

**UNIVERSIDAD NACIONAL DE GENERAL SAN MARTÍN  
COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA  
INSTITUTO DE TECNOLOGÍA  
"Prof. Jorge A. Sabato"**

**Estudio de la homogeneidad de deuterio en blancos de  
producción de neutrones de  $TiD_2$  para aceleradores,  
mediante imágenes con neutrones (\*)**

**por Ing. Luis Alberto Martinez**

**Directores**

**Dr. Manuel Suarez Anzorena**

**Dr. Aureliano Tartaglione**

**(\*) Tesis para optar al título de Magister en Ciencia y Tecnología de Materiales**

**República Argentina**

**2020**

## Resumen

Desde hