación entre las posiciones de la fuente y radioisótopos utilizados. La posición que mostró mayor cantidad de neutrones térmicos en la zona detector fue aquella en la cual se ubica la fuente a 12 cm del centro y a una altura de 42 cm. Unidades del tally 4, (partícula. cm^{-2}).

6.3 Segundo diseño

Con los resultados conocidos de las simulaciones anteriores, se trabajó en la configuración nueva, con una geometría cilíndrica con un aumento en la cantidad de moderador. Este se diseñó con blindaje (que se comenta seguidamente), de manera que en la misma facilidad de termalización se reduzca el equivalente de dosis ambiental (H^*10) al momento de estar las fuentes en operación.

Además se le agrega un depósito bajo tierra en un bunker de concreto el cual almacena las fuentes cuando no están operando, reduciendo aún más el equivalente de dosis ambiental. Estas estimaciones están realizadas en el apéndice G. En las simulaciones (cálculo de dosis) se usó el código Monte Carlo PHITS.

Si bien en las simulaciones anteriores se observó que el ^{252}Cf provee más neutrones, en estas simulaciones se trabaja con el espectro del $^{241}\text{AmBe}$ ya que la institución dispone de estas fuentes.

El moderador está diseñado con parafina la cual se encuentra rodeada externamente por una capa de Cd de 0.5 cm (posee una alta sección de captura de neutrones térmicos) para capturar los neutrones térmicos que ya se han apartado mucho de la zona detector, luego le sigue una capa de 5 cm de plomo, con el objetivo de atenuar los gammas producto de la interacción de los neutrones con la parafina y finalmente una capa de concreto de espesor 45 cm. Las dimensiones fueron fijadas mediante los resultados de las simulaciones del apéndice G, (Dosis

H*10) donde se simularon dos fuentes de neutrones con una actividad de 5 Ci.

Todo este blindaje se encuentra en lo que se define como posición de operación de las fuentes (ver figura 6.3.1). Para las fuentes en la posición de no operación, se pudo observar que, ubicadas las fuentes en un contenedor de concreto a 120 cm por debajo de la superficie del laboratorio, se tiene dosis (equivalente de dosis ambiental) muy bajas (apéndice G).

El sistema debe contemplar la utilización de un dispositivo mecánico para el movimiento de fuentes. El sistema mecánico no está diseñado aquí.

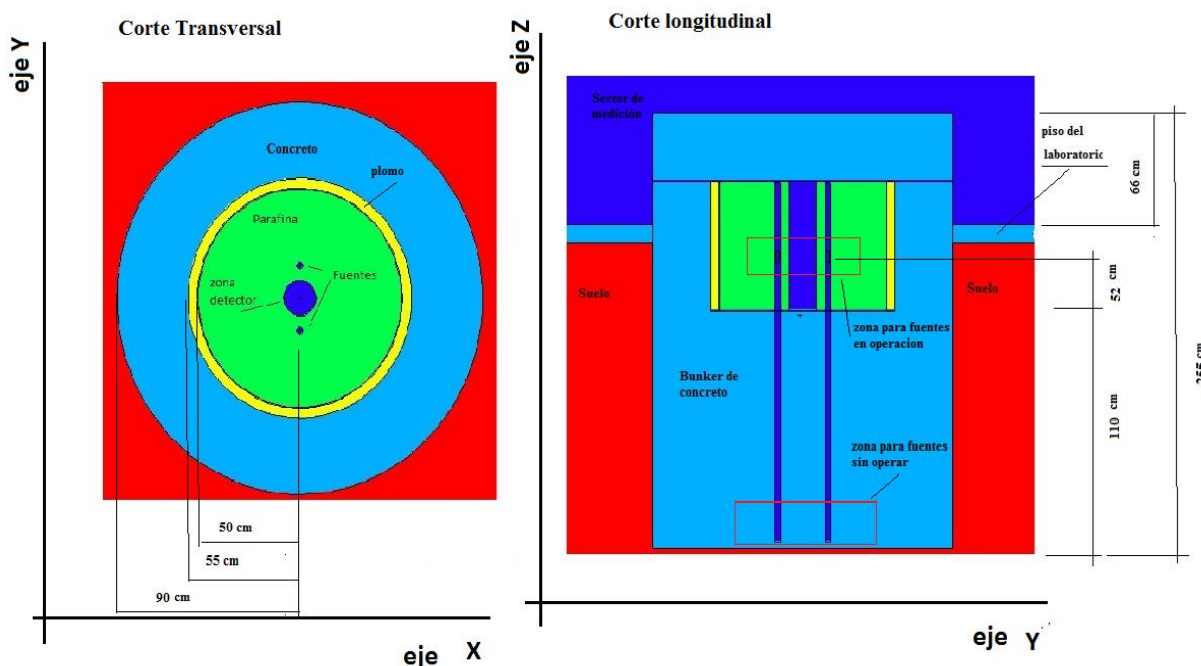


Figura 6.3.1. Segundo diseño de moderador, con bunker para colocar las Fuentes mientras no están operando. Corte transversal que pasa por las fuentes de radiación (derecha) y corte longitudinal (izquierda).

En las siguientes simulaciones se puede observar cómo se distribuyen los neutrones de energías menores a 0.5 eV, con un sistema de fuentes que va desde una a cuatro fuentes y simultáneamente, para el nuevo diseño, serán comparados en cuánto al incremento del número de neutrones térmicos y epitérmicos.

Al igual que antes, se utilizarán los estimadores de MCNP6 Tally F4 y Tally Mesh tipo 1. Con el primero se puede estimar el flujo en una celda (volumen detector) y con el segundo, se obtiene la distribución espacial de los mismos.

Para esto, se selecciona una altura de corte sobre el eje Z de la figura 6.3.1 (se elige la misma altura para todas las configuraciones, para luego comparar entre sí). Se tomará un corte transversal al eje Z cercano a la distribución de fuentes, donde se espera que el flujo alcance su máximo valor. En este corte se muestra una distribución de flujo de neutrones en el plano XY.

La selección del corte en altura se hace a través del código de programación. No se explica aquí porque excede los alcances de este capítulo, pero puede verse en Ref. [22]. [23]. [24].

Los valores que se calcularon del estimador Tally F4 de cada distribución se comparan con su equivalente correspondiente a la configuración experimental, con la cual, se puede asociar un valor obtenido con el estimador Tally F4 y el flujo medido con la cámara de fisión. Esto permite estimar cuántos neutrones por cm^2 podemos tener para cada configuración. Para el tally F4 usaremos un corte de energía de 0.5 eV, o sea, más próximo a la energía de los epitérmicos.

En la figura 6.3.2 se muestra una vista en corte, donde se observa la distribución neutrones térmicos ($E < 0.5$ eV.) producidos por una fuente. Observar cómo se distribuyen los neutrones en torno al espacio donde se ubica al detector (comparar con la figura 6.2.2).

Observar la escala de colores, (es la misma para todos los casos presentados) la cual es un indicador de la cantidad de neutrones con energías menores a 0.5 eV. Claramente se obtienen más neutrones térmicos en la región de interés debido a la acción del moderador.

Con esta configuración que cuenta con una única fuente, la estimación teórica indica que podría tener 4.6 veces más neutrones térmicos que lo aportado por la configuración de referencia (la configuración experimental).

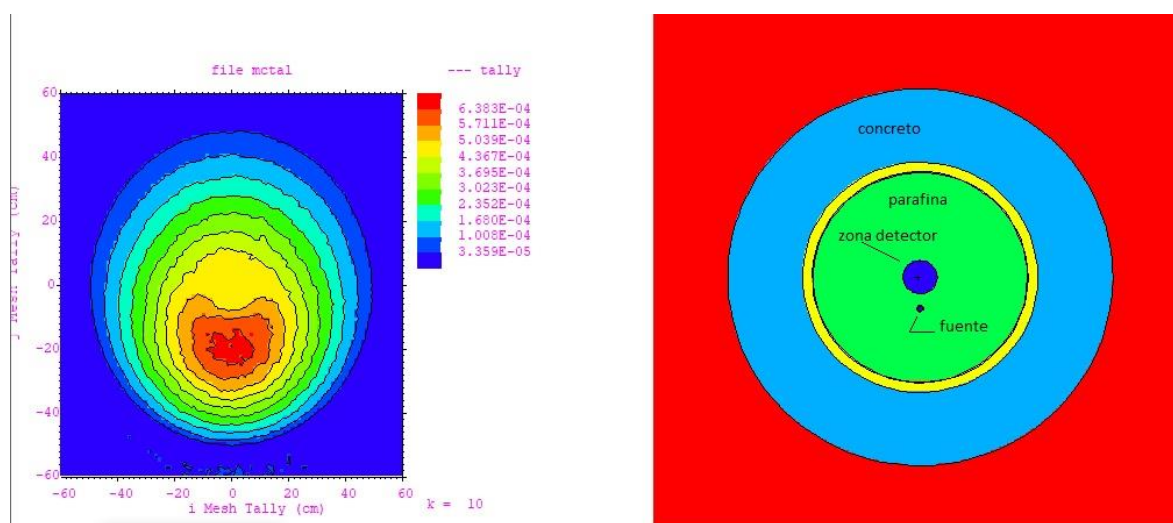


Figura 6.3.2. Vista superior, moderador con una fuente de $^{241}\text{AmBe}$. El lado izquierdo muestra la distribución de los neutrones. El lado derecho, muestra la misma configuración, pero solo la geometría. Sin la aplicación del Tally.

En la figura 6.3.3 se aprecia una configuración que cuenta con 2 fuentes de $^{241}\text{AmBe}$. Observar que la distribución es relativamente homogénea respecto del centro donde debe ir ubicado el detector.

La configuración termina ofreciendo 10 veces más neutrones térmicos que la configuración experimental.

Con la configuración de doble fuente se hicieron las estimaciones del equivalente de dosis ambiental, como se comentó anteriormente.

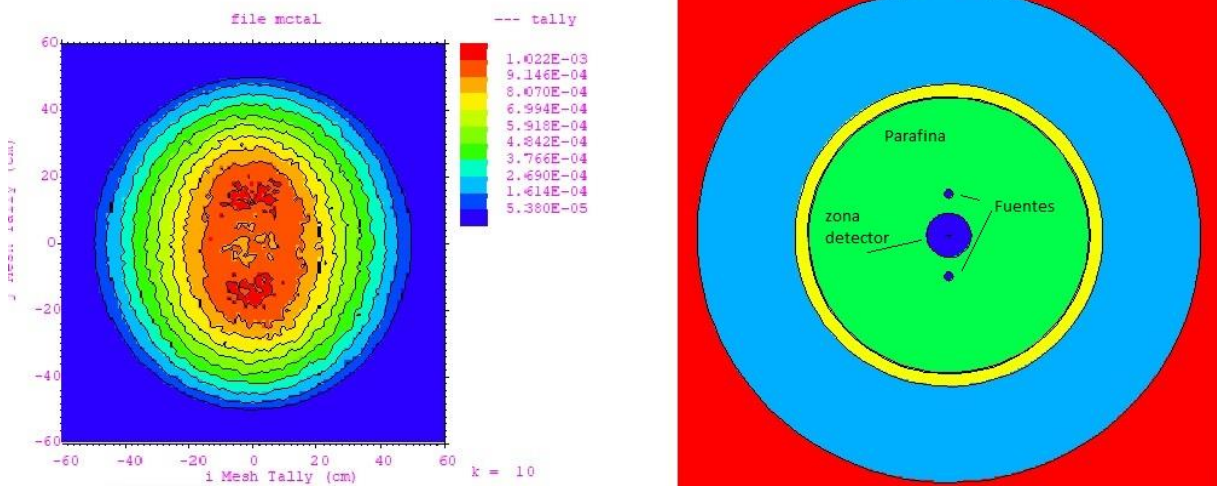


Figura 6.3.3. Moderador con dos fuentes de $^{241}\text{AmBe}$. Se observa flujo de neutrones con energía menor a 0.5 eV.

La figura 6.3.4 muestra la diferencia entre aplicar o no el método de corte de energía ($E < 0.5$ eV). Se puede observar el efecto de aumento en el valor del estimador, lo que se asocia con la cantidad de neutrones presentes en la región observada.

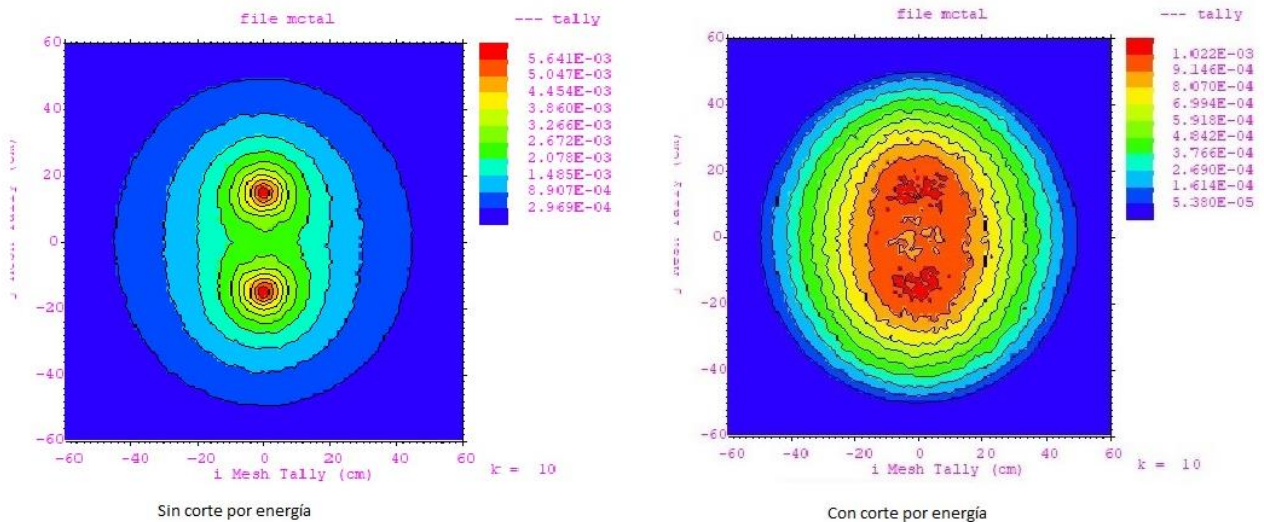


Figura 6.3.4. Moderador con dos fuentes de $^{241}\text{AmBe}$. Se observa la comparación entre simulaciones con flujo de neutrones con todas las energías posibles (izquierda) y seleccionando para graficar, solo las partículas (neutrones) con energías menores a 0.5 eV.

La figura 6.3.5 muestra tres fuentes con ubicación a 120° una de la otra y rodeando al detector, lo que mejora notablemente la distribución de los neutrones de baja energía. La aplicación de tally F4 en la celda detector muestra que la distribución permite multiplicar por 15 el flujo respecto de la configuración original.

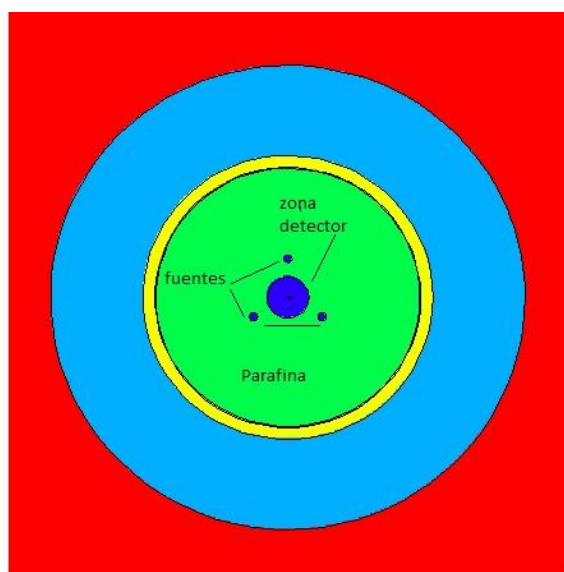
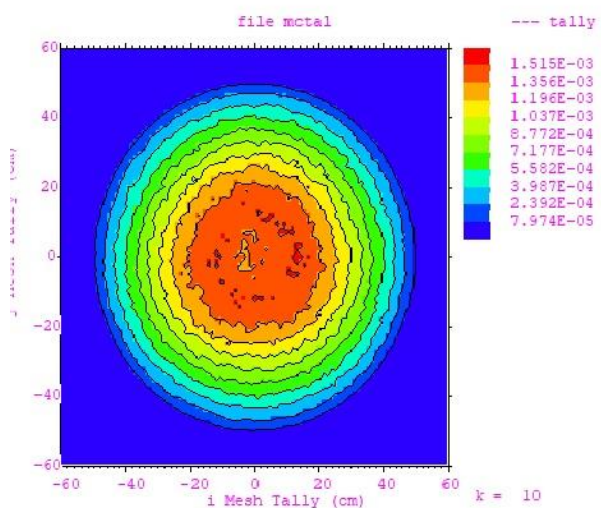


Figura 6.3.5. Moderador con tres fuentes ubicadas simétricamente respecto del centro.

La última configuración con 4 fuentes de $^{241}\text{AmBe}$ (figura 6.3.6), como era de esperar, produce la mayor población de neutrones de baja energía en la zona detector. Simultáneamente requeriría un bunker de mayor dimensión para reducir la dosis ocupacional.

Se podría haber intentado un modelo inverso, en el cual las fuentes estén todo el tiempo en un bunker bajo tierra donde cuenten con el moderador allí mismo y el que suba y baje sea el detector. Esto requeriría aumentar la longitud de los cables de señal y alimentación. En general se procura disminuir la longitud de los cables para reducir posibles efectos que terminen atenuando la señal. Aquí se optó por este modelo, más parecido a la configuración de medición utilizada.

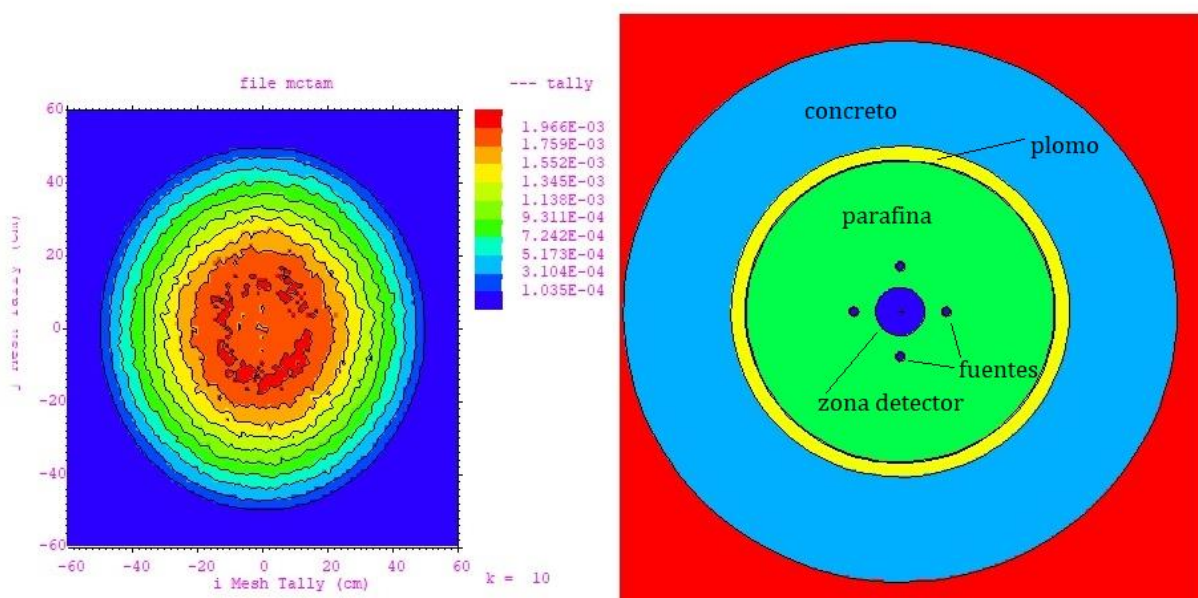


Figura 6.3.6. Moderador con 4 fuentes ubicadas simétricamente respecto del centro. El Tally F4 resulta tener un valor que equivale a multiplicar por 20 al flujo de neutrones térmicos de la configuración original.

La tabla 6.3 resume los resultados obtenidos con el estimador tally 4, para las diferentes configuraciones simuladas que contenían desde una hasta 4 fuentes de neutrones. En la fila remarcada (en azul) se asocia la medición conseguida con la cámara de fisión en la configuración de moderación, con el estimador (tally 4) obtenido en la misma configuración simulada (figura 6.2.2).

Con los valores de la primera fila, se puede derivar el flujo de partículas esperado para las demás configuraciones, con la ayuda del estimador correspondiente.

Tabla de comparación			
Configuración	Tally 4	Relación	$n.cm^{-2}s^{-1}$
Conf. original de med.	7.35E-05	1	6.80E+02
Conf. con 1 fuente	3.72E-04	5.1	3.40E+03
Conf. con 2 fuentes	7.40E-04	10.1	6.80E+03
Conf. con 3 fuentes	1.10E-03	15	1.00E+04
Conf. con 4 fuentes	1.46E-03	19.9	1.35E+04
Tally F4 aplicado en la celda detector con corte de energía para neutrones con energías mayores a 0.5 eV			

Tabla 6.3. Estimación de la cantidad de neutrones térmicos que se podría obtener con los modelos de moderadores generados. Se configura el Tally 4 de manera que no siga historias de partículas que superan los 0.5 eV. Corte de energía en 0.5 eV, en la celda detector. La comparación con la configuración original de medición se corresponde para fuentes de 5 Ci.



La cantidad de neutrones térmicos para cada configuración, resulta ser una estimación de lo que se puede esperar, difícil es asociar una incertidumbre a este resultado, pero se espera que el orden sea razonablemente cercano a los valores encontrados.

Finalmente se comenta que, como valor de referencia experimental para comparar con las simulaciones hechas, se tiene la primera configuración experimental con la que se trabajó, de geometría envolvente (respecto del detector, figura 3.2.1, capítulo 3).

Como se comentó, el Laboratorio L.I.D. informa que su geometría proporciona en la zona del detector un flujo térmico de $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. En el caso de la geometría simulada (figura 6.3.2) se tiene un flujo de $3.7 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, o sea, del mismo orden.

Citas en este capítulo; Ref. [17]. [19]. [22]. [23]. [24]



Conclusiones

En la introducción de este trabajo se expusieron las motivaciones sobre la importancia que reviste la búsqueda de nuevos métodos de cuantificación de ^{10}B para la técnica BNCT.

Este contexto motivó el desarrollo de un contador proporcional, que posee características particulares no observadas en dispositivos de este tipo, asociadas principalmente a la posibilidad de medir muestra y patrón simultáneamente con su sistema de doble cátodo de geometría cilíndrica y con las muestras colocadas en su interior, aumentando así la eficiencia geométrica del sistema.

Hasta nuestro mejor conocimiento y en el contexto de BNCT, no se conoce un sistema, comercial o no, del tipo contador proporcional que pueda cumplir los requerimientos para este fin. Por lo tanto, se diseñó y fabricó este equipo para cumplir dichos requerimientos.

Se logró comprobar que se podía fabricar íntegramente en los talleres de la institución, siendo esto importante porque una vez alcanzado el diseño final puede ser replicado, fabricándose los equipos que se necesiten.

Estas características motivaron un pedido de patente al Departamento de Propiedad Intelectual de CNEA, el cual luego de la evaluación correspondiente, determinó que era procedente la solicitud, con lo cual dicho sector procedió a elaborar la memoria descriptiva del equipo para luego generar un expediente a este efecto, el cual se encuentra en trámite hasta la fecha.



El detector fue ensayado para caracterizarlo en diferentes aspectos que incluyeron pruebas mecánicas (o sea de presión máxima soportable) y de tensión máxima soportable en función de la presión. Además, se estudió el equipo frente a la mezcla de gases $P_{10} + {}^{14}\text{N}$. Este mostró ser versátil para la observación de partículas y fotones de baja energía, por el amplio rango de presión y tensión que soporta. Se destaca que este trabajo de caracterización no suele ser realizado por el usuario cuando se compra un detector a una empresa. Esta tarea es llevada a cabo por el mismo fabricante, quien luego informa sus características en la correspondiente hoja de datos.

Respecto a la utilización del equipo en BNCT, se ha podido detectar ${}^{10}\text{B}$ en agarosa en un nivel de 80 ppm (figura 5.4.a.2) en masas inferiores a 500 μg . Esto se realizó con la configuración de moderación que disponía el laboratorio (figura 3.2.1) que aportaba un flujo de neutrones térmicos que se encontraba entre $700 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ y $4 \cdot 10^3 \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

No se pudo cuantificar el ${}^{10}\text{B}$, porque no se obtuvieron las correlaciones esperadas entre las masas de las muestras usadas y las cuentas registradas (tabla 5.4.a.1), pero sí se observa cuando se analiza el pico de protones (figura 5.3.b.4).

El hecho que se observe correlación entre los datos provenientes del pico de protones (este protón emerge del gas) y no en las muestras de agarosa, hace pensar que el problema estaría relacionado a la muestra de agarosa con ${}^{10}\text{B}$.

Puede ocurrir que, entre ensayos, la muestra experimente cambios (por ejemplo, pérdida de agua por deshidratación). Recordar que en la



experiencia propuesta (figura 5.3.b.4) se practicó vacío cada vez que se hacía un ensayo, (la preparación de la mezcla $P10 + {}^{14}\text{N}$ es un factor crítico de controlar). Si se asume que las muestras podrían tener diferente espesor (en micrones), éstas sufrirán un proceso más acelerado o retardado en la deshidratación, haciendo imposible comparar el resultado obtenido con un cátodo respecto del otro.

Se propone realizar, en futuros ensayos, una preparación de la muestra que involucre un proceso de deshidratación y homogenización de su espesor (por compresión mecánica, por ejemplo), todo esto previo a la introducción de las muestras en el detector.

Para la cuantificación de ${}^{10}\text{B}$, (cuando se solucionen cuestiones como las comentadas antes) se propuso un método de cálculo (apartado 5.3 a) que se basa en que ambos cátodos tienen la misma eficiencia de detección, característica que resulta factible por las características constructivas del equipo. Como se indicó en el apartado, el método requiere de un patrón calibrado para la cuantificación de la muestra incógnita. Allí se menciona que este patrón debe tener la misma geometría y propiedades fisicoquímicas que la muestra incógnita. Sin embargo, si esta situación no puede darse en la práctica (cuestión probable) se supone que, con simulaciones Monte Carlo, se podrían hallar coeficientes de multiplicación que actuarían como factores de corrección.

Con respecto al bajo flujo de neutrones con el que se trabajó (esto provocaba que las experiencias duraran cinco días), las simulaciones muestran que la fabricación de un nuevo moderador donde se ubican 2



fuentes de 5 Ci de $^{241}\text{AmBe}$ podría aumentar el flujo de neutrones térmicos en la zona del detector hasta 10 veces, respecto de una de las configuraciones usadas (tabla 6.3), diseñándose un bunker para la contención y operación remota de las fuentes para reducir la dosis en el laboratorio mientras se realizan las mediciones. Esto deja documentado las bases para un proyecto de fabricación de una facilidad de irradiación para practicar experiencias con neutrones térmicos que no provienen del reactor, sino de fuentes de $^{241}\text{AmBe}$.

La mezcla de gases ($\text{P10} + ^{14}\text{N}$) resultó ser algo complejo de preparar, como fue comentado en capítulos anteriores. Pero una vez hallada la mezcla que se considera óptima ($\text{P10} + 6\% ^{14}\text{N}$), ésta se puede preparar en un tanque mezclador de buena capacidad, lo que permitiría disponer de un volumen mayor de la mezcla y así facilitar la comparación entre diferentes mediciones sin afectar la multiplicación.



Apéndice A

Modelo simplificado del efecto de auto-absorción observado en el espectro para la muestra boro de metálico.

Cuando se comenzó con las mediciones de boro metálico enriquecido, fue notorio el hecho de no poder obtener los picos producidos por los productos de la reacción de captura del ^{10}B con neutrones térmicos, dado que son partículas con energías definidas. El espectro se mostraba como una elevación respecto del fondo que comenzaba cercano a los 1.4 MeV y luego solo sobresalía el pico de protones que aportaba el nitrógeno (Figura 1). Esto indicaba que además de cuestiones vinculadas a la resolución del detector, también existían efectos de auto-absorción en la muestra. O sea, una partícula alfa que puede escapar de la muestra de boro y dejar un pulso en el espectro (ídem litio), pierde energía en su camino y en función de la posición donde se produce la reacción, estas partículas perderán más o menos energía en el material y consecuentemente depositarán más o menos energía en el gas dentro del detector, donde se producirá el proceso que culmina con la formación del pulso en el equipo. Por tal motivo, se obtiene un espectro con un rango completo de energías y no picos definidos.



Para conocer el aspecto de la muestra trabajada, se realizó una espectrometría de rayos x con microscopio electrónico, y allí se observó que el tamaño de grano del boro metálico oscilaba entre 100 μm y 300 μm , Figura 2.

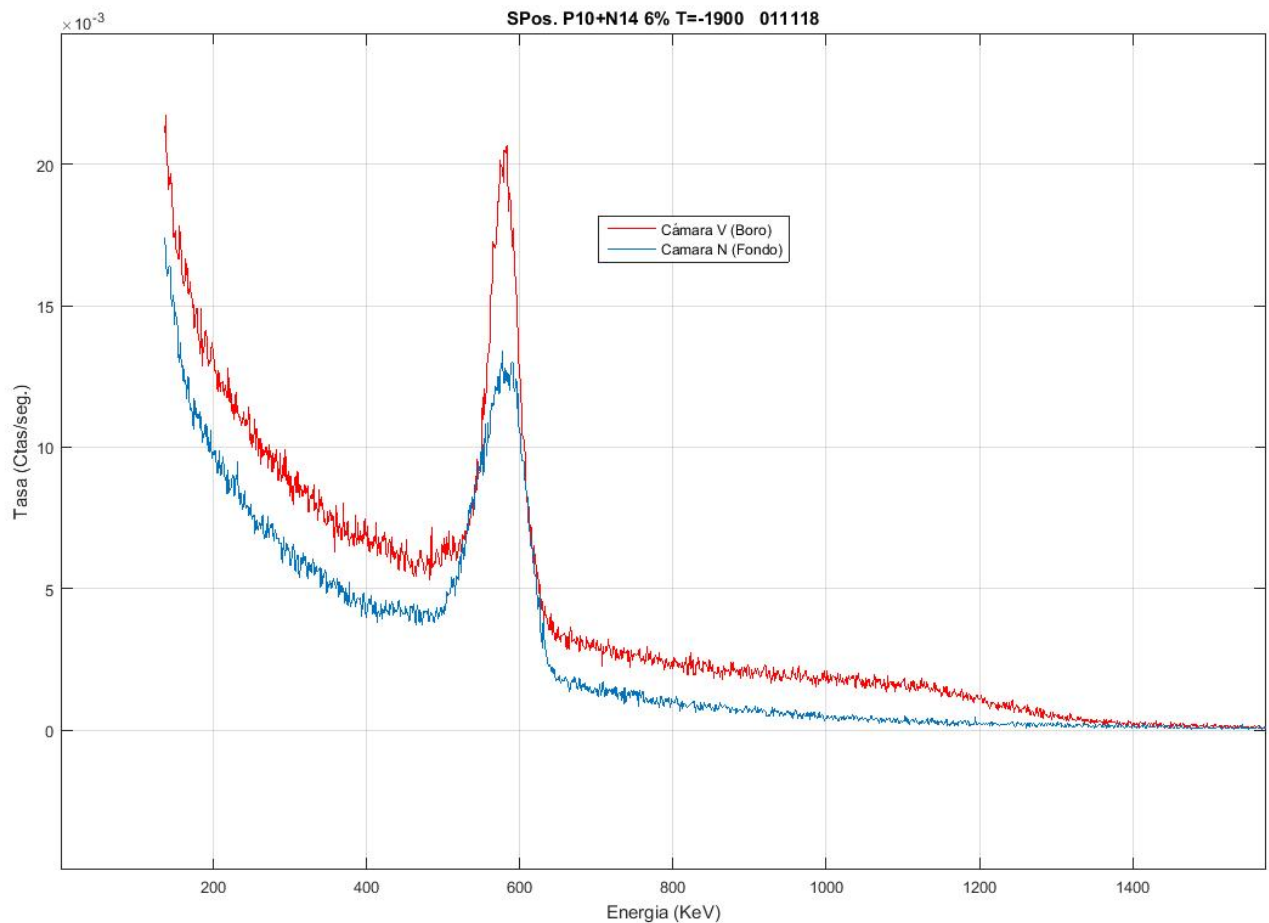


Figura 1. Se puede observar el espectro continuo producido por las alfas y litios producto de la reacción, además del pico de protones.

A partir de aquí se propuso hacer una simulación, mediante métodos Monte Carlo del efecto que se observa, o sea reproducir la pérdida de energía que sufren las partículas al atravesar el boro. Se trata de una simulación simple y a la vez ilustrativa.

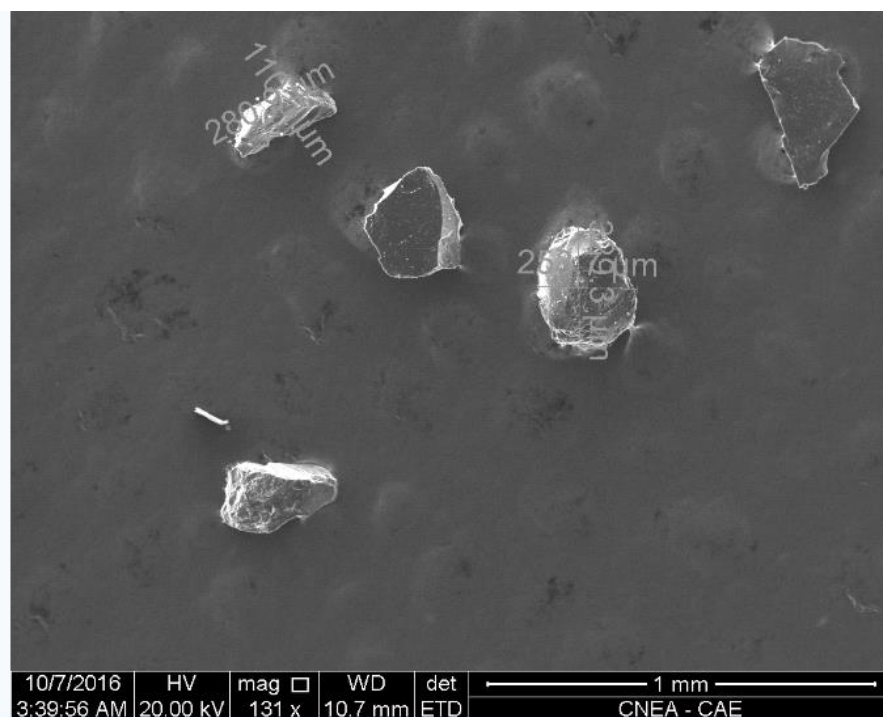


Figura 2. Espectroscopia de rayos x. Muestra el tamaño de los granos del boro metálico enriquecido que se usó inicialmente. (LMFAE).



Con la ayuda del programa de simulación SRIM (Ref. [2]), se obtuvo la curva de poder de frenado de las partículas alfa en boro (ver figura 3).

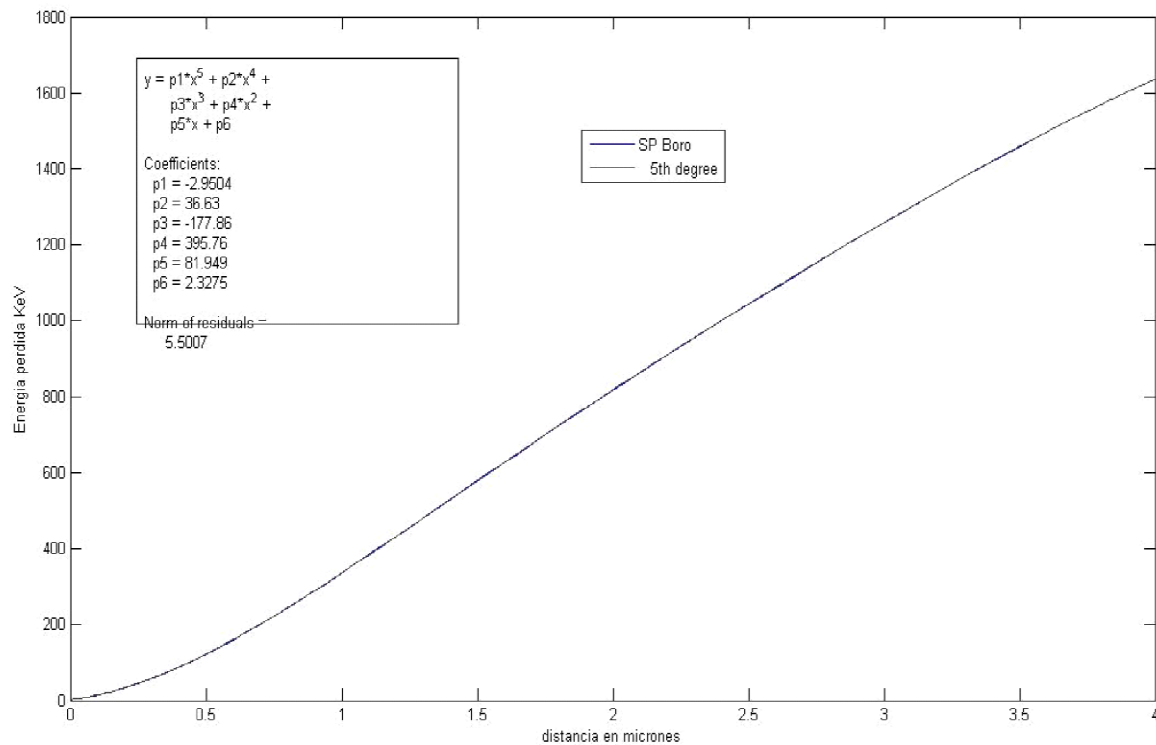


Figura 3. Curva de poder de frenado del de las partículas alfa en boro.

La curva relaciona la energía perdida de las partículas en el material, con el rango alcanzado de la misma. De esta manera, se posee la información física del problema, y se puede construir un código que simule cómo se mueve la partícula alfa en el interior de un grano de boro, en función de la distancia entre el lugar donde se produce la reacción y el borde externo del grano.

Así es posible conocer con cuánta energía emerge la partícula alfa desde el borde del grano de boro. Esta energía residual con la que emerge la partícula es la que terminará produciendo un pulso en el espectro.

Al mismo tiempo, se obtiene el rango máximo de una partícula alfa a través del boro (figura 4), valor que será usado en la simulación.

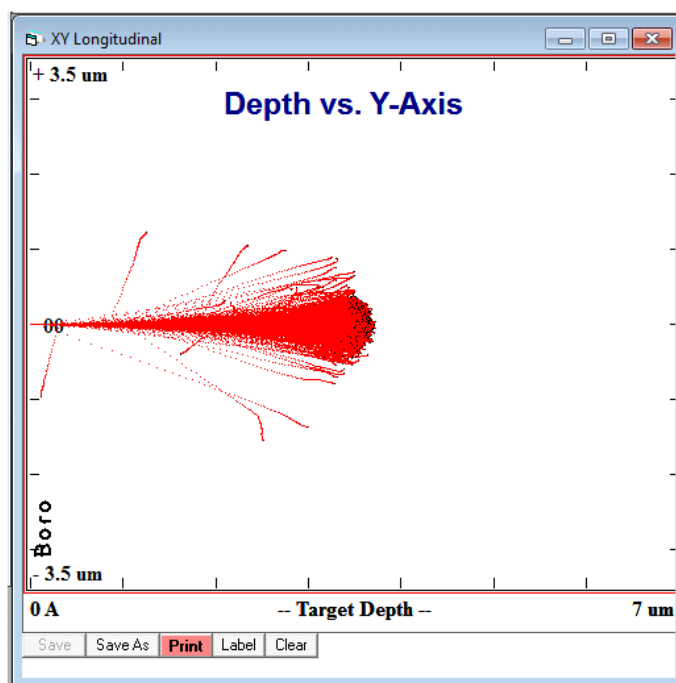


Figura 4. Alcance de las partículas alfa de 1.47 MeV en el Boro. Programa utilizado; SRIM, Ref. [2]. Observar que el alcance es de 3.5 μm .

Para simplificar cuestiones geométricas del problema, se decidió aproximar un grano de boro de bordes irregulares, con la forma de un cubo, ver figura 5.

Aquí se hace notar que el problema que se propone resolver es una aproximación del problema real, ya que solo incluye como producto de la reacción a las partículas alfa, entre otras simplificaciones.

Con distribución uniforme, se simula el inicio de una reacción en cualquier punto del interior del cubo (puntos rojos en el cubo), luego se *sortea* el ángulo de salida de la partícula alfa y posteriormente se sortea el rango posible de alcance de acuerdo con la curva de poder de frenado. Con cálculos de geometría se determina si pudo o no salir del cubo (puntos azules en el cubo).

Nota; Cuando se dice “se *sortea*”, se trata de una manera de referirse a que el programa, conforme al algoritmo de generación de números pseudoaleatorios propio, selecciona un valor entre 0 y 1, para ser empleado posteriormente en algún cálculo.

En caso de haber salido la partícula alfa, se conoce con cuánta energía emerge (energía disponible) mediante la curva de poder de frenado y el conocimiento que se tiene de la energía de la partícula alfa al momento de la reacción (1.47 MeV).

Con la energía disponible se puede realizar un histograma, a modo de espectro, que acumula en bins de energía definidos la cantidad de eventos producidos para cada energía.

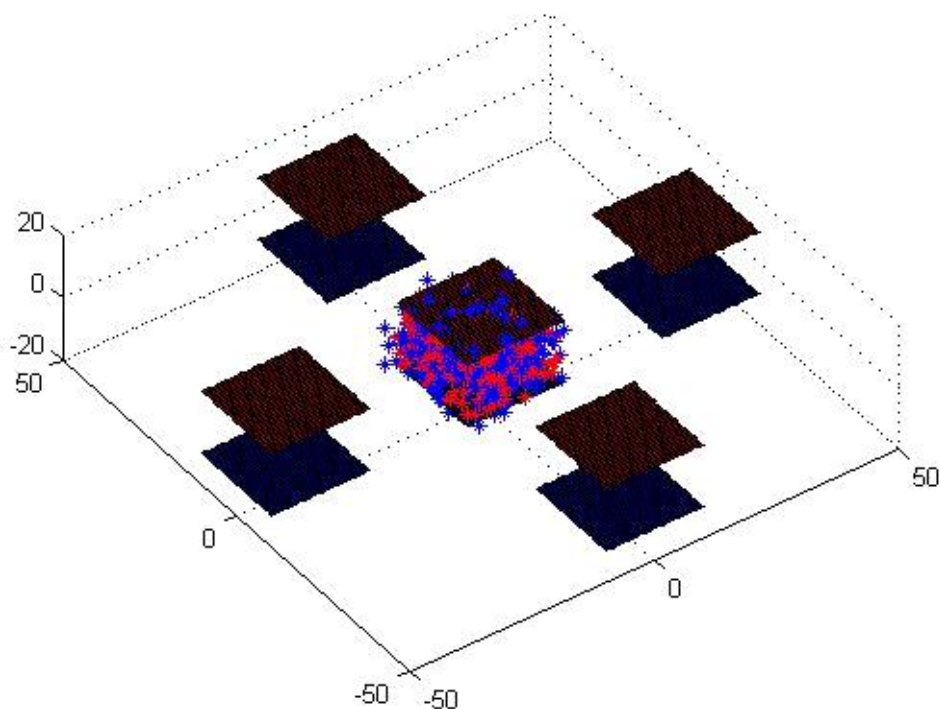


Figura 5. Se muestra el gráfico de la simulación del grano de boro, por simplicidad se lo representa como un cubo.



Con esta información se puede variar el tamaño de grano (el lado del cubo) y ver el efecto que produce sobre el espectro el hecho de reducir el tamaño del mismo (figuras 6 a, b, c).

Observando la figura 6.a, se aprecia que cuando el lado del grano es, por ejemplo, de aproximadamente 20 μm se puede saber que, del total de las reacciones ocurridas en el interior del boro, solo un 24 % de las partículas alfa logran salir y aportar un pulso en el espectro. Como es de esperarse, el espectro es continuo.

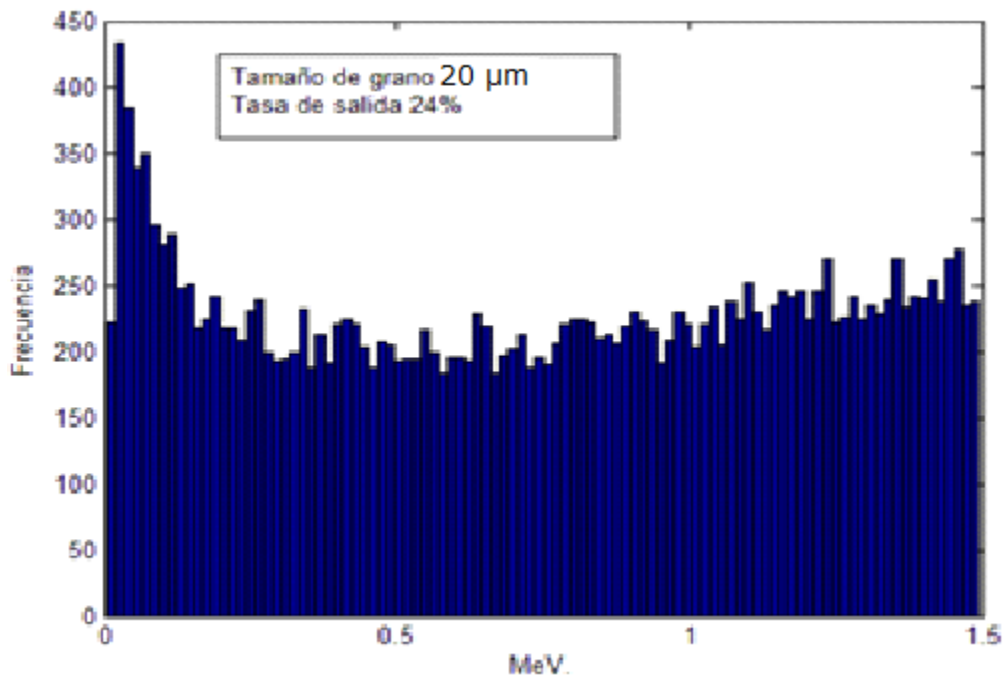


Figura 6.a. El tamaño de grano es varias veces superior al rango de la partícula alfa de 1.47 MeV. Por lo tanto, no se observa un pico definido en el espectro. Solo un 24 % de las partículas logran salir del cubo. Aquí, el lado del cubo es de 20 μm .



Cuando el tamaño de grano se reduce a $1\ \mu\text{m}$ (figura 6.b), del 100 % de las reacciones ocurridas logran salir el 100 % de las partículas alfa. Dado que el rango de las partículas alfa en el boro es de $3.5\ \mu\text{m}$, entonces hay un espectro que se asemeja más a un pico único, pero aun pierden energía.

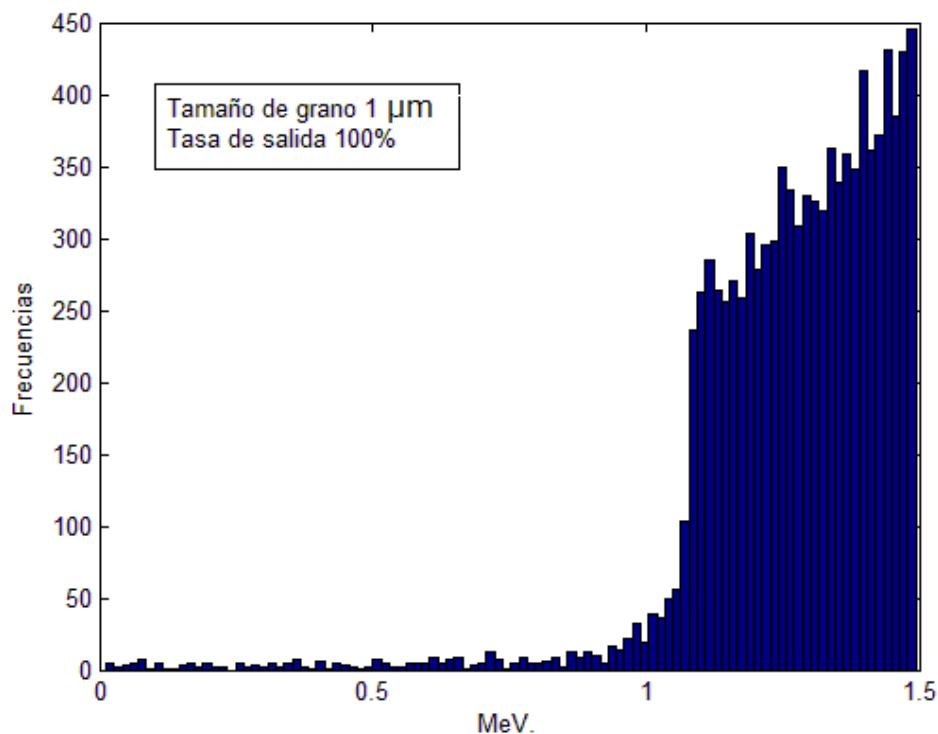


Figura 6.b. El tamaño de grano es menor (un tercio aprox.) al rango de la partícula alfa de 1.47 MeV. Por lo tanto, todas las partículas logran salir del cubo, pero muchas de ellas pierden algo de energía en el proceso. El lado del cubo es de $1\ \mu\text{m}$.



Finalmente, cuando el tamaño del grano es de $0.2 \mu\text{m}$ (muy inferior al rango) todas las partículas logran salir y dejan prácticamente toda la energía inicial de la reacción en el gas (figura 6.c), formando en el espectro un pico en 1.47 MeV .

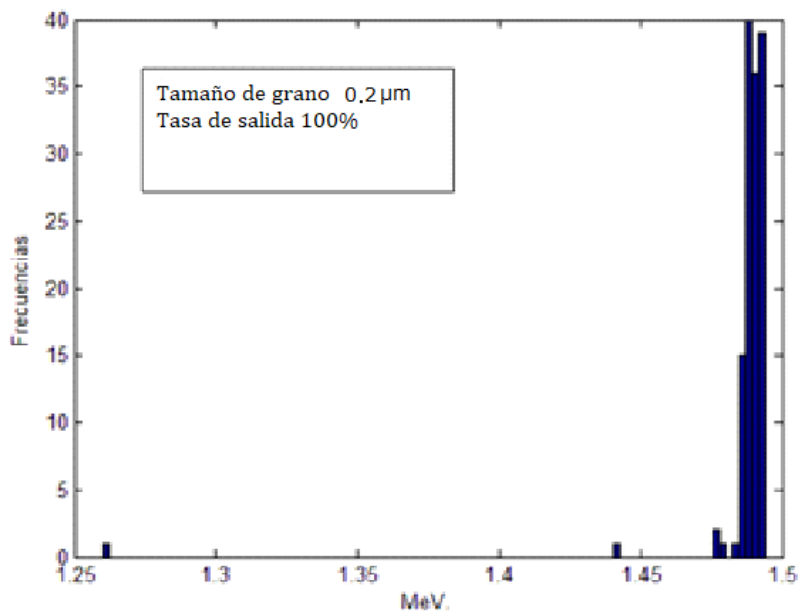


Figura 6.c. Cuando el tamaño de grano se reduce a un menos de 10% del rango de las partículas alfa, se observa que se forma un estrecho pico de energía, la pérdida de energía de las partículas es prácticamente nula. El lado del cubo es de $0.2 \mu\text{m}$.

La figura 7 muestra el espectro resultante luego de la resta de espectros de la figura 1. Observar que el pico de nitrógeno dificulta calcular el área de interés, debemos retirarlo.

El espectro de la figura 8 es obtenido del espectro de la figura 7 al cual se le sustrajo, mediante una estrategia matemática (método Monte Carlo), la contribución del protón de nitrógeno (espectro color azul). Así, se puede ver cómo se aproxima su aspecto al obtenido en la simulación en la cual el cubo tiene 20 μm de lado, en el sentido que ambos muestran un espectro continuo sin resaltar la presencia del pico de energía de la partícula alfa.

Finalmente se comenta que esta simulación muestra que un tratamiento similar se puede aplicar para generar un modelo de tejido, mediante simulación y conocer la fracción de partículas que pueden escapar del mismo. Dicha fracción, es necesaria para el cálculo de eficiencia y posterior cuantificación de la cantidad de boro perteneciente en una muestra.

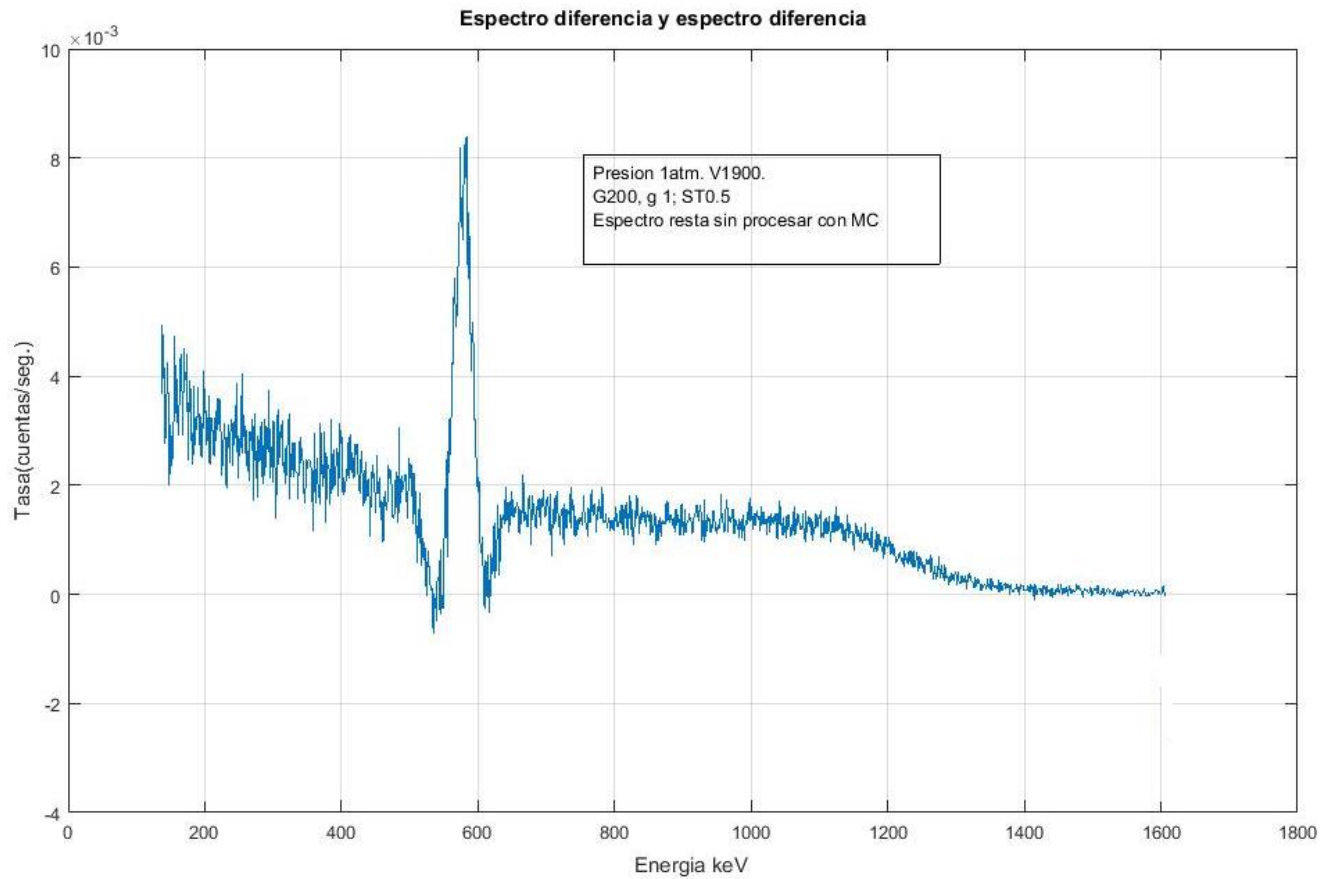


Figura 7. Muestra el espectro diferencia entre el espectro del cátodo fondo y el producido por el cátodo que posee la muestra.

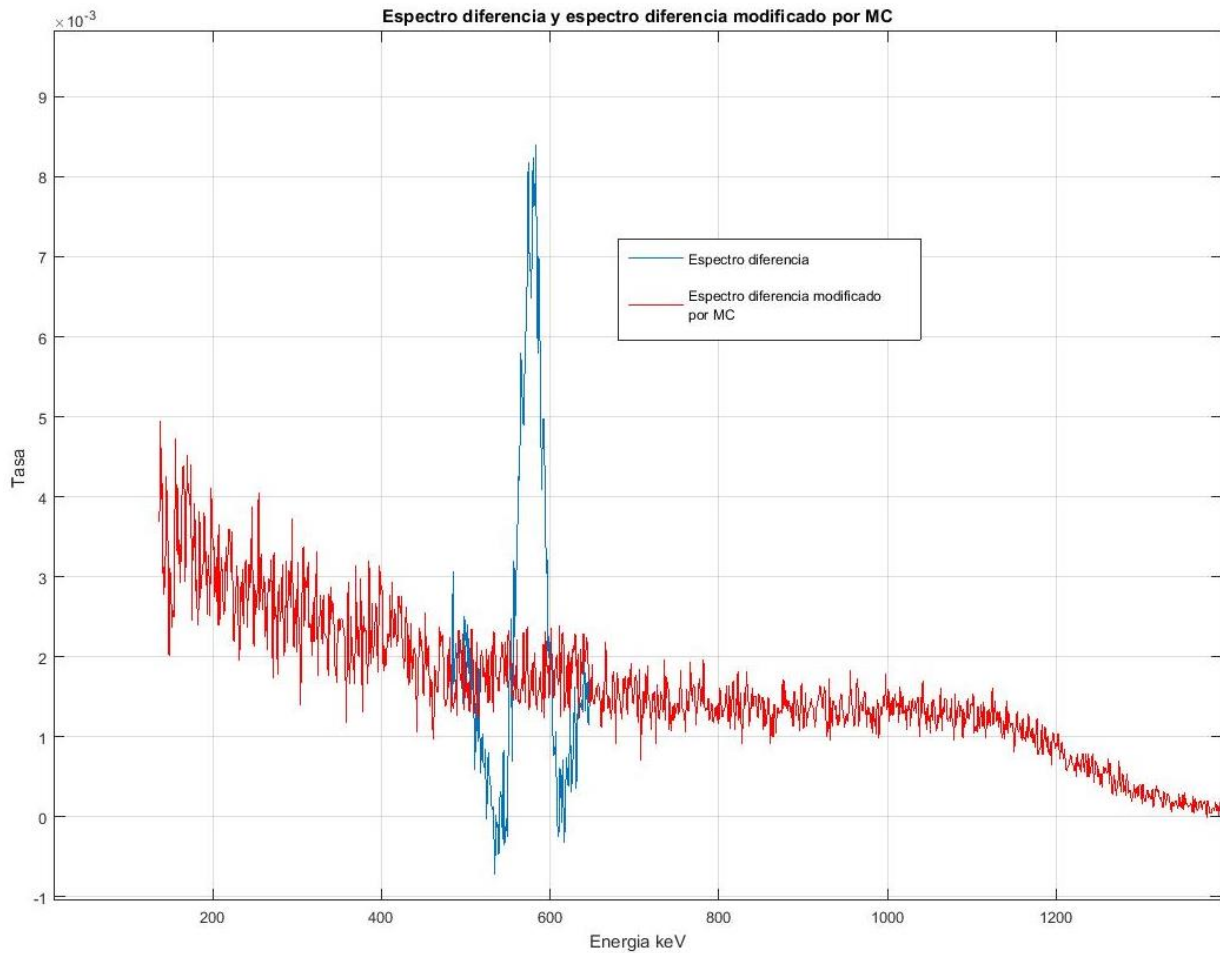


Figura 8. Se observa el espectro diferencia de la figura 7, sólo que a este, se le retiró mediante método M.C el sector donde aparece el pico de nitrógeno (línea azul).

Apéndice B

Pruebas de la resolución en energía del detector

Es importante conocer la resolución que tiene el detector como función de la tensión de trabajo, la presión y la mezcla de gas que se utiliza. Para esto se realizaron numerosas pruebas a este efecto y a continuación se detallan algunas de las mismas.

Es deseable que el contador proporcional pueda distinguir entre el pico de 0.58 MeV del protón proveniente de la reacción del ^{14}N y los neutrones térmicos y el pico de 0.85 MeV del ^7Li provocado por la reacción de ^{10}B con los neutrones térmicos (la partícula alfa está más alejada en energía, 1.47 MeV). Observar que la diferencia de energía entre ambos (protón y ^7Li) es 0.267 MeV.

Para conocer si el detector resuelve partículas que distan en energía como la diferencia indicada, se realizó la experiencia que se describe a continuación.

Se utilizó una fuente triple alfa, la cual está compuesta por los siguientes emisores alfa: ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm de energías 5.16, 5.48 y 5.80 MeV, respectivamente, colocada dentro del detector, en el cátodo identificado como (V). En el cátodo identificado como (N) también se coloca una fuente alfa de ^{241}Am . Entonces se podrán adquirir espectros de ambos cátodos, para determinar si se resuelven los picos de la fuente triple y luego superponerlos y tratar de calibrar el cátodo (N) con la



información del cátodo (V) luego de la adquisición. Esta experiencia se realizó en el (LMR).

Por lo tanto, se toman mediciones de un cátodo y a continuación el otro, porque si bien el detector permite tomar mediciones simultáneas de ambos cátodos, se posee sólo una cadena espectroscópica.

El gas utilizado es P10 a 3 atmósferas de presión, la configuración electrónica es: $V = 2700\text{ V}$, ganancia 100×1 , shaping time = $3\text{ }\mu\text{s}$

La tabla 1 muestra las energías de las fuentes (emisores alfa) utilizadas y la columna ΔE muestra la diferencia entre ellas. Más abajo se puede ver las energías de las partículas emergentes en la reacción de captura de neutrones térmicos en ^{10}B , a modo de comparación.



Si bien la fuente triple alfa y ^{241}Am tiene mayor energía que la disponible en la reacción de interés, aquí se pretenden observar las diferencias (ΔE) entre los picos de energía que aparezcan en el espectro. Estas variaciones pueden ser comparables con los posibles picos de referencia que aporta la reacción del neutrón con el ^{10}B .

Fuente alfa	MeV	ΔE MeV
^{239}Pu	5.159	0.321
^{241}Am	5.48	0.320
^{244}Cm	5.80	
Reacción	MeV	ΔE MeV
Protón N	0.58	0.26
Litio	0.84	0.63
Alfa	1.47	

Tabla 1. Energías involucradas de interés en la reacción y energía de las partículas provenientes de la fuente triple alfa.



La figura 1 muestra la superposición de los espectros adquiridos, uno para la fuente triple alfa y el otro correspondiente al ^{241}Am .

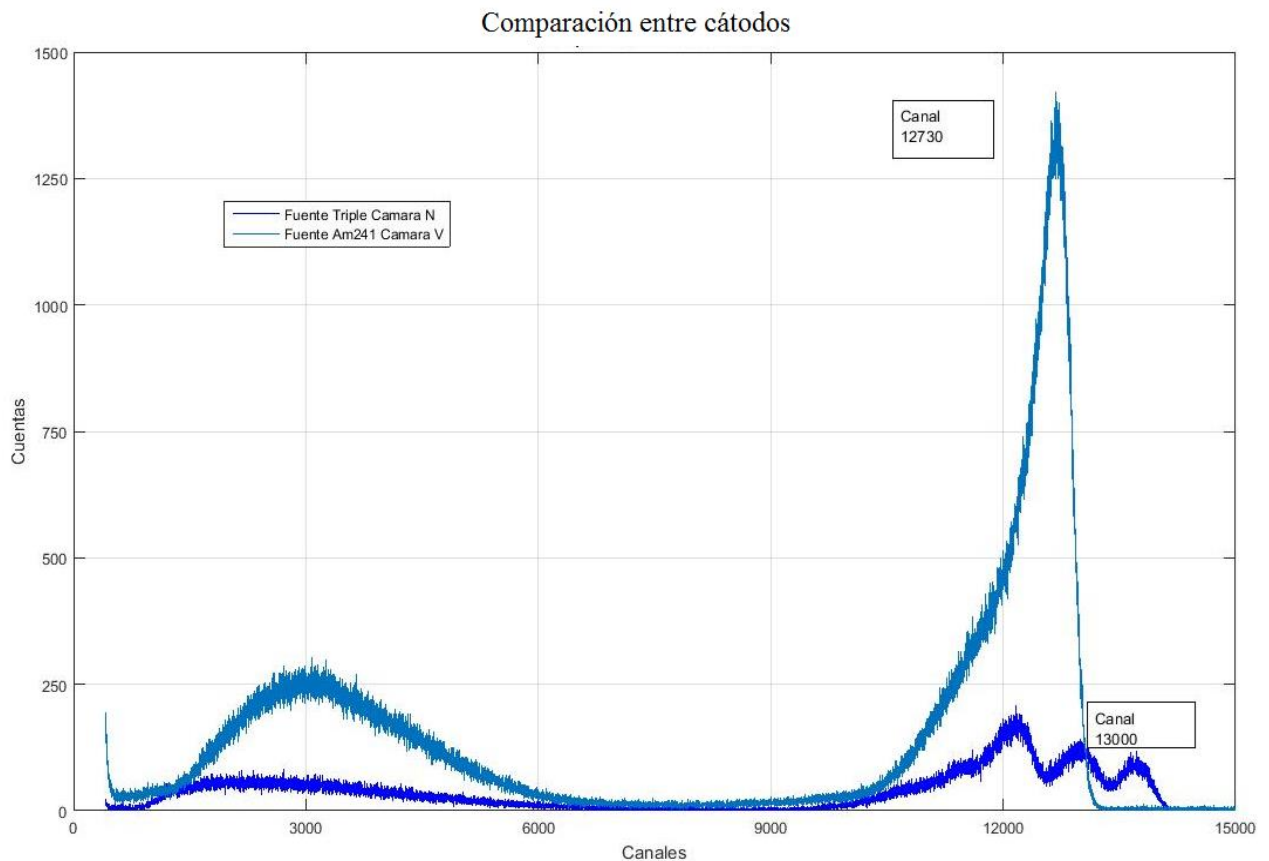


Figura 1. Superposición de espectros de fuentes alfa, adquiridos por los cátodos del detector.
Una fuente ubicada en el cátodo (N) y la otra en el cátodo (V).



Del análisis del espectro surge la siguiente información:

- a) Por simple inspección del espectro puede notarse que el detector resuelve las energías de los tres picos de la fuente triple ubicada en la cámara (V). Por lo tanto, distingue entre energías con diferencia de 300 keV, aproximadamente, lo cual está en el rango de las diferencias de interés (O sea las diferencias de energías que se producen en la reacción).
- b) Calibrando en energía usando los tres picos de la fuente triple ubicada en el cátodo (V) y utilizando una recta de parámetros: $Y=AX+B$, pasando de número de canal a energía, se puede inferir la energía del pico producido por la fuente de ^{241}Am observado en el cátodo (N) el cual aparece en el canal 12730.

Evaluando este dato en la recta de calibración, se obtiene una energía de 5.36 MeV. Calculando la diferencia porcentual respecto de la energía del ^{241}Am , se adquiere una diferencia de 2.24 % (ver tabla 2). Repitiendo el procedimiento, pero esta vez con una pequeña variación en la apreciación (aquí se hace referencia a la apreciación visual) respecto de la ubicación de los picos de la fuente alfa, vemos una nueva recta de calibración (tabla 3), la cual entrega una discrepancia menor al 2 %. O sea, surge una discrepancia asociada a la apreciación visual de la ubicación de los picos alfa, que luego se refleja en la recta de calibración.





Se debe tener en cuenta que la experiencia de colocar el detector dentro de la configuración de moderación con el ^{10}B en la muestra es diferente al experimento comentado, o sea las configuraciones electrónicas son diferentes, la mezcla de gases es diferentes.

Sin embargo, la experiencia contribuyó al conocimiento del comportamiento del detector permitiendo observar las ventajas de referenciar un cátodo respecto del otro.

Parametros de la recta:		Y = AX + B		
	Energia (MeV)	A	X	B
Cátodo N	5.36	4.17E-04	12730	0.0418
Cátodo V	5.48	Con este dato se calibra el espectro		
Discrepancia	2.24 %	Para Am241 en ambos cátodos		

Tabla 2. Comparación entre cátodos con la primera calibración.

Parametros de la recta:		Y = AX + B		
	Energia (MeV)	A	X	B
Cátodo N	5.55	7.24E-04	12726	-3.658
Cátodo V	5.48	Con este dato se calibra el espectro		
Discrepancia	1.28 %	Para Am241 en ambos cátodos		

Tabla 3. Comparación entre cátodos con la segunda calibración.



Observaciones en la mezcla de gases

Las mediciones comentadas anteriormente se realizaron con gas P10 dentro del detector. En realidad, para la detección de las partículas alfa provenientes de la reacción de captura de neutrones térmicos en el ^{10}B , se utiliza una mezcla de P10+ 10 % ^{14}N (luego se reduciría al 6 %), para obtener un pico de referencia en el espectro de 0.58 MeV. Por tal motivo se intentó observar qué efecto introduce en la multiplicación dentro del detector el agregado de nitrógeno al P10 y, como se procedió anteriormente, se utiliza una fuente triple alfa que produce un espectro conocido.

La figura 2 muestra un espectro obtenido con la mezcla P10, sin agregado de nitrógeno. Observar que la presión en este caso es 1 atm y se logra definir los picos de la fuente alfa a una tensión de 1500 V.

En una prueba posterior se agrega en la cámara del detector además de P10, nitrógeno en una proporción del 6 % P/P que como se comentó anteriormente es la que se utilizará continuamente.

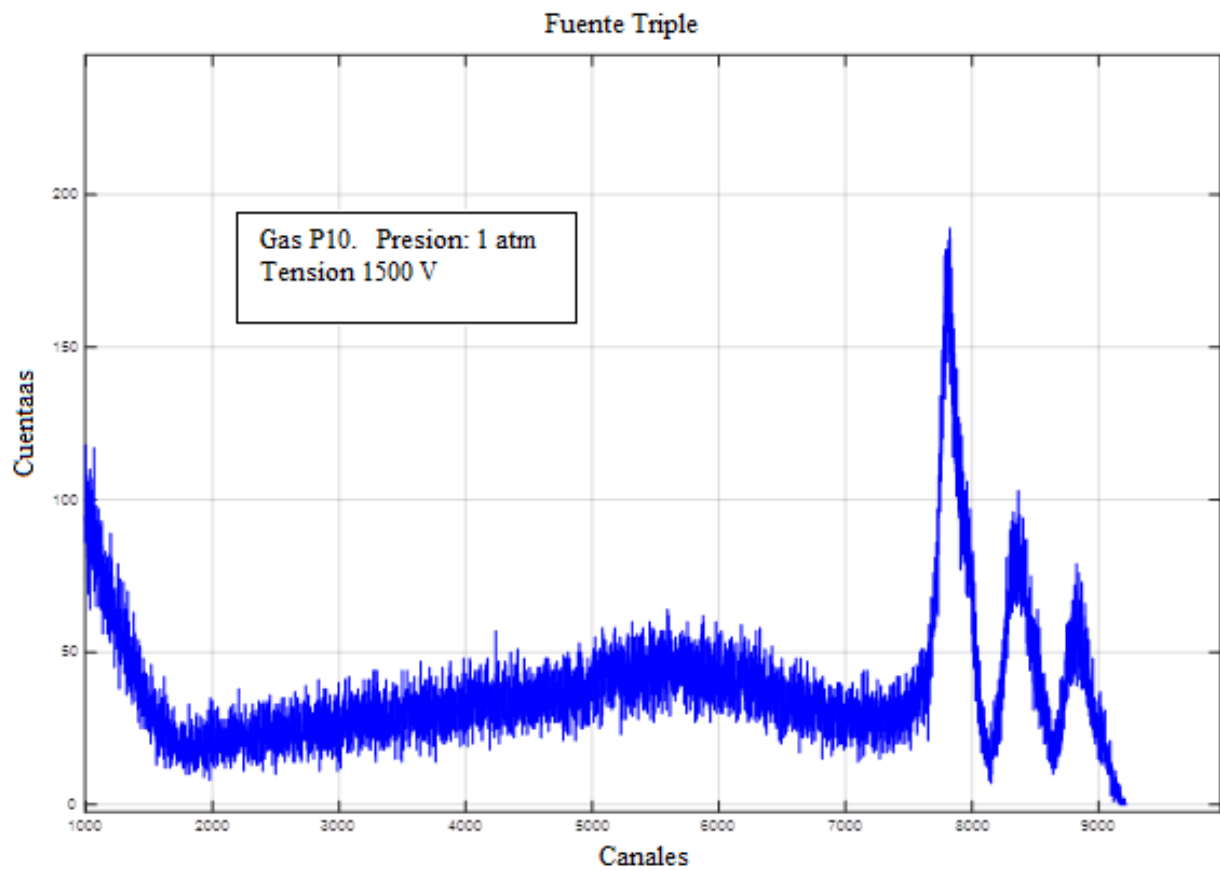


Figura 2. Espectro de la fuente triple alfa, gas utilizado P10.

En la figura 3 se puede ver que, a una tensión de 2300 V y una presión de 1 atm, no es posible observar los picos de la fuente triple.

Esta observación, podría indicar que la presencia del ^{14}N (debido a su alta electronegatividad), reduce en buena forma el efecto de multiplicación en el detector. El efecto fue observado en más de una experiencia.

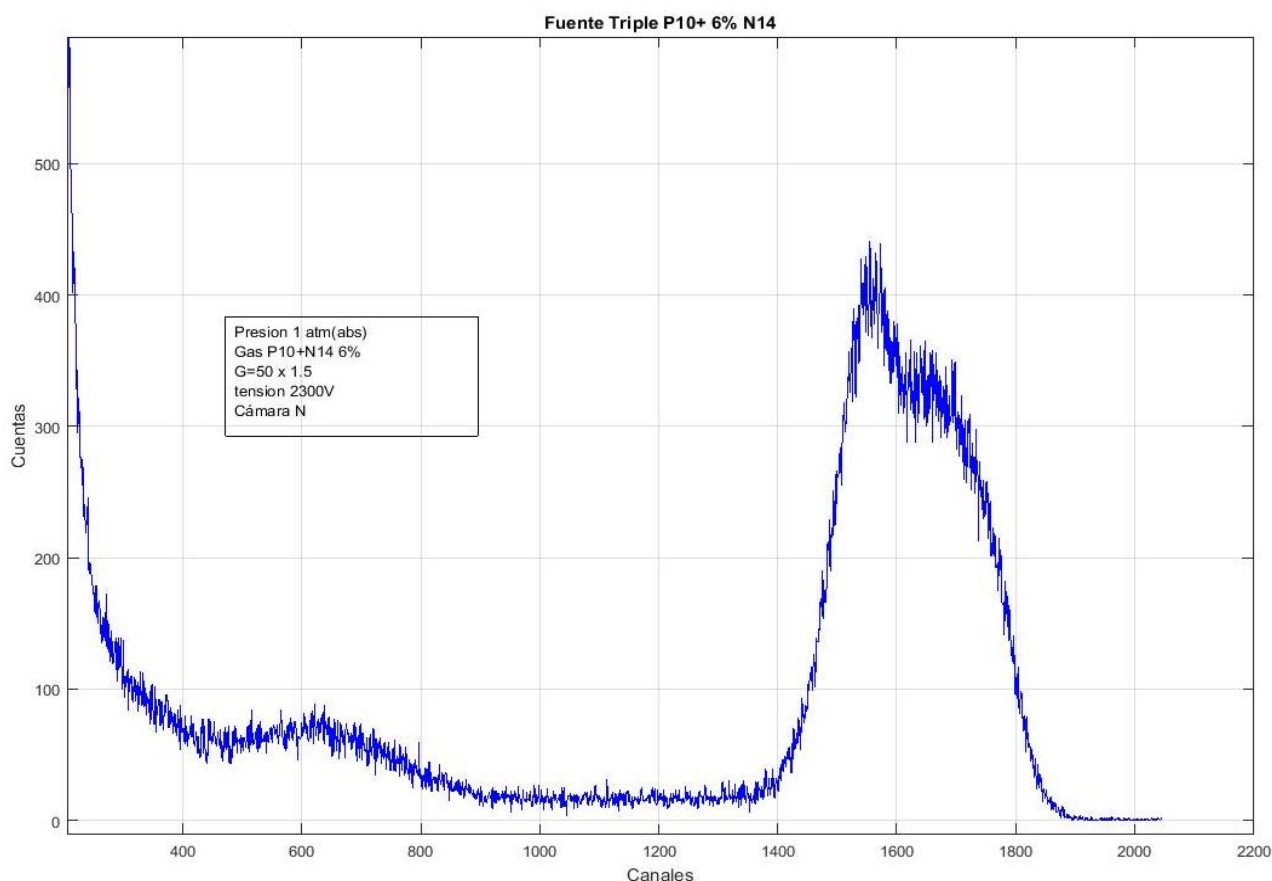


Figura 3. Espectro obtenido con la fuente triple alfa. Detector llenado con gas P10 y agregado de nitrógeno 6 %.



Elevando la tensión, de 2300 V a 2600 V, se hace posible la observación de los picos de la fuente triple. Figura 4.

Cabe comentar que el hecho de poder observar los picos de la fuente triple alfa resulta posible, no solamente gracias a la configuración electrónica y presión lograda, sino también a las características constructivas de la fuente triple alfa, en el sentido que se trata de una fuente extremadamente delgada, la cual posee una muy baja auto-absorción. Sin esta cualidad constructiva, no se lograría una definición espectral como la obtenida.

Finalmente, se concluye que la introducción de nitrógeno en la mezcla de gas P10 en la cámara del detector produce una disminución en la capacidad de resolución en energía del detector, lo que obliga a aumentar la tensión para obtener la misma resolución. El aumento de la tensión no es conveniente porque podría traer problemas relacionados a descargas internas en el detector.



Algunas cuestiones sobre la presión: el laboratorio donde se prepara la mezcla de gases (LMR) conserva su temperatura controlada debido a los estándares de calidad que debe mantener por tratarse de un laboratorio acreditado. Como la presión no es monitoreada, se colocó una estación meteorológica durante 5 días para este fin, la que indicó que la misma se mantiene en 1014 ± 1 hPa. Durante las experiencias realizadas de este trabajo, esta presión es la que se tomará como presión ambiente, Figura 5.

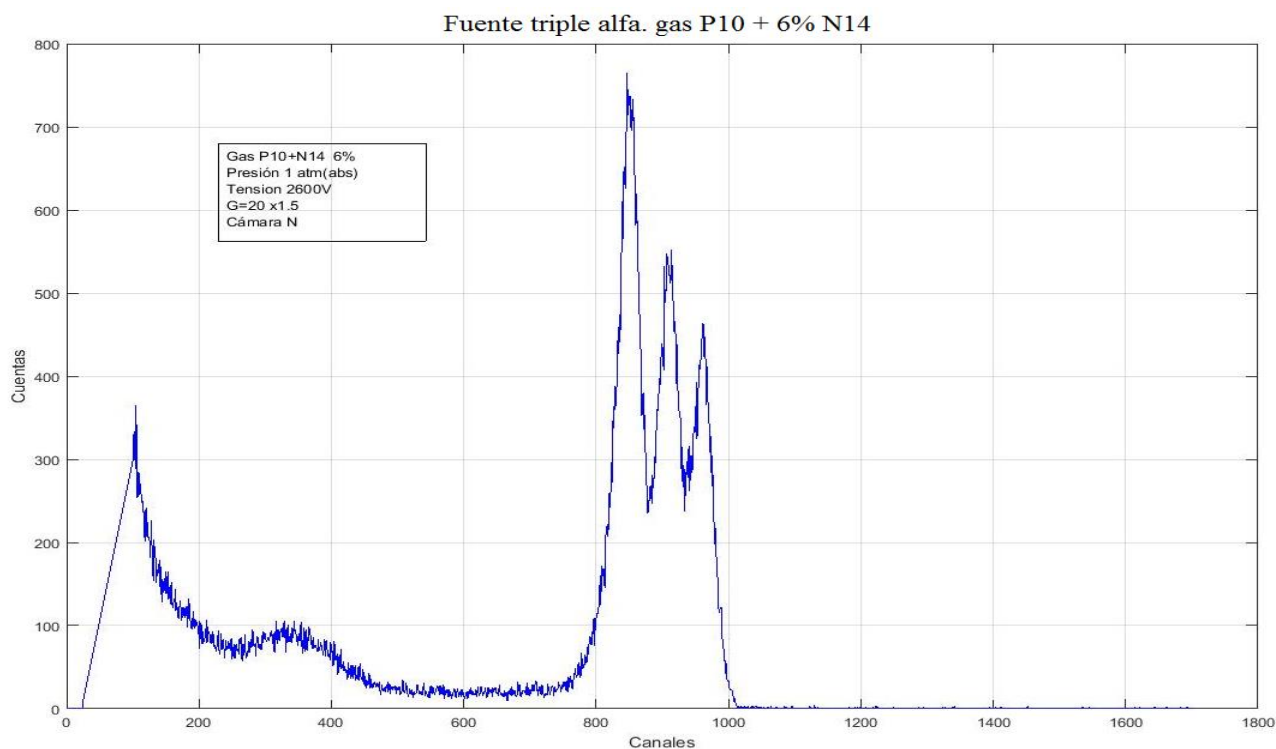


Figura 4. El espectro de la fuente triple se puede resolver, pero a costa de subir la tensión, respecto de la situación de la figura 3 (sin nitrógeno).



Figura 5. Estación meteorológica ubicada en la zona de carga del detector

Equivalencias de unidades de presión:

$$1 \text{ atm} = 1013.25 \text{ hPa}$$

$$1 \text{ bar} = 0.987 \text{ atm.}$$

$$1 \text{ bar} = 750.062 \text{ Torr}$$

Detección de fotones de baja energía con el contador proporcional

Para finalizar, comentaremos sobre pruebas realizadas para conocer las capacidades del detector para detectar fotones de baja energía, por ejemplo, menores a 30 keV. Este tipo de energías son difíciles de detectar, tanto con detectores de germanio típicos como con detectores del tipo NaI (conocidos como Ioduros). La dificultad se debe a cuestiones vinculadas a ruido electrónico, presente en cualquier medición y características constructivas de los detectores (no se abordan aquí, pero se puede ver en Ref. [3]).

Conociendo esta problemática, se ensayó el detector de doble cátodo con una fuente de ^{93m}Nb . El niobio en su estado metaestable emite dos fotones de 16 keV y 18 keV, colocando para su medición la fuente patrón en uno de los cátodos y midiendo fondo en el otro. La configuración electrónica usada en este caso fue: tensión 2900 V, presión del gas P10, 1.5 bar. Ganancia de amplificador x 200.

La observación de los espectros obtenidos puede verse en la figura 6, donde se superpone el espectro proveniente de la fuente en un cátodo y el fondo obtenido en el otro. El contador no puede resolver los 2 keV de diferencia de los fotones del niobio, mostrándose como si se tratara de uno solo.

El resultado es de gran valor debido a que muestra las amplias prestaciones que puede brindar este equipo, porque se demuestra que, por sus características constructivas, puede detectar partículas alfa que rondan los 5.5 MeV (como las emitidas por la fuente triple), como así

también los fotones de baja energía realizando ajustes en la configuración electrónica de medición y en la presión.

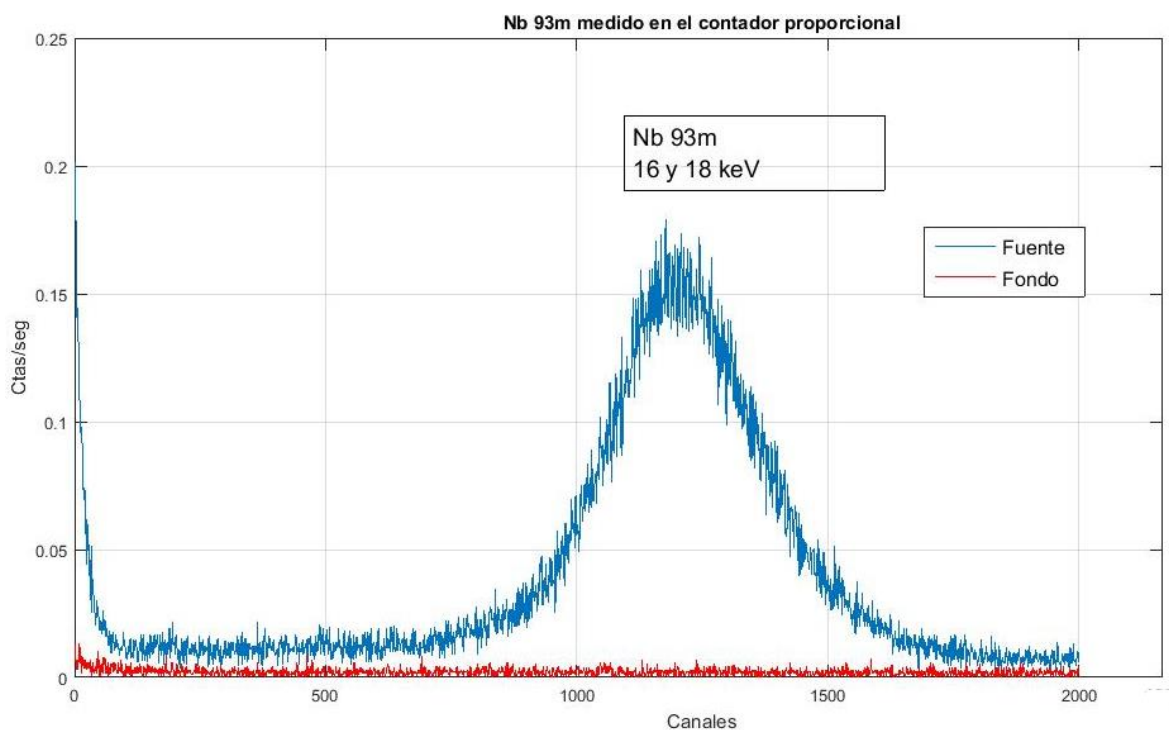


Figura 6. Espectro generado por la fuente de ^{93m}Nb ubicada en el detector de doble cátodo. El niobio en su estado metaestable emite dos fotones de 16 keV y 18 keV. El detector no los resuelve en energía, pero detecta la presencia de ambos.

Apéndice C

Estudio del posicionamiento del detector en el sistema de moderación.

Con el objetivo de observar posibles variaciones del flujo que llega a los cátodos del detector, como función de posibles pequeños desplazamientos respecto de la posición de irradiación, se estudió el espectro obtenido en diferentes ubicaciones del mismo. La mezcla utilizada fue $P_{10} + {}^{14}\text{N}$ 6 % a presión 0.9 atm (absoluta). Esta presión fue lograda con equipamiento perteneciente al laboratorio (L.I.D). El espectro a observar es el producido debido a la reacción del ${}^{14}\text{N}$ con los neutrones termalizados, la cual entrega un pico en el espectro de unos 0.58 MeV. En la figura 1 se muestra la geometría de irradiación, vista desde la parte superior del sistema. No se utiliza ${}^{10}\text{B}$ en estas experiencias.

En la figura 2, se muestra un esquema de cómo se realizaron los desplazamientos longitudinales y transversales del detector, respecto de la fuente. Los desplazamientos fueron hasta 2 cm respecto de la posición central. Se comprobó que, con desplazamientos inferiores al cm, no se aprecian variaciones atribuibles al corrimiento. Es importante comentar que, en el posicionamiento del detector en el sistema moderador, se podría cometer una diferencia no mayor a medio centímetro, respecto de la posición central en el posicionamiento respecto del centro.



La figura 3, muestra la superposición de los espectros obtenidos en las tres posiciones indicadas. Tomando como área de observación la región del espectro que encierra al pico de protones (típicamente entre 0.46 MeV y 0.67 MeV), la diferencia en área de los espectros, respecto de la posición central, resultó inferior al 3 % para desplazamientos de 2 cm.

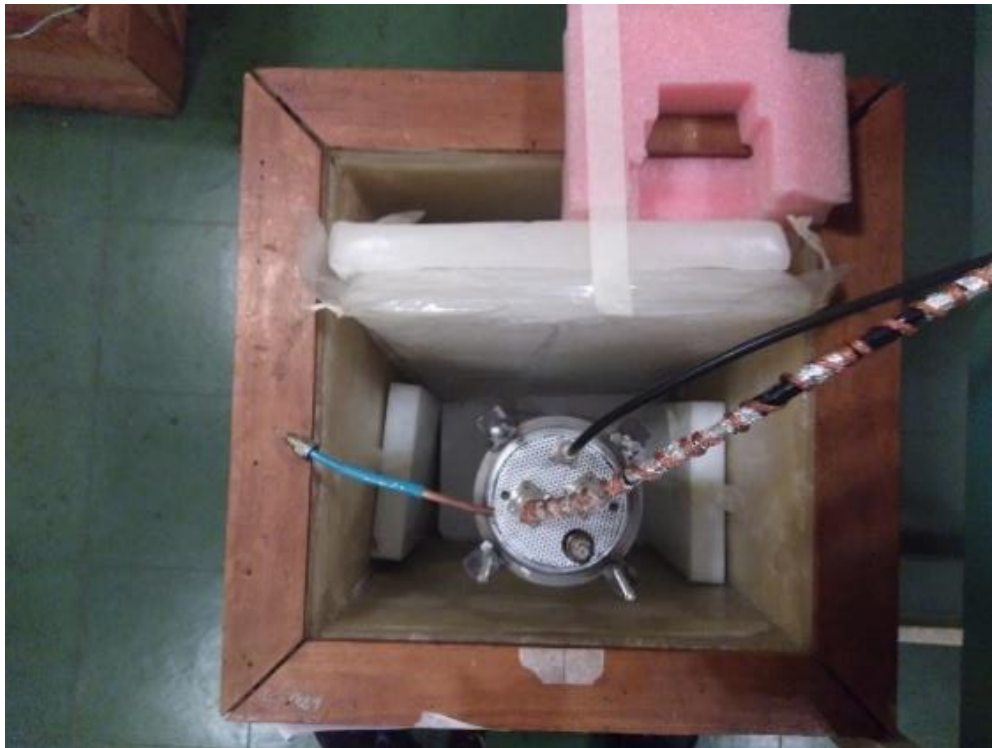


Figura 1. Configuración de moderación y detector.

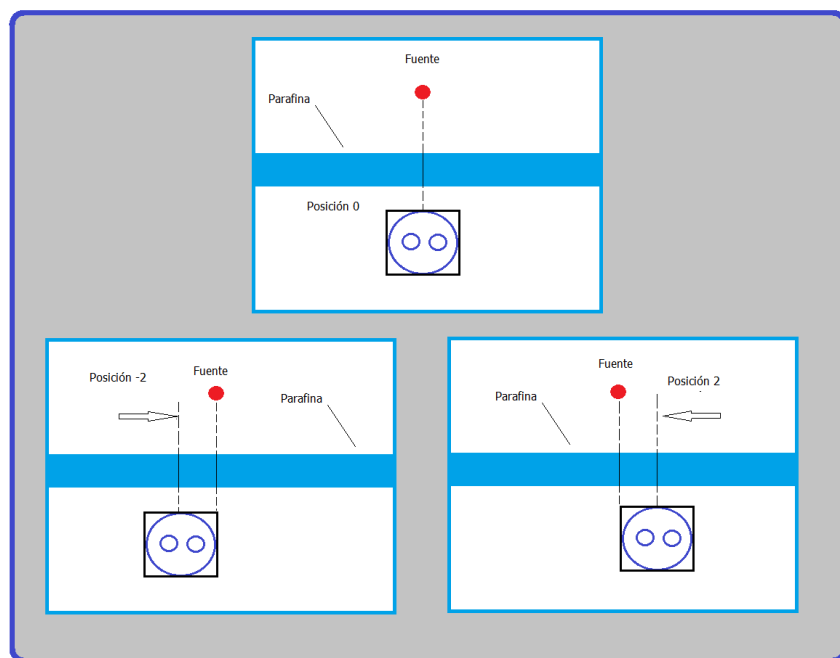


Figura 2. Desplazamientos del detector dentro de la configuración de moderación.



Observación del pico de 584 keV respecto del desplazamiento horizontal del cátodo
posiciones (2cm 0cm -2cm)

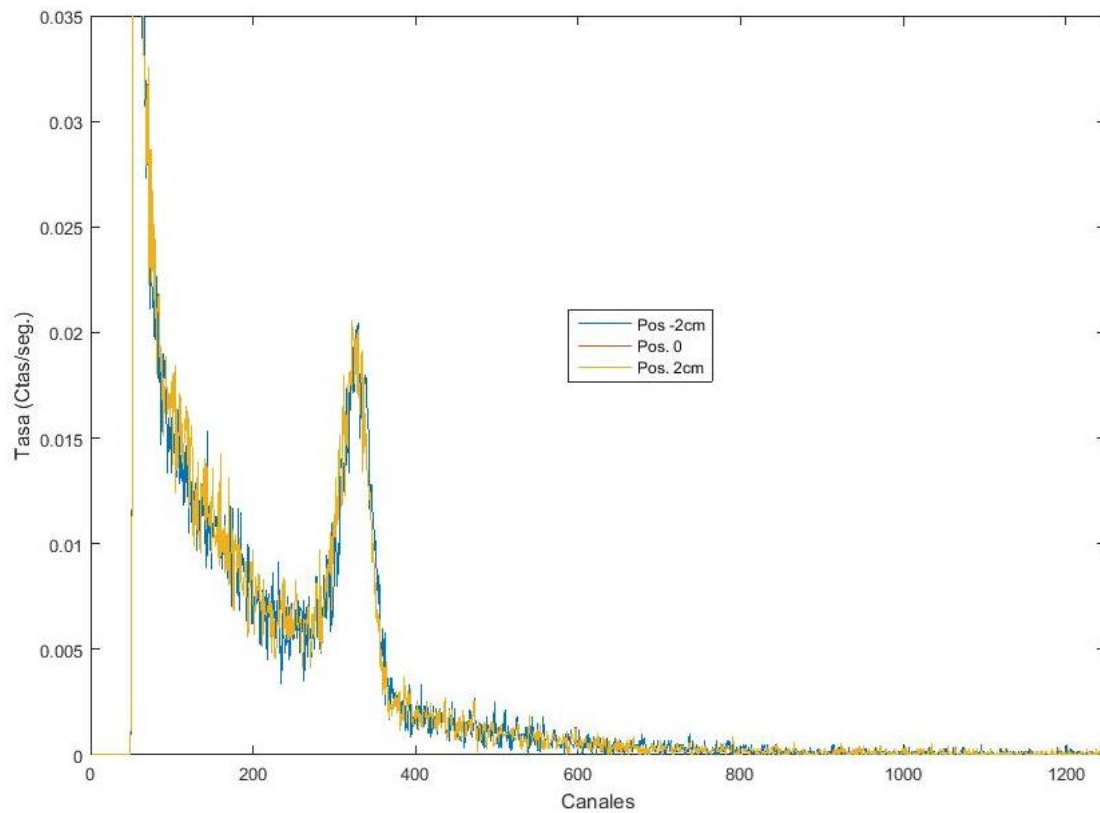


Figura 3. Superposición de espectros proveniente del protón de 0.58 MeV, para las posiciones indicadas en la figura 2.

Procediendo de forma similar se rota el detector respecto de una ubicación central, en diferentes posiciones angulares y se adquiere el espectro en cada caso, para notar posibles variaciones del flujo en los cátodos dependiendo de la posición. Ver esquema de la figura 4.

En la figura 5 se observa los espectros adquiridos en las diferentes posiciones angulares. Para ángulos menores a 30° , no se observan diferencias atribuibles al cambio de posición de la cámara. La mayor diferencia entre áreas del espectro es obtenida cuando la cámara se rota 270° respecto de la horizontal, la discrepancia es $< 15\%$. Obviamente, el posicionamiento del detector impide cometer diferencia significativas en la ubicación en el sistema de termalización.

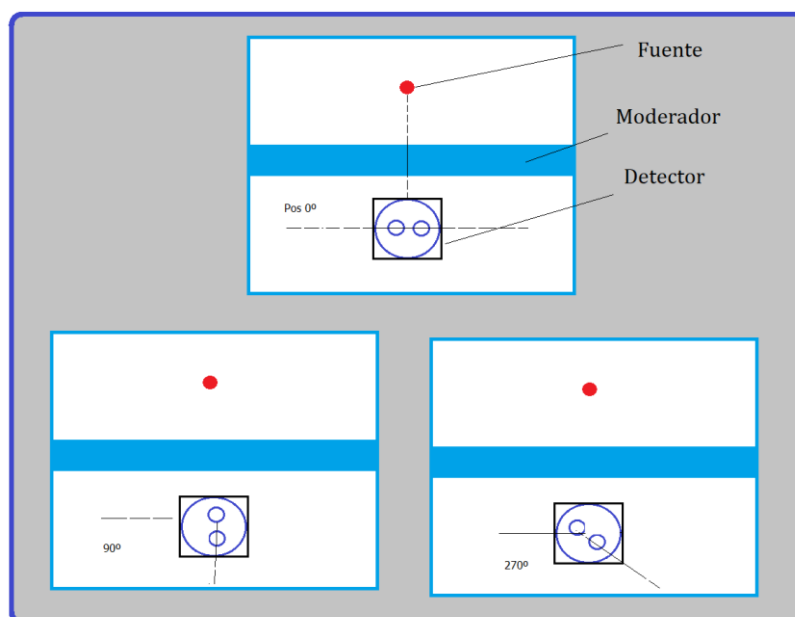


Figura 4. Esquema de las rotaciones del detector en el sistema moderador.



Por lo comentado anteriormente, habiendo visto que solo para desplazamientos del orden de 2 cm y variaciones angulares importantes (superiores a 30°) denotan cambio de flujo que llega a los cátodos respecto de la posición central, se desestimarán efectos de variación de flujo dentro de la cámara, debido al posicionamiento.

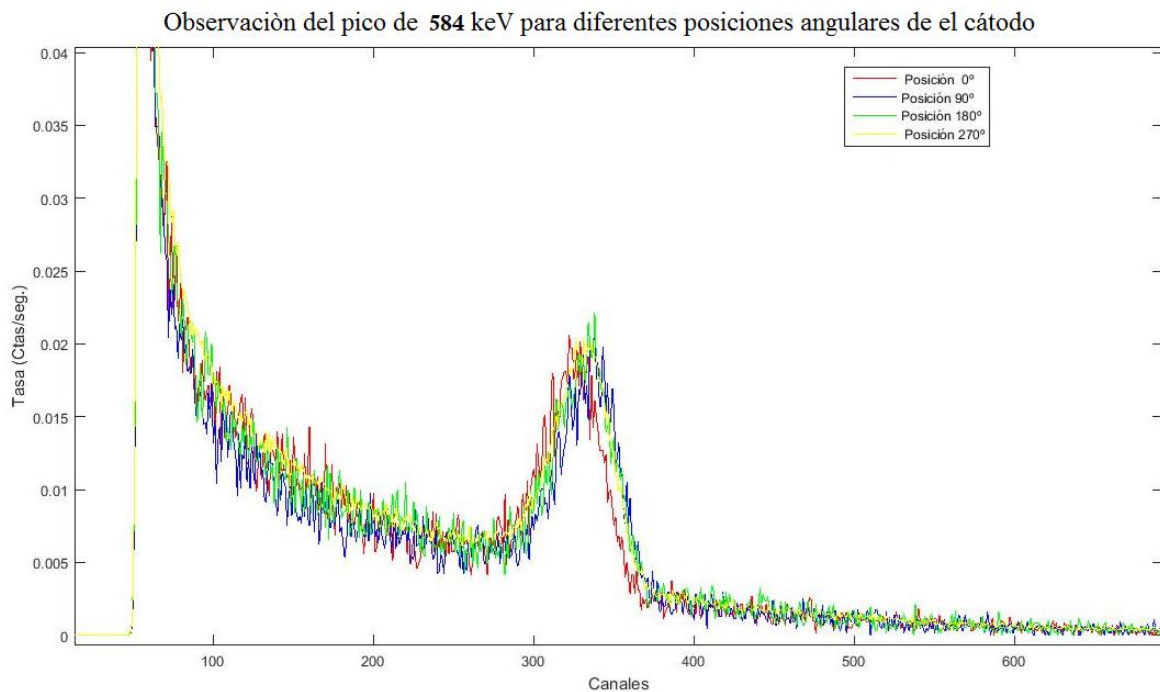


Figura 5. Superposición de espectros proveniente del protón de 0.58 MeV, para las rotaciones indicadas en la figura 4.

Apéndice D

Métodos ensayados para el cálculo del área de interés en los espectros obtenidos producto de la reacción ($n, {}^{10}\text{B}$).

Como se comentó en el capítulo 3, cuando se comenzó a disminuir la cantidad de boro que se usaba como muestra, allí se hizo notar que resultaba más conveniente (en el sentido de interpretación del espectro) contabilizar el área del espectro en la región de alta energía desde 670 keV (aproximadamente) donde solo había aporte de partículas alfa y litio (*área de interés*). Pero para arribar a dicha conclusión se realizaron varias experiencias que apuntaban a encontrar el método óptimo de medición y cálculo del área de interés. Por ejemplo, se observó cómo se comportaba el detector cuando se apantallaba con cadmio. ¿Ambos cátodos entregarían el mismo espectro? También era necesario encontrar la mejor configuración electrónica para las nuevas condiciones (o sea con menos cantidad de boro).

Uno de estos ensayos fue el siguiente: la experiencia se planteó de forma de poder ver el espectro producto de la interacción del boro y los neutrones térmicos en un cátodo y simultáneamente ver el fondo en el otro cátodo, o sea sin muestra.



Por lo tanto, se midió con el detector sin apantallar (obteniéndose un espectro con cada cátodo) y luego apantallando el detector con la lámina de cadmio, anulando la acción de los neutrones térmicos, obteniéndose nuevamente los espectros de ambos cátodos en dichas condiciones.

Este ensayo permitió conocer qué tan efectivo es el apantallamiento del detector, donde simultáneamente se puede ver qué ocurre con el cátodo donde está la muestra más el fondo, respecto de donde solo hay fondo (P10 más ^{14}N y ruido electrónico), sin boro.

En la figura 1 pueden verse dos espectros superpuestos (producidos por cada cátodo), se trata de la medición donde el detector está sin apantallar y pueden observarse los efectos de las reacciones provocadas por el neutrón térmico. El cátodo que poseía la muestra de boro presenta un espectro con más conteo respecto el espectro que solo tiene las cuentas que aporta el nitrógeno.



Pero aquí se pregunta: ¿Qué podría ocurrir con neutrones no térmicos? ¿Podrían tener alguna interacción con la muestra o el mismo gas o los materiales del detector, que desconociéramos?

De la observación de la superposición de espectros en la figura 2, se llega a la conclusión que, con el detector apantallado, el cátodo con muestra de boro enriquecido se comporta igual que el cátodo sin muestra.

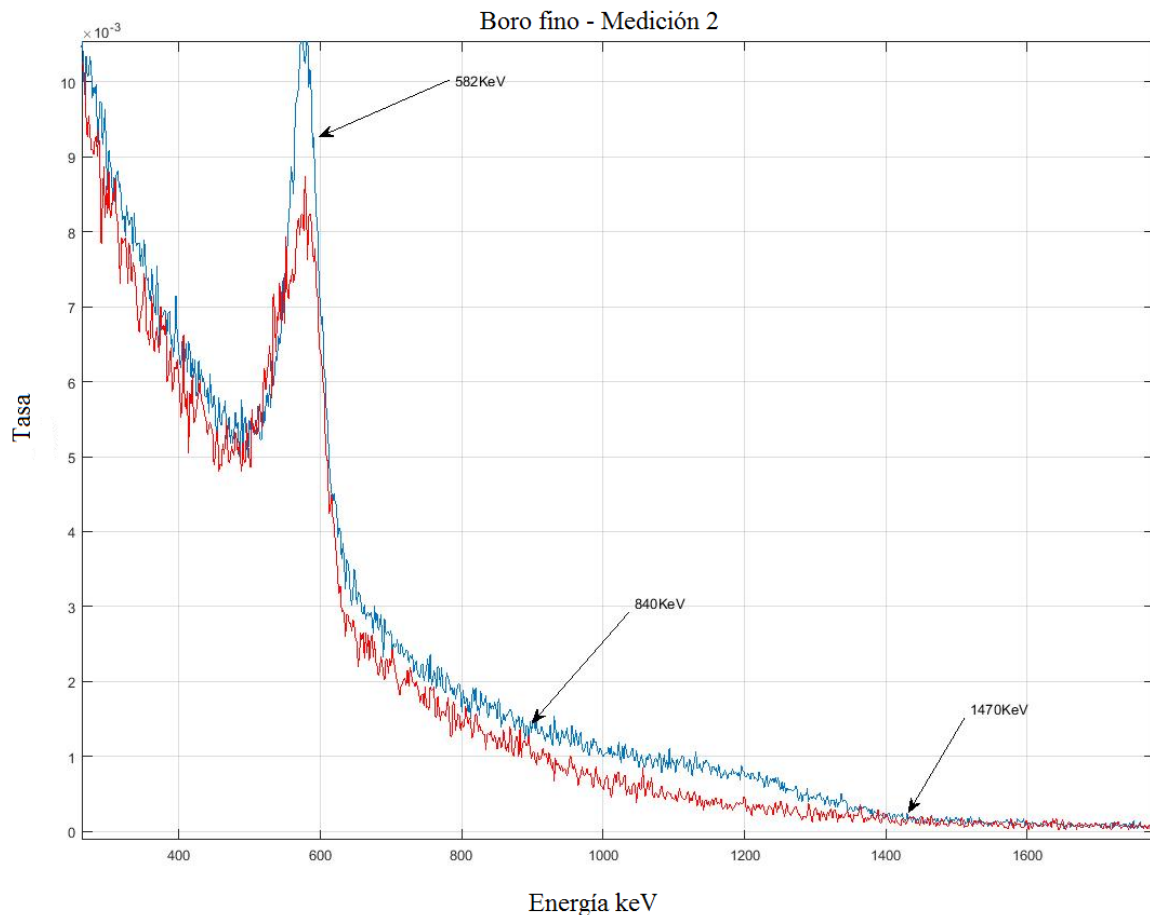


Figura 1. Superposición de espectros con muestra de ^{10}B (curva azul) y sin muestra de ^{10}B (curva en rojo). Boro fino se refiere a boro que fue sometido a dos etapas de molienda.

Superposición del espectro de ambos cátodos con el detector apantallado con Cd

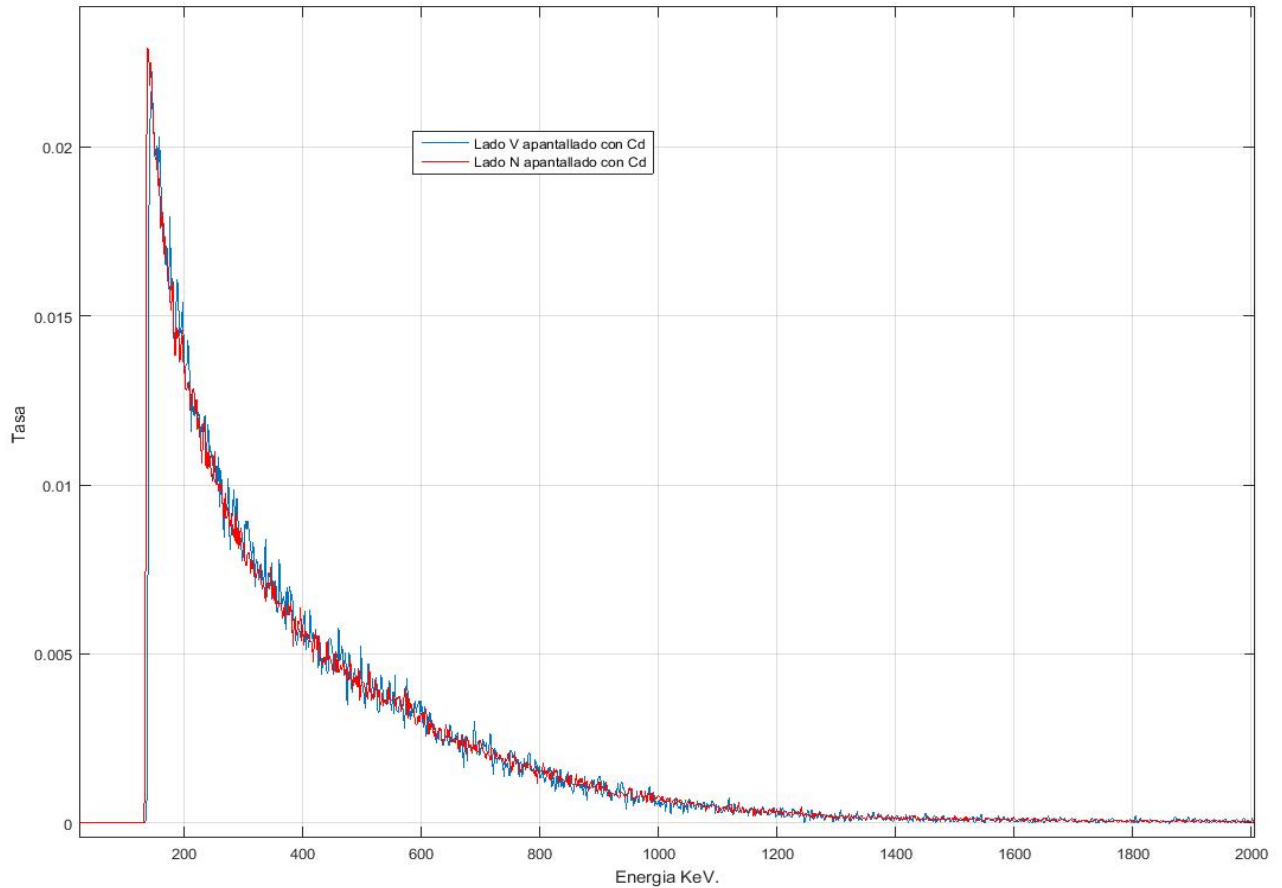


Figura 2. Superposición de los espectros con el detector apantallado. El cátodo identificado como (V) es el que posee la muestra de boro, el cátodo identificado como (N) hace de fondo de medición, sin muestra.



Lo que sigue es comparar el resultado de calcular el área de interés por dos procedimientos. Uno de ellos consiste en restarle, al espectro producido con la muestra en el cátodo, el espectro producido por el mismo cátodo con el detector apantallado con cadmio. El otro procedimiento sería restarle, al espectro producido por el cátodo con la muestra de boro, el espectro producido por el cátodo sin boro.

En las figuras 3 y 4 puede verse el espectro resultante en cada caso. Por simple inspección de los espectros, se comprenderá por qué se tomó la decisión de trabajar en la zona de alta energía para la cuantificación de las áreas de los espectros, se observa un espectro muy ruidoso para energías menores a 470 keV (aproximadamente).

Si algún cálculo o ensayo lo requiriese, se podría tomar la región del espectro que contiene al pico de protones, que generalmente se encuentre entre 470 keV y 670 keV. Esta región, también tiene aporte de alfas y litios, pero es muy inferior al aporte de protones.



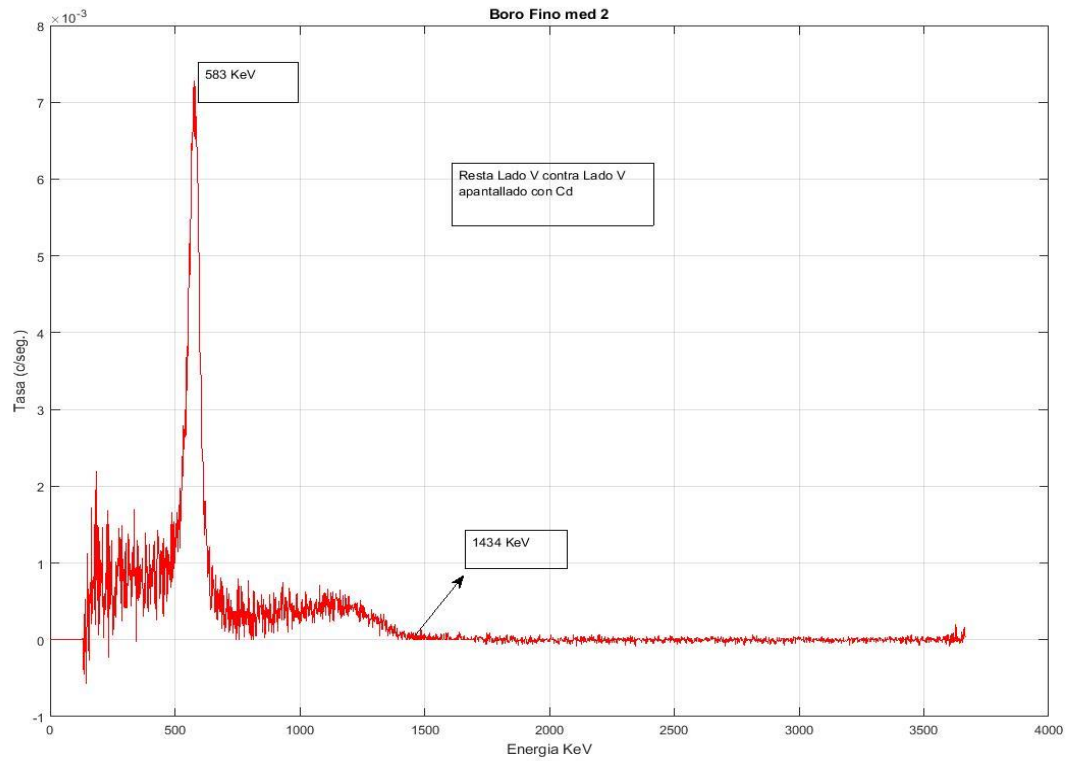


Figura 3. El espectro es el resultado de la resta de entre cátodo V (con muestra de boro) y cátodo V con el detector apantallado, (esto se indica más adelante como (V-Cd). Observar la relevante presencia del pico de protones. También puede diferenciarse la zona de interés donde tenemos aportes de partículas alfa y litio.



Como no se puede separar el aporte de unos y otros en esa porción del espectro, entonces no se considera esta región para el conteo de dichas partículas.

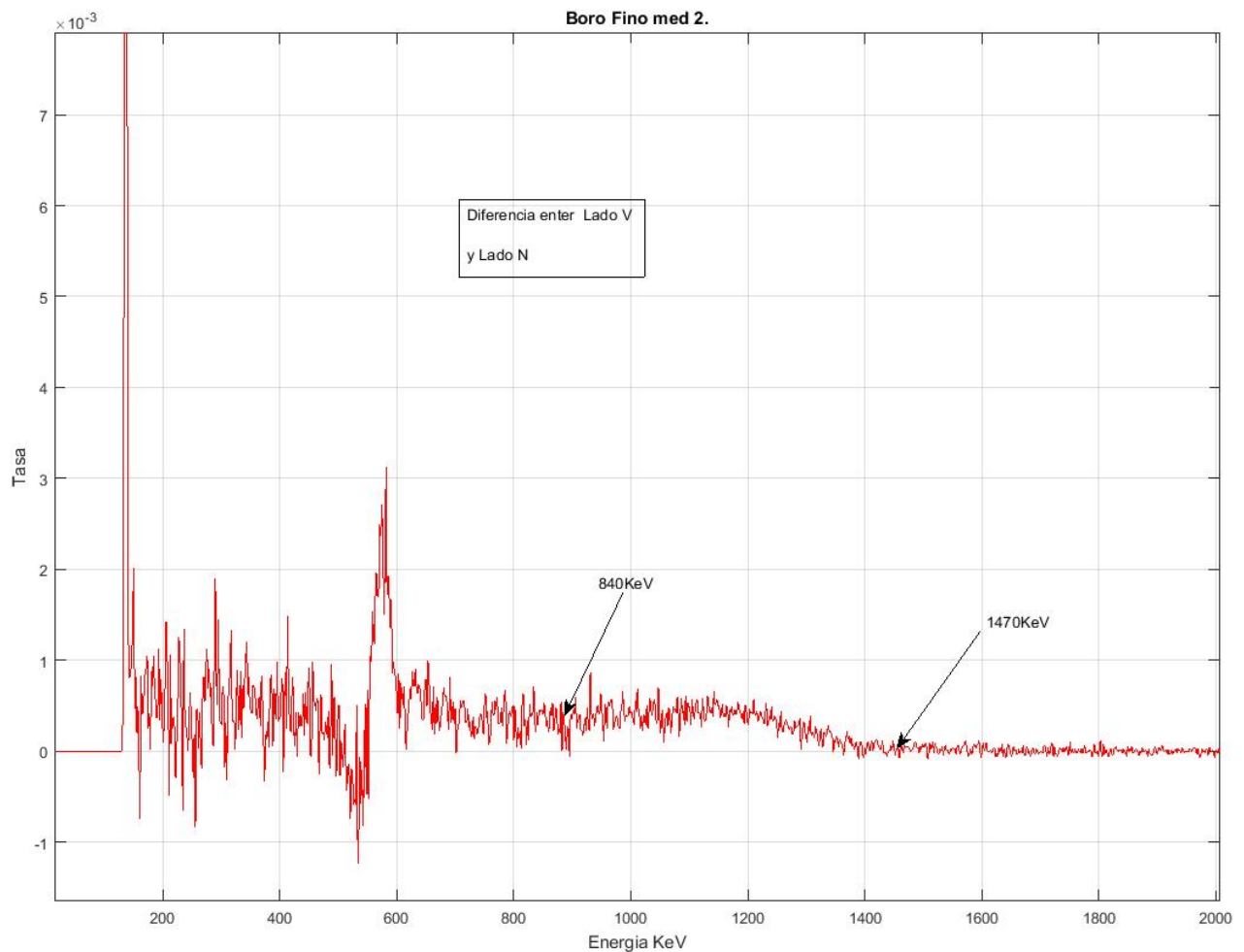
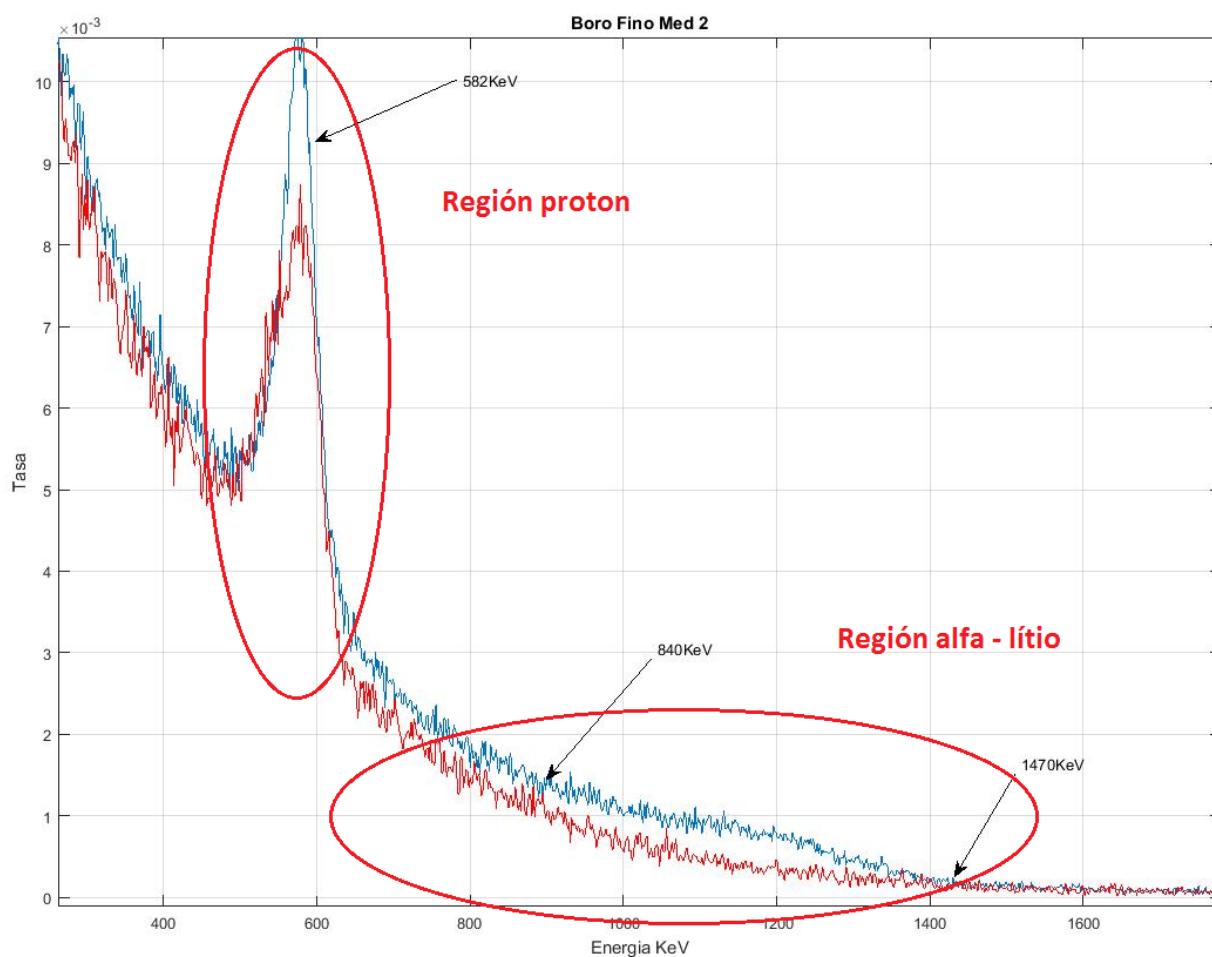


Figura 4. Aquí observamos el espectro que resulta de la diferencia del cátodo V (con muestra de boro) y el cátodo N, donde solo hay P10 con ^{14}N . Observar que el pico de protones es bastante menor que en el caso anterior. Más adelante se identifica esta diferencia de espectros como (V-N).

Entonces, en estas experiencias se registran solo las cuentas desde donde finalizaba el pico de nitrógeno hasta los 1750 keV. La figura 5 muestra la región de interés donde se calculó el área del espectro diferencia en cada caso.



La figura 5 muestra el espectro donde se separa las regiones para su posterior análisis.



La tabla 1 muestra una serie de tres mediciones donde se compara las áreas de interés (zona alfa litio) calculadas por ambos métodos. La discrepancia fue del 4 % como máximo entre ambos métodos de cálculo.

En la tabla se hace referencia a muestras denominadas Boro fino. Estas muestras son las mencionadas en el capítulo 5, se trata de boro metálico que fue sometido a una molienda importante (superior a la primera molienda realizada al comienzo de los ensayos), a la cual lamentablemente, no se pudo realizar la espectroscopia para conocer el tamaño final del grano.

ensayo	Tasa (Ctas/seg.)		Discrepancia %
	V-N	V-Cd	
Boro Fino 1	0.136	0.142	2.2
Boro Fino 2	0.162	0.172	3.1
Boro Fino 3	0.124	0.134	4.0
Inc. %	< 2%	< 2%	

Tabla 1. Comparación entre métodos de cálculo de áreas.

Boro fino se refiere a boro que fue sometido a dos etapas de molienda.



La discrepancia podría estar asociada a la facilidad o dificultad que se presenta al trabajar con ambos métodos al calcular las áreas. Restar el fondo de cadmio al propio cátodo, parece ser el método más adecuado, ya que permite distinguir adecuadamente el final del pico de protones, como puede verse comparando las figuras 3 y 4. Resulta más claro separar el pico de protones en el caso de hacer la resta (V-Cd) que hacer la resta directa entre diferentes cátodos (V-N).

Entonces se concluye que, en las próximas mediciones de este trabajo, se utilizará el método de apantallamiento de cátodos para el cálculo de áreas.



Apéndice E

Simulación de configuración de moderación modificada.

Como se mencionó en el capítulo 4, fue necesario modificar la configuración de moderación que poseía el laboratorio (L.I.D) debido al mayor tamaño del nuevo detector. Esto obligó a realizar una nueva determinación del flujo de neutrones térmicos disponibles en la nueva configuración.

Muy importante es observar las variaciones de este flujo de neutrones como función de la altura en la configuración de moderación, porque esta configuración no es simétrica respecto de la altura (eje z), pero sí lo es en sentido transversal (eje x), ver figura 1a. Por ejemplo, podría determinarse si el máximo flujo de neutrones térmicos se encuentra en la misma posición donde el detector posee el porta-muestra con el ^{10}B , ya que esto sería lo deseado.

Por tal motivo, se realizaron mediciones con cámara de fisión y luego se realizó una simulación Monte Carlo para completar la caracterización de nuestro sistema.

Para la configuración de moderación, el flujo térmico que llega al detector es mayormente dependiente de la altura (o sea a lo largo del detector, como se comentó), debido a cuestiones relacionadas a la distribución geométrica entre la fuente de neutrones, moderador y el detector. Recordar que nuestro sistema moderador es el de la figura 1b.

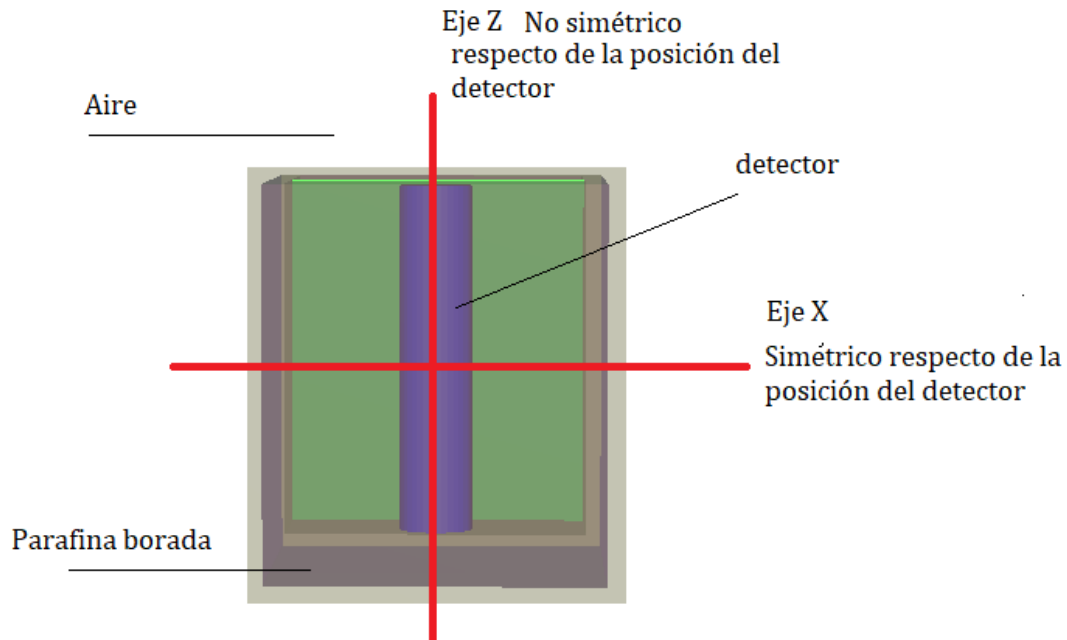


Figura 1a. Geometría de simulación, configuración de moderación.
Observar la simetría respecto del eje x, pero no respecto de z.



Con las consideraciones comentadas se tomaron mediciones con una cámara de fisión marca CENTRONIC, modelo FC165/1000, (figura 2) para conocer el perfil de neutrones térmicos en altura dentro de la zona detector. El procedimiento llevado a cabo fue el siguiente: ubicando la cámara en la posición donde se ubica el contador proporcional, se realizan mediciones de flujo en posiciones definidas moviendo la cámara en altura. Los valores de flujo térmico en función de la altura obtenidos se muestran en la tabla 1.



Figura 1b. Configuración de moderación utilizada.



Figura 2. Cámara de fisión marca Centronic tipo FC165/1000

Distancia al piso del blindaje (cm)	Flujo térmico (nV)	Porcentaje (%)
12.0	679	100
16.0	645	95
24.0	528	78
30.0	412	61
35.0	423	48

Tabla 1. Mediciones con cámara de fisión.
Incertidumbre en los valores de flujo (<10 %).
Incertidumbre en la longitud 0.2 cm.

Con la información experimental obtenida, más el conocimiento de las dimensiones geométricas y materiales del sistema moderador, se realiza una simulación Monte Carlo (con el código MCNPX) del conjunto: Cámara de fisión - moderador - fuente de neutrones. Entonces mediante el tally 4 de MCNPX (estimador de flujo en volumen), se estima el flujo que arriba a la cámara en función de la posición de la misma, representando la experiencia de medición hecha con la cámara de fisión.

En la figura 3 se muestra la imagen de la simulación, con la que se trabajó para obtener la curva de la variación de flujo de neutrones como función de la altura. Allí se puede observar la simulación de la cámara de fisión, como un cilindro pequeño junto con el moderador de parafina (la placa de color azul en mitad del cubo). La fuente de neutrones se simula como una fuente puntual, ubicada a una altura de 18 cm, al otro lado de la parafina.

Al primer valor de estimador de flujo obtenido en la altura más baja (12 cm), que es donde el flujo es mayor, se le atribuye el valor de 100 % (a modo de convención para luego referenciar los demás valores respecto de éste), entonces, los demás valores de estimador de flujo van decreciendo a medida que se va levantando la cámara de fisión en la simulación respecto del piso, al igual que ocurrió en las mediciones.

A modo ilustrativo se muestra la acción del moderador que reduce la energía de los neutrones en la región donde se ubica el detector. La figura 4 muestra el espectro de neutrones en la posición del detector habiendo simulado el moderador como si fuera de aire. O sea, en vez de una placa de parafina, una placa de aire.

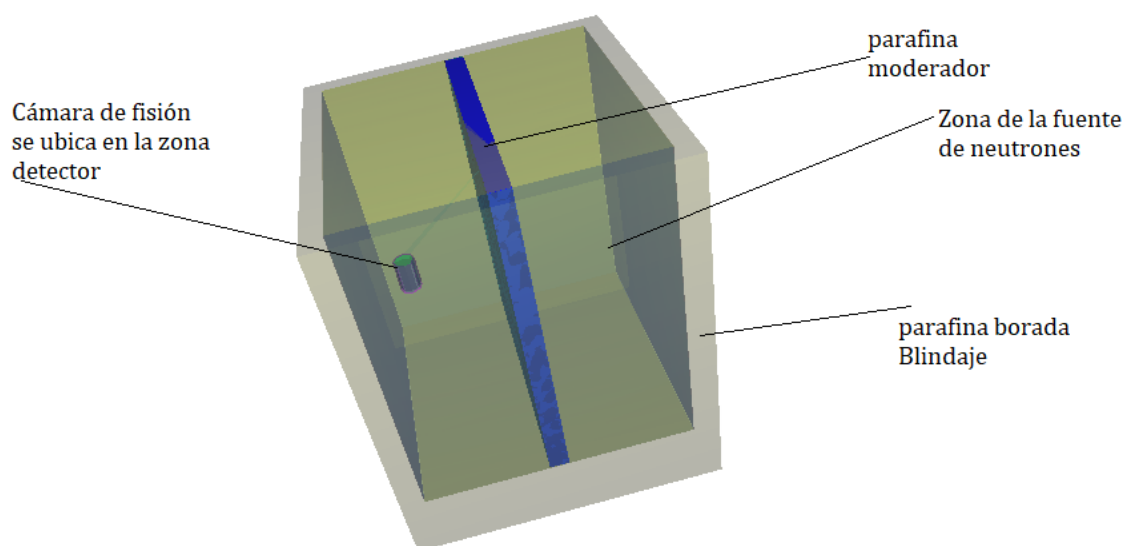


Figura 3. Geometría de simulación. Cámara de fisión y configuración de moderación. La parafina separa la fuente de neutrones de la cámara de fisión.



La figura 5 muestra la misma configuración, pero en este caso se modela la placa de parafina. Observar la aparición de neutrones de baja energía (en especial <1 eV.) en gran cantidad respecto del gráfico 1.

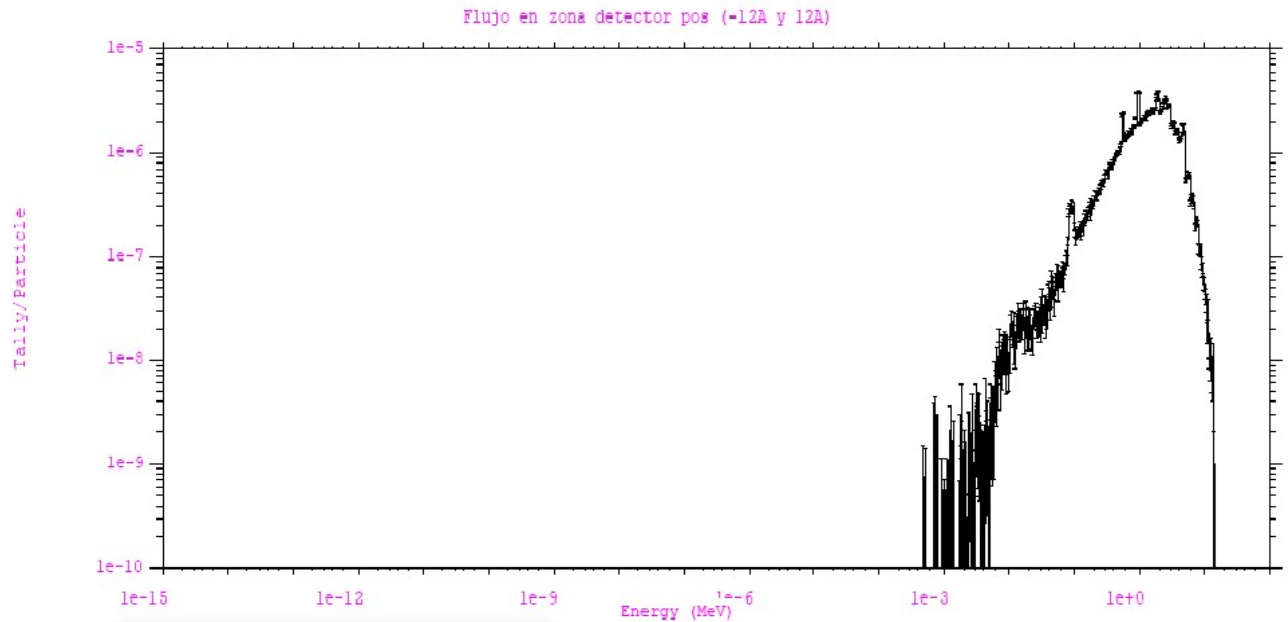


Figura 4. Espectro de neutrones sin la acción del moderador.

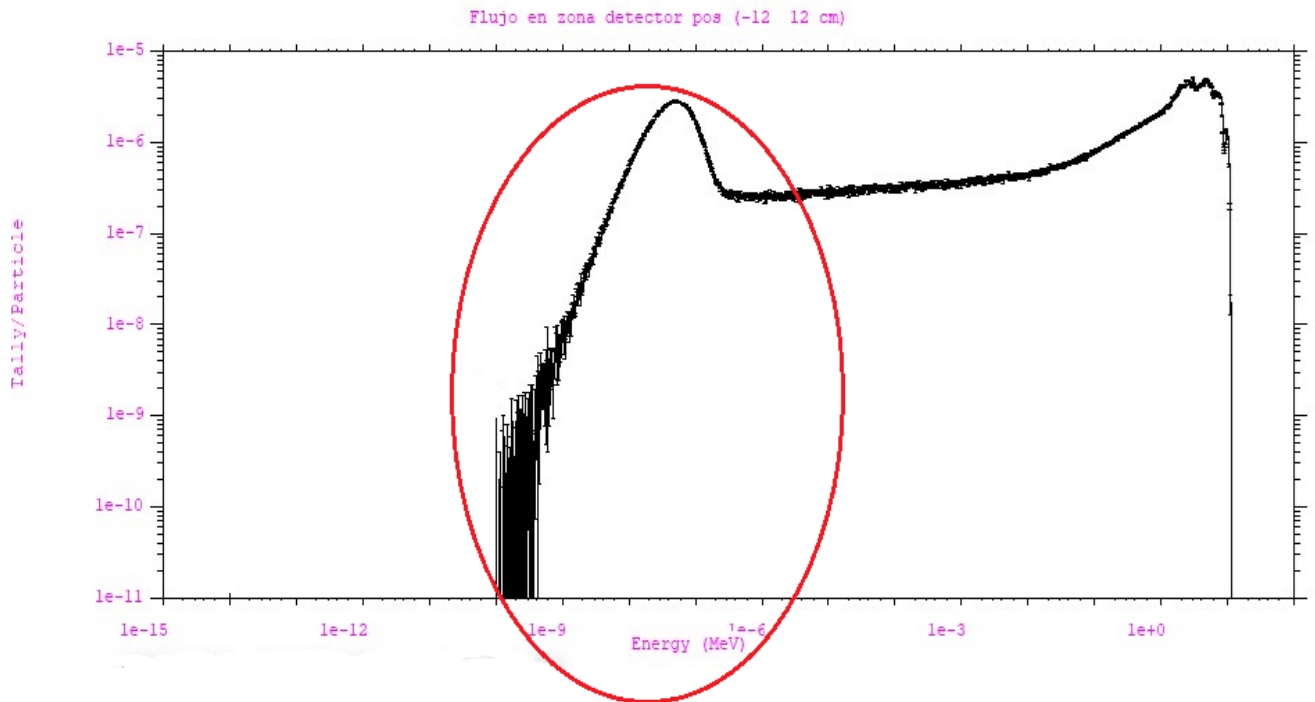


Figura 5. Acción del moderador aportando neutrones de baja energía, observar la diferencia contra el gráfico superior, respecto de no usar parafina.

La tabla 2 muestra en comparación los valores experimentales con los obtenidos de la simulación. Las discrepancias resultan ser inferiores al 3 %. Ver figura 6.

Distancia al piso del blindaje (cm)	Flujo térmico Experimental(nv)	Referencia para el cálculo	tally 4	Factor de multiplicación	Flujo simulado Con MC
12	679	679	9.48E-05	7.16E+06	679
16	645		8.85E-05		634
24	528		7.49E-05		536
30	412		6.12E-05		438
35	323		4.90E-05		351

Tabla 2. Datos experimentales y de simulación.

Aquí nV equivale a neutrones.cm⁻².seg⁻¹.

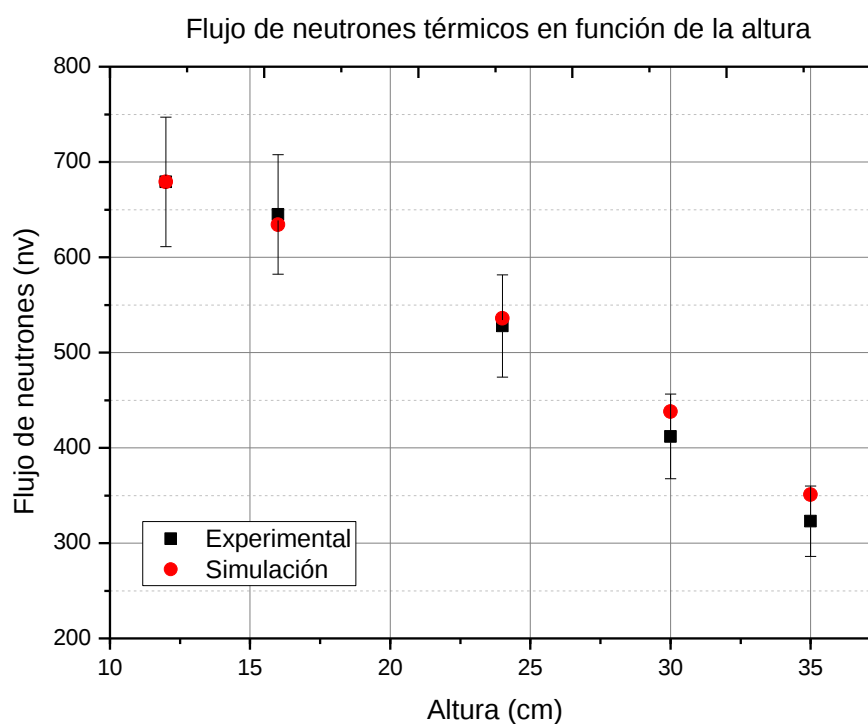


Figura 6. Superposición de datos experimentales y simulación. Los valores de simulación se corresponden al tally 4 donde se usó corte de energía <0.5 eV.

En esta situación se puede concluir que se tiene representada aceptablemente la configuración de moderación en nuestra simulación. Las mediciones realizadas permiten asociar el estimador de flujo (obtenido de la simulación) a un valor experimental de flujo de neutrones térmicos, resultado que será de gran utilidad en el capítulo 6.

Ahora se puede agregar a la simulación la geometría del detector, recordar la figura 1 (al comienzo del apéndice), allí se observa el detector dentro de la configuración. Representando esta misma situación en la simulación, se podrá estudiar la situación que se plantea a continuación.

Puede surgir un interrogante acerca de la relación entre el flujo por unidad de volumen en el cuerpo total del detector (en especial los cátodos) y el que arriba a la zona del porta-muestra. Esta relación se denomina como factor $^{14}\text{N} - ^{10}\text{B}$.

Esto es porque, como se comentó en los primeros capítulos, al gas P10 se le agregó un 6% de nitrógeno gaseoso para tener un pico de referencia de energía en el espectro, producto de la interacción del nitrógeno y el neutrón térmico.



Debido a que el gas se distribuye uniformemente en el cuerpo del detector, protones provenientes de cualquier parte del detector (dentro del cátodo) aportan al espectro. Por otro lado, el ^{10}B reacciona solo cuando los neutrones térmicos llegan a la zona del porta-muestra. Otra pregunta que surge es si se realiza el cociente flujo/volumen para cada región, ¿se obtendrán resultados comparables? (ver figura 7).

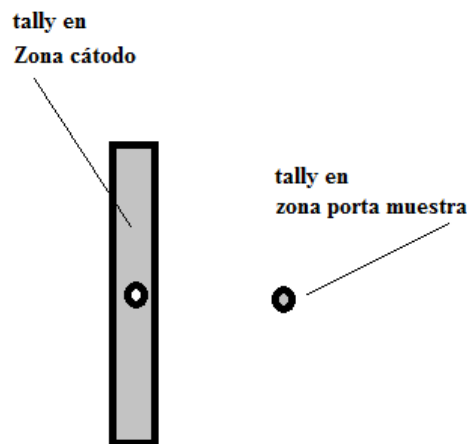


Figura 7. Esquema de las regiones donde se calculan los estimadores de flujo.

Para conocer esta relación, se introduce el detector en la simulación y se calcula el estimador de volumen en todo el cuerpo del detector, Figura 8 y luego el estimador es calculado justo en la región donde se encuentra la muestra, en este caso, la celda es la muestra.

El resultado puede verse en la figura 9, donde se superponen las curvas de cada estimador calculado, allí se seleccionó los neutrones de energías menores a 0.5 eV que son los de muy baja energía (neutrones de interés).

En el caso de la región del porta-muestra, como el volumen donde se aplica el tally es menor respecto del correspondiente al cuerpo total del detector, esto explica por qué en un caso la curva que representa al estimador en el porta-muestra es de comportamiento irregular respecto de la que representa el estimador en los cátodos.

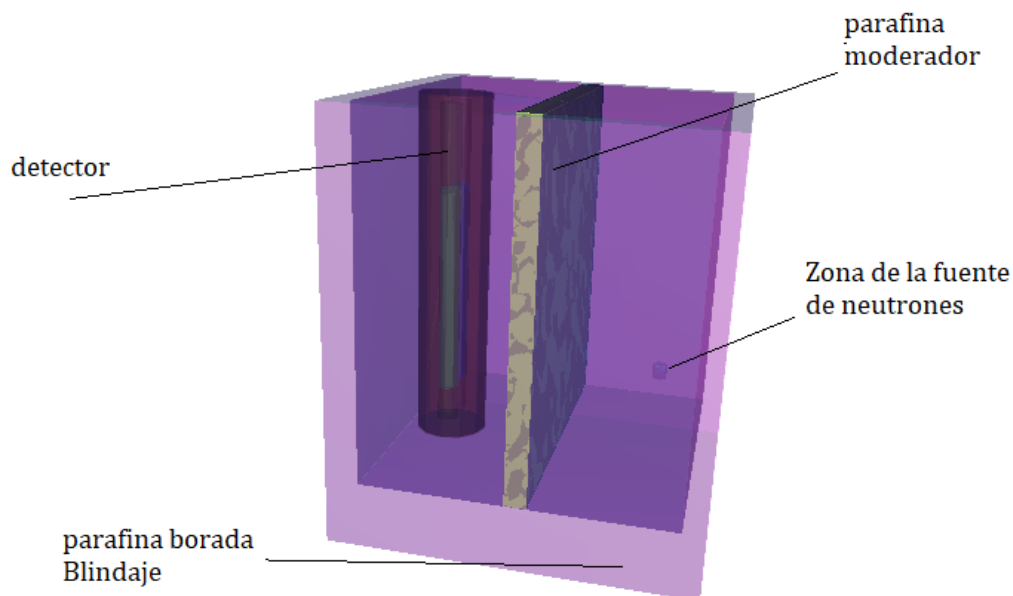


Figura 8. Simulación del detector en el sistema moderador

La superposición de las curvas indica que el área es prácticamente la misma para ambos casos. Esto indicaría que el flujo promedio en el volumen del cuerpo del detector y en el porta-muestra sería prácticamente el mismo, o sea el factor entre flujos para las reacciones de ^{14}N vs. ^{10}B , estaría próximo a 1 en esta configuración.

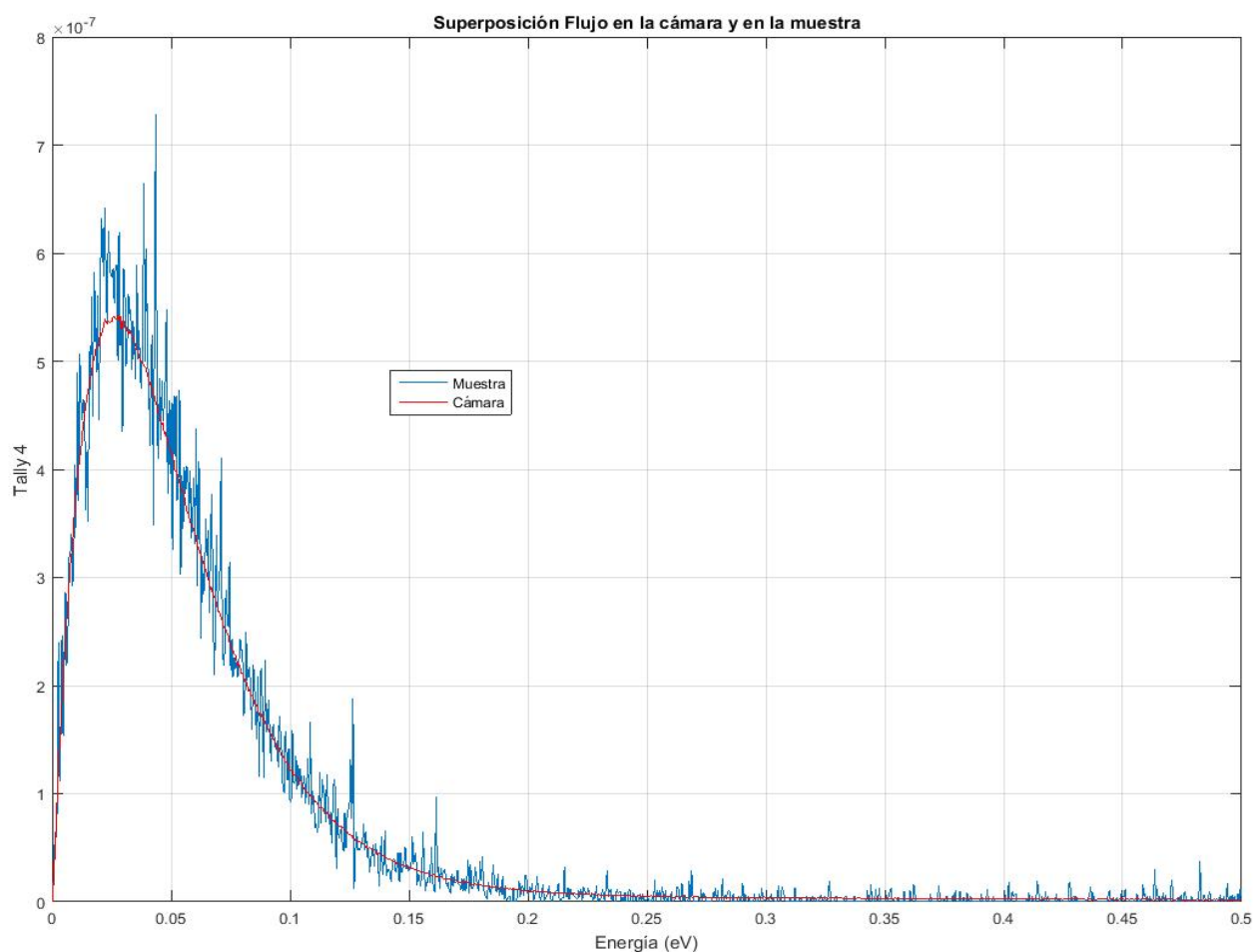


Figura 9. Tally 4, estimador de flujo en el cátodo y el porta-muestra, superposición.

Apéndice F

Detalles constructivos relacionados a la fabricación del detector

En este apartado se realizan algunos comentarios acerca de situaciones que se fueron presentando durante la construcción del detector. Cabe destacar que se necesitó personal capacitado en el área técnica para la construcción. El **Instituto Dan Beninson** brindó su personal técnico y de igual forma lo hizo el sector **PPFAE** que además aportó la maquinaria necesaria para el mecanizado de piezas. La figura 1 muestra el primer croquis del detector.

Por cuestiones comentadas en el capítulo 4, el objetivo era construir un detector con doble cátodo y doble ánodo (idénticos uno al otro), con sistema de guarda y además, que permitiera ser conectado a tensión negativa (esto último, copiando el detector de un solo hilo que estaba siendo usado). La alta tensión se conectaría directamente al detector, sin pasar por el pre-amplificador, o sea, solo pasaría la señal por el pre-amplificador, esto con la expectativa de obtener una señal más limpia.

Su diseño debía admitir que pudiera trabajar a unas tres atmósferas (de ser necesario) y soportara tensiones de unos -3000 V a dicha presión (esto se pensó inicialmente). Los materiales debían ser adecuados para que el equipo pueda trabajar ante un flujo de neutrones térmicos. Esos fueron los conceptos iniciales que sirvieron de punto de partida.



Los materiales necesarios para la construcción fueron provistos por los laboratorios (L.I.D), Laboratorio (L.M.R) y PPFAE.

Las piezas más complicadas de fabricar del detector fueron sin duda las tapas exteriores. Recordar que el cuerpo exterior está formado por tres piezas: un cilindro y dos tapas. Estas deben cumplir con la condición de ser estancas respecto del ingreso o egreso de gas al detector y soportar presiones superiores a la atmosférica.

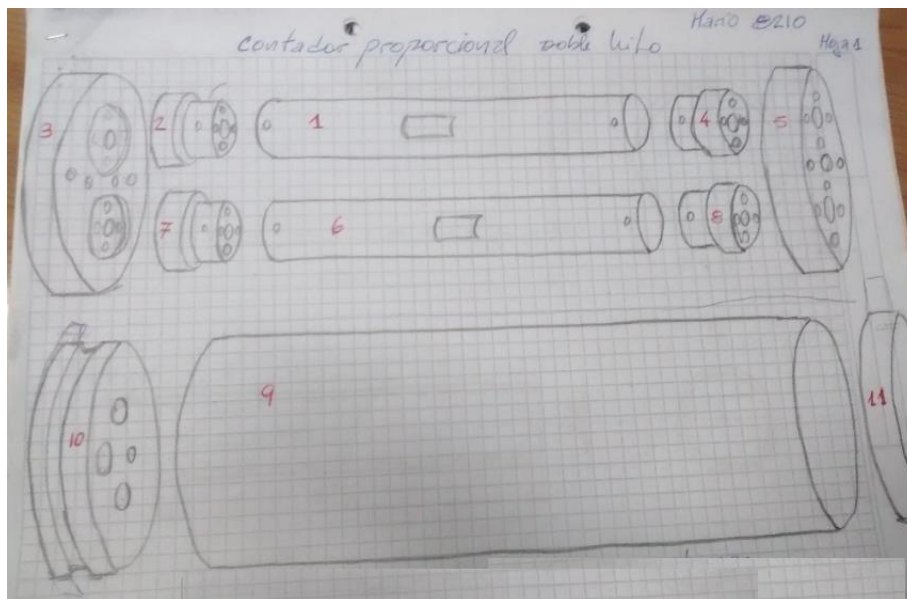


Figura 1. Croquis inicial del detector. Este primer diseño no sufrió grandes cambios respecto del modelo final fabricado.



La tapa superior (la pieza más complicada de todas) debe soportar el desarme periódico ya que la muestra va colocada en su interior. Al mismo tiempo, lleva la conexión de la alta tensión, las dos salidas de señal y la válvula de carga de gas.

Parte de su construcción puede verse en las figuras 2 y 3 en las instalaciones de PPFAE.



Figura 2. Torneado de las tapas de la cámara externa, las piezas más complicadas de elaborar, debido a la necesidad de incluir conectores pasantes y la válvula de cierre, además de los O-ring para el cerrado hermético.

Las tapas llevan un anillo de goma en su borde, del tipo o-ring, el cual sella la tapa con el cuerpo cilíndrico lateral. El canal que contiene el anillo de goma se realiza con el torno, y se trata de un mecanizado de precisión para que cumpla con las necesidades de estanquidad requeridas.



Figura 3. Cilindro de aluminio laminado con el que se construyeron las tapas exteriores.

El detector también posee partes internas que requieren mecanizado, como la pieza que forma el sistema de guarda del detector (figuras 4 y 6), la cual a su vez debe sostener los cátodos en el interior (figura 5) del detector. Cada cátodo se monta sobre dos cilindros de nylon en cada extremo, los que además de fijarlos, hacen de aislantes del cátodo. Por esta pieza también deben pasar las conexiones para la salida de la señal.



Figura 4. Mecanizado de partes internas del detector



Figura 5. Pieza interna que forma el sistema de guarda y además fija los cátodos.



Figura 6. Cátodos dentro del cilindro externo aun no ensamblados.



La figura 7 muestra el módulo interno del detector. Este posee los dos cátodos independientes, cada uno con su ánodo en el interior. Además, las mismas piezas que fijan el sistema hacen de sistema de guarda que junto con la doble varilla roscada comprimen los cátodos dando rigidez ante la futura manipulación que se requerirán para los cambios de muestra.

Finalizada la tapa superior (el primer modelo de tapa) se realizó el montaje de la válvula para carga de gas.



Figura 7. Sistema de doble cátodo con sistema de guarda. Modelo actual.

En un principio se pensó en hacer un sistema que permitiera fácilmente intercambiar la válvula para futuras reparaciones. Resultó de diseño inadecuado porque no resistió las pruebas de fuga de gas. Figura 8.



Figura 8. Primer diseño para el montaje de la válvula de gas en la tapa superior. La misma fue descartada por no pasar las pruebas de vacío.



Las tapas laterales fabricadas inicialmente, no pasaron las pruebas. Estas tapas fueron realizadas mediante fundición de aluminio, pero no soportaban la presión de vacío por la porosidad de la estructura, por lo tanto, hubo que hacerlas con aluminio laminado el cual fue mecanizado con el torno. Luego de las modificaciones en la tapa del detector y de la forma en que se fijaba la válvula de llenado de gas, el modelo superó las pruebas de fuga de gas (pruebas que se realizan con helio). Figura 9.



Figura 9. Diseño final para el montaje de la válvula de gas.



Otro de los desafíos que hubo que superar fue la fabricación de un sistema de “conector pasante”, o sea un conector que conduzca la señal con el menor ruido posible desde el interior del detector hacia el exterior y simultáneamente también mantenga la condición de estanqueidad necesaria. La figura 10 muestra algunos de los diseños que se intentaban como solución. La solución más adecuada resultó ser más parecida al croquis de la izquierda, la pieza completa tiene como conector principal una pieza de bronce, una de teflón para que haga de aislante eléctrico y un anillo tipo *o-ring* de goma para garantizar la condición de estanqueidad.

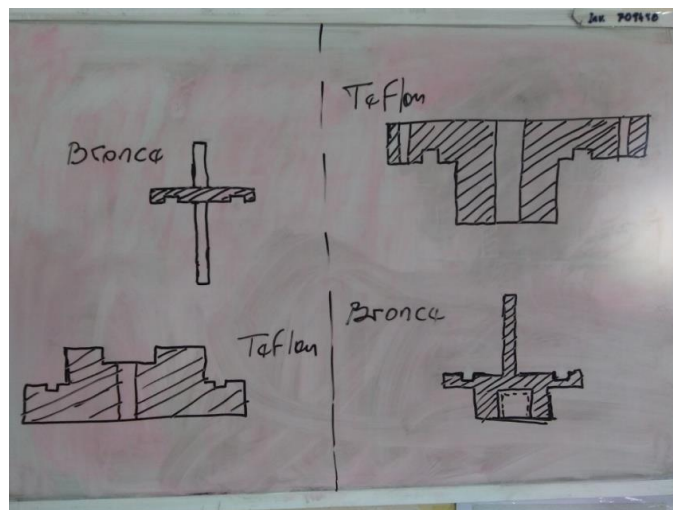


Figura 10.a. Croquis en pizarrón sobre los diferentes modelos de conector pasante que se pensaban.

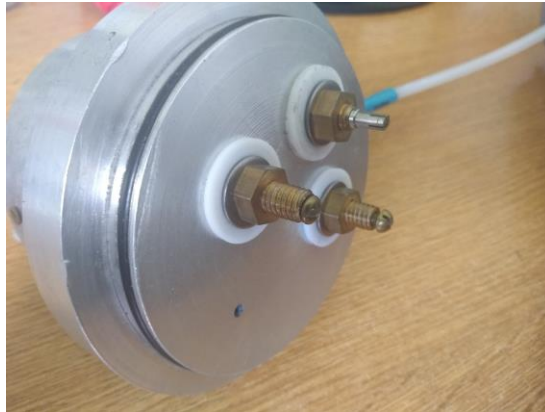


Figura 10.b. Conectores pasantes instalados en la tapa superior, como aislante eléctrico se usa teflón, se aprecian los dos conectores de señal y el de alta tensión.

La figura 11 muestra una foto superior del detector, donde pueden verse los conectores pasantes. También se observan los cables de señal y de alta tensión.



Figura 11. En esta etapa hubo problemas con los cables que salían del detector.



Las pruebas iniciales con el detector haciendo mediciones, demostraron que los cables que salían de los conectores pasantes, a pesar de estar mallados, resultaron transmitir ruido a la señal, posiblemente debido a inconvenientes en las soldaduras.

Diferentes acciones se realizaron para mejorar el sistema de conexión, entre los cuales se comenta a continuación lo más relevante:

Se revisó el conexionado de los conductores realizando mejoras en las soldaduras, se optó por conductores más cortos con una mejor aislación, de manera que quedasen aislados entre sí y protegidos con mallados metálicos que se conectan a tierra, de manera que se genere un efecto de jaula de Faraday para aislar los conductores entre sí.

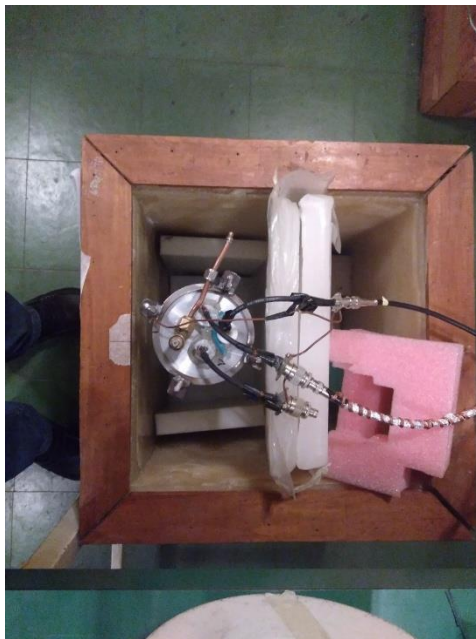


Figura 12. Primeras pruebas con el detector terminado.



Las mejoras fueron comprobadas con mediciones. Este modelo es el que prevalece actualmente. Figura 13.

Además del sistema de o-ring que poseen las tapas del detector para hacer de cierre estanco, el equipo posee cuatro tornillos espárragos a modo de sistema de sujeción para soportar la presión sobre las tapas (si el detector trabajase en sobre presión) ubicados según indica la figura. Como se comentó en el capítulo 4, se hizo una solicitud de patente por este equipo ante el sector de patentes de CNEA, en donde luego de una evaluación previa y estudio de lo presentado, se elaboró conjuntamente con el sector la memoria descriptiva del equipo y se comenzó los trámites para la solicitud de la misma a los organismos internacionales pertinentes. La misma se encuentra en trámite.



Figura 13. Detector con los cambios en los conectores y sistema de mallados a tierra.

Apéndice G

Estimación del equivalente de dosis ambiental $H^*(10)$

Cuando surgió como una de las conclusiones del trabajo la necesidad de disponer un nuevo moderador para aumentar la cantidad de neutrones térmicos disponibles para la interacción con el ^{10}B , además de mejoras en el sistema moderador, también se podía aumentar la cantidad de fuentes y así aumentar aún más los neutrones térmicos en la zona detector. Con el aumento de la cantidad de fuentes, surgió la pregunta: *¿Qué equivalente de dosis ambiental se tendría en una sala de medición con un moderador que posee una cierta cantidad de fuentes en su interior?* A partir de aquí se planteó una situación posible de trabajo para luego calcular la dosis equivalente ambiental. De las pruebas que se hicieron mediante simulación Monte Carlo, surgieron las dimensiones finales del bunker, o sea, el espesor de las paredes de concreto, el agregado de una cobertura de plomo y una placa envolvente de Cadmio para atenuar los rayos gamma producidos dentro del moderador y capturar neutrones térmicos que ya se encuentran muy alejados de la zona detector.

La configuración de fuentes elegidas para esta simulación es de dos fuentes. Esto es porque se pensó en un número que sea razonable de conseguir en la institución.

La actividad elegida es de 5 Ci, esto es en parte porque se trabajó con una fuente de 5 Ci en las experiencias y además, diferentes trabajos de consulta bibliográfica, también hacen referencia a fuentes de 5 Ci para sus cálculos.

La vigilancia ambiental o de área se realiza generalmente midiendo la tasa de dosis equivalente en un lugar dado y en ausencia de personal. Es sabido que el propio cuerpo de la persona expuesta puede contribuir con la radiación secundaria generada en este mismo, o sea aumenta la dosis equivalente efectiva. Este efecto fue estimado hace varias décadas atrás con el experimento de la esfera ICRU, Ref. [25].

El equivalente de dosis ambiental $H^*(d)$

El equivalente de dosis ambiental $H^*(d)$ en un punto de un campo de radiación, es la dosis equivalente que se produciría por el correspondiente campo alineado en la esfera ICRU, a la profundidad d y sobre el radio opuesto a la dirección de alineación del campo.

El experimento tiene asociada la suposición que el campo de radiación, al menos sobre toda la esfera, exhibe las mismas características que el campo de radiación detectado por el instrumento. Esto define el concepto de campo expandido. Es un campo uniforme que tiene en cada punto del espacio la misma tasa de fluencia y la misma distribución angular y en energía que la existente realmente en el punto donde se hizo la medida, es decir en el punto de referencia, en ausencia del receptor.

Definiciones:

a) La esfera ICRU (International Commission on Radiation Units and Measurements, 1980) es una esfera de 30 cm de diámetro, hecha de un material equivalente a tejido de densidad 1 g.cm^{-3} y con una composición de 76.2 % de oxígeno, 11.1 % de carbono, 10.1 % de hidrogeno y 2.6 % de nitrógeno. Ver figura 1.

b) La profundidad recomendada (d) por la ICRP (ICRP: International Commission on Radiological Protection) para una vigilancia en unidades de $H^*(d)$ es de 10 mm, y $H^*(d)$ se puede escribir como $H^*(10)$.

c) Un instrumento que tenga una respuesta isotrópica y este calibrado en unidades de $H^*(10)$, medirá H^* en cualquier campo de radiación que sea uniforme sobre las dimensiones del instrumento.

d) La definición de H^* requiere que el diseño del instrumento tenga en cuenta el efecto de retrodispersión.

Ref. [26].

El experimento proporcionó un conjunto de coeficientes asociados al tipo de radiación incidente y la energía de la misma. Asociando estos coeficientes con el flujo de partículas en una determinada región (esto lo determinamos con los estimadores de flujo de los programas de simulación), podemos obtener una estimación de la dosis equivalente ambiental. Según la bibliografía consultada, incertidumbres inferiores al 10 % son aceptables para este cálculo.

Desde la década del 70 hasta la actualidad, existen reportes periódicos de ICRP e ICRU, y son motivo de constante consulta para la comunidad científica.

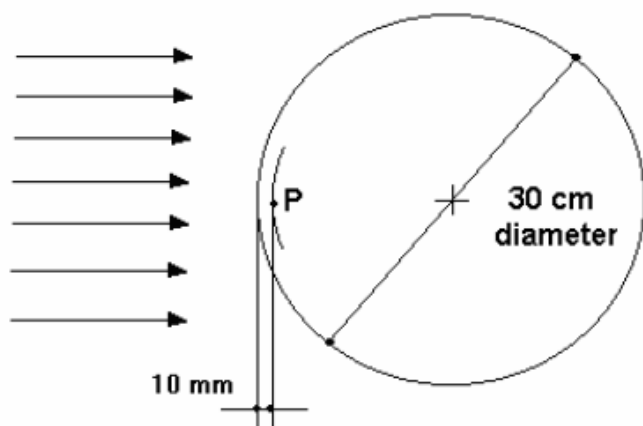


Figura 1. Esquema de la esfera ICRU y el campo uniforme que llega a ella. Ref. [26].

Modelado de la fuente

Para estimar la equivalente de dosis ambiental usaremos el código Monte Carlo PHITS, (Particle and Heavy Ion Transport code System), es necesario simular la emisión de una fuente de $^{241}\text{AmBe}$, para que los valores de dosis obtenidos reflejen una posible situación real de trabajo.

Si bien para las simulaciones de flujo de neutrones se usó el código MCNP, en este caso, para las estimaciones dosimétricas se utilizó PHITS. Esto porque resultó más directa la utilización de este código y la introducción de las librerías necesarias para los cálculos, respecto de MCNP. Sin embargo, también se podría usar este último para el mismo fin.

Entonces, se opta por simular fuentes de 5 Ci y recurriendo a la literatura se observa que las fuentes vienen selladas en un sistema de doble cápsula que incluyen acero inoxidable y otras aleaciones algo complejas de simular sin la información exacta. Sin embargo, es posible aproximar nuestra fuente, si se conoce la emisión de la misma (que no es lo mismo que la actividad). Entonces, para simplificar estas cuestiones constructivas, simplemente, se simula una fuente puntual y se aplicará la emisión de una fuente real.

Para simular la emisión de una fuente de $^{241}\text{AmBe}$ de 5 Ci, es utilizada a modo de ejemplo la indicada en la Ref. [27] donde se especifica la emisión de la fuente como $2.2 \cdot 10^6 \text{ n.s}^{-1}.\text{Ci}^{-1}$.

Esto indica que para una fuente de 5 Ci, se tendría una emisión de $1.1 \cdot 10^7 \text{ n.s}^{-1}$. Entonces esta es la emisión que tomaremos para cada una de nuestras fuentes. La ubicación de las mismas será simétrica respecto del centro del moderador, ubicadas en la posición que maximiza el flujo térmico en la zona detector, como se comentó en el capítulo 6.

La forma del moderador estaba prácticamente definida antes de hacer las simulaciones. Con la ayuda de las mismas, se determinó el tamaño de los blindajes (espesores) mediante prueba y error hasta lograr que la dosis $H^*(10)$ mantenga valores por debajo de los 5 uSv.h^{-1} , en el momento que las fuentes están operando (figura 3). Luego esta misma debe reducirse a menos de 1 uSv.h^{-1} cuando las fuentes se encuentran en el bunker, zona de no operación (figura 5). La figura 2 muestra un esquema del moderador y bunker en corte longitudinal.

Aquí se deja indicada implícitamente la idea que un sistema mecánico transporte las fuentes desde la zona de depósito blindado hasta la configuración de medición y una vez completada la misma, mecánicamente se vuelven a guardar las fuentes descendiendo hasta el bunker.

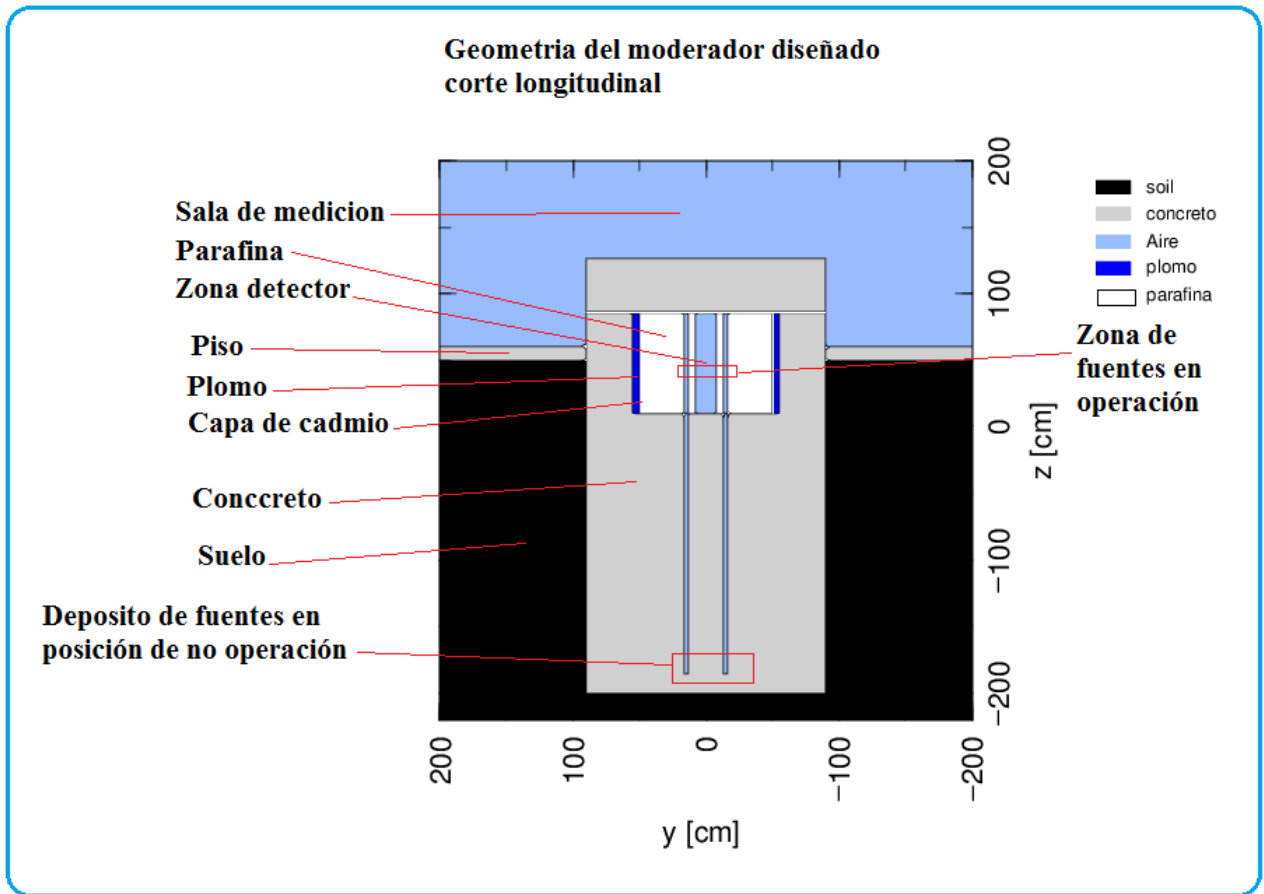


Figura 2. Esquema del moderador y bunker en corte.



Para asociar una cierta dosis a una ubicación espacial, al igual que en el capítulo 6, fue usado un estimador de flujo como función de la posición (mesh Tally), pero en esta ocasión del código PHITS. Para que el código entregue dosis $H^*(10)$ se utiliza una librería del programa que posee ya cargados los coeficientes que asocian el flujo por cm^2 de las partículas con la dosis equivalente en términos de $H^*(10)$ que producirían las mismas según su energía y tipo, tanto para neutrones como para fotones.

Entonces, en este caso, se simulan dos fuentes de neutrones (con energías correspondientes al espectro del $^{241}\text{AmBe}$) que emiten $1.1 \cdot 10^7 \text{ n.seg}^{-1}.\text{cm}^{-2}$, el código estima una cantidad de flujo que arriba a cada sector de la mesh (ubicación espacial) tomando en cuenta los procesos físicos devenidos en las historias generadas por el código y luego aplicará los factores de conversión correspondientes de acuerdo al tipo de partícula y las energías con la que están arribando a la ubicación para luego entregar la dosis $H^*(10)$ asociada.



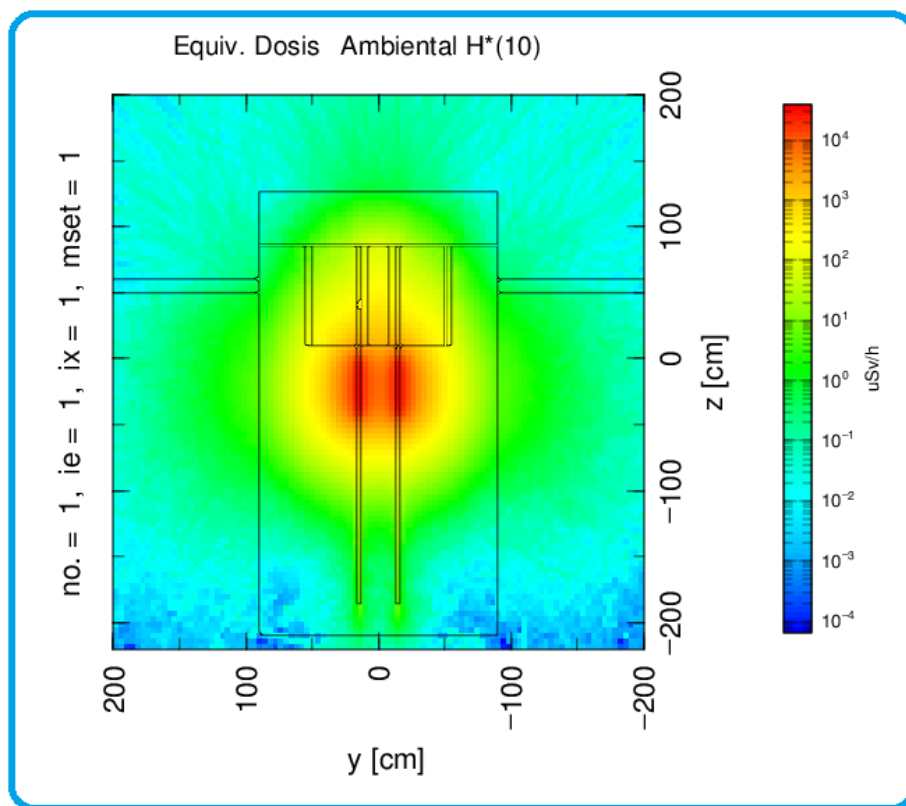


Figura 3. Simulación del equivalente de dosis ambiental producida por neutrones y fotones con las fuentes en operación.

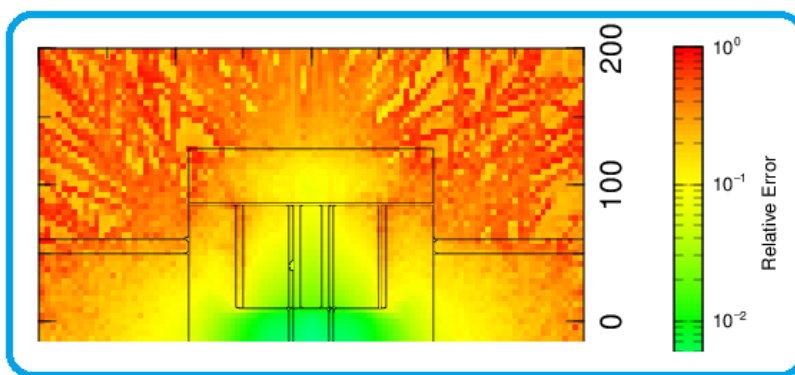


Figura 4. Incertidumbre en la mesh, entregada por el programa PHITS.

Observar que en la región que corresponde a la sala de medición, la dosis es inferior a 1 uSv.h^{-1} , cuando las fuentes están en el bunker.

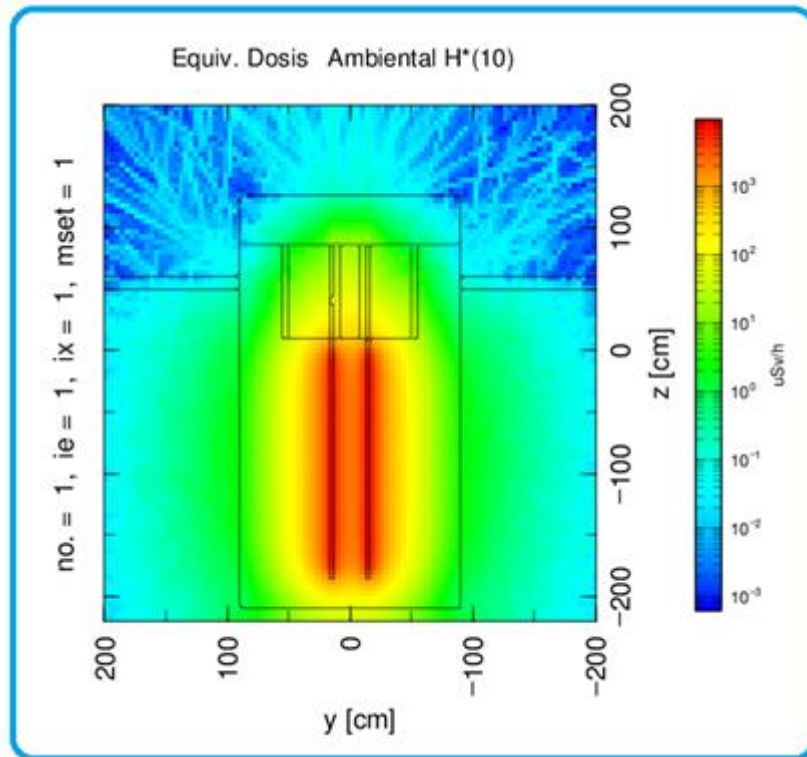


Figura 5. Simulación del equivalente de dosis ambiental producida por neutrones y fotones con las fuentes en el bunker.

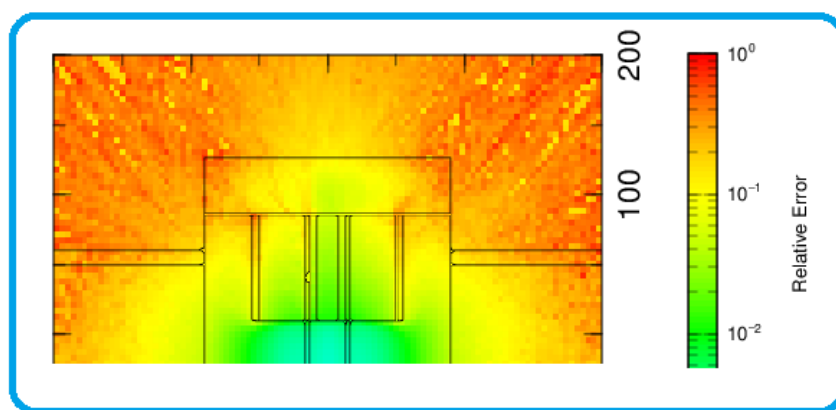


Figura 6. Incertidumbre en la mesh. Aquí se resalta que la misma puede reducirse, por ejemplo, con el aumento del tiempo de simulación o mediante la aplicación de técnicas de reducción de varianza. Ref. [22]. [23]. [24].

Las dimensiones relevantes que terminan por disminuir la dosis $H^*(10)$ a los límites propuestos se muestran en la figura 7:

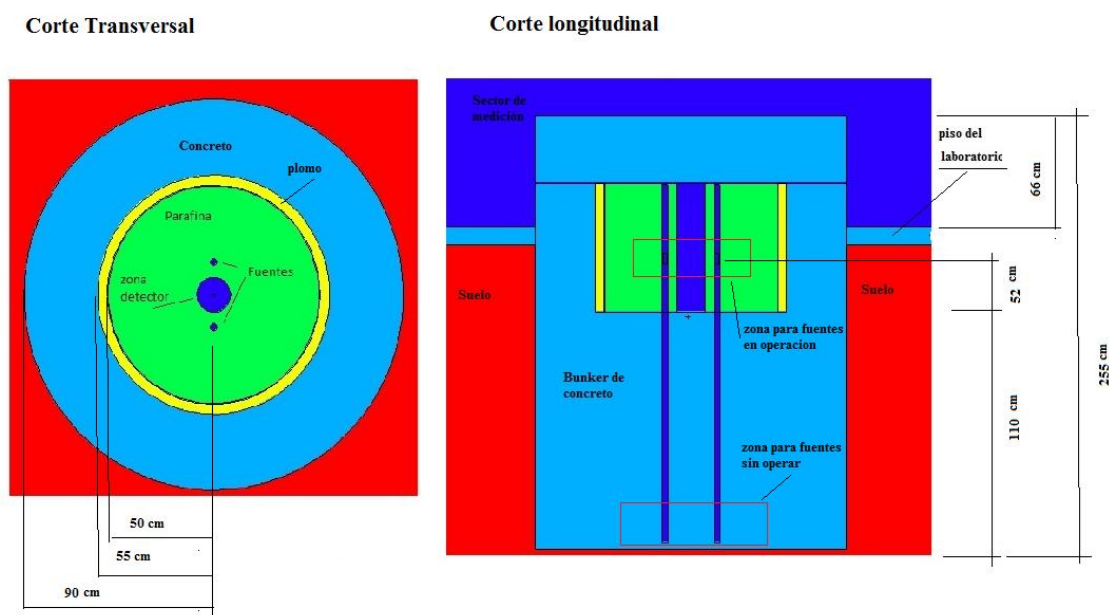


Figura 7. Dimensiones definidas por las simulaciones Monte Carlo.

Referencias

- [1] G. Santa Cruz, Revista U-238 - Año 5 N°26- Marzo-Abril 2017.
- [2] www.srim.org.
- [3] Glenn Knoll; Radiation Detection and Measurement; 3^o edition. Wiley.
- [4] Alvin Glassner; Fundamentos de la ciencia Nuclear, Ed. Victor Lerú SRL. 1964.
- [5] Alejandro Burlon; Aplicaciones de aceleradores a la terapia por captura neutrónica en boro BNCT (Boron Neutron Capture Therapy). Tesis Doctoral UNSAM, 2001.
- [6] Gustavo Santa Cruz; Desarrollos en Radioterapia por Captura Neutrónica (BNCT); 2017.
- [7] Isman Mulyadi Triatmoko and Sutjipto; Assement of Analytical Instrumentation for Boron Measurement in BNCT System, Indonesian Journal of Physics and Nuclear Applications, Volume 2. Number 1 February 2017, p 20 33.
- [8] Agustina Portu; Autorradiografía Neutrónica para Determinar la Distribución Espacial Cuantitativa de ^{10}B . Tesis Doctoral UNSAM, 2012.
- [9] nist.gov/laboratories/tools-instruments/prompt-gamma-ray-activation-analysis-pgaa.

- [10] Alessandro Braghieri; Sviluppo di una metodologia per la misura di concentrazioni di Boro mediante la reazione nucleare $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ indotta da neutron termici, Tesi di Laurea. University of Pavia. 1986.
- [11] Silva Bortolussi; Boron Neutron Capture Therapy of Disseminated Tumours, PhD thesis – University of Pavia. 2006.
- [12] S. Bortolussi S. Altieri, Boron concentration measurement in biological tissues by charged particle spectrometry, Radiat Environ Biophys (2013) 52:493–503 DOI 10.1007/s00411-013-0480-y
- [13] Nicholas Tsoulfanidis, Measurement and Detections of Radiations. 2da edition. Ed. Taylor & Francis. 1995.
- [14] W. R. Leo, Techniques for nuclear and particle physics experiment.
- [15] G. A. Santa Cruz, S. Thorp, "Determinación Cuantitativa de Concentraciones de Boro-10 en ppm usando Detectores Proporcionales". G. A. 82ª Reunión Nacional de la AFA, San Luis, Argentina, septiembre 1997.
- [16] Bladimir Lenis Gil; CARACTERIZACION DE UN CONTADOR PROPORCIONAL DE SIMETRIA CILINDRICA, Tesis de Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares. IDB-UNSAM, 2016.
- [17] INTERNATIONAL STANDARD ISO/DIS 8529-1 / 27 de marzo 2000
- [18] Física de Neutrones -IAEA.org. NCLCollectionsStore
- [19] Kalos M. Whitlok P.; Monte Carlo Methods ; Wiley 2004. Germany.

- [20] Vidal, C., Portu, A., Thorp, S.I., Curotto, P., Pozzi, E.C.C., Saint Martin, G., Optical density analysis in autoradiographic images from BNCT protocols. Rad. Meas. 119 (2018) 121–124.
- [21] Portu, A., Bernaola, O.A., Nievas, S., Liberman, S., Saint Martin, G. Measurement of ^{10}B concentration through autoradiography images in polycarbonate nuclear track detectors. Rad. Meas. 46 (2011), 1154–1159.
- [22] C.J. Werner, et al., "MCNP6.2 Release Notes", Los Alamos National Laboratory, report LA-UR-18-20808 (2018).
- [23] C.J. Werner (editor), "MCNP Users Manual - Code Version 6.2", Los Alamos National Laboratory, report LA-UR-17-29981 (2017).
- [24] Tatsuhiko Sato, Yosuke Iwamoto, Shintaro Hashimoto, Tatsuhiko Ogawa, Takuya Furuta, Shin-ichiro Abe, Takeshi Kai, Pi-En Tsai, Hunter N. Ratliff, Norihiro Matsuda, Hiroshi Iwase, Nobuhiro Shigyo, Lembit Sihver and Koji Niita; Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684–690 (2018).
- [25] Annals of the ICRP, Publication 116; Volume 40, 2010.
- [26] CIEMAT - reporte 605 - año 1987
- [27] A. Saeed; Calculating the ambient dose equivalent of fast neutrons using elemental composition of human body. Applied Mathematics and Computation 274 (2016) 604–610.

Referencias complementarias;

[28] H.L. Swami et al. Occupational radiation exposure control analyses of 14 MeV neutron generator facility: A neutronic assessment for the biological and localshield design. Nuclear Engineering and Technology, 52 (2020), 1784-1791.

[29] Hector Rene Vega-Carrillo, et al; Few groups neutron spectra, and dosimetric features, of isotopic neutron sources, Applied Radiation and Isotopes 117(2016)42–50.

[30] Feng Zhang, et al; Compact shielding design of a portable ^{241}Am -Be source, Applied Radiation and Isotopes 128 (2017) 49–54.

[31] Jackson JD, Classical Electrodynamics 2da edition. Ecole Polytechnique Laussane. Switzerland. 1987.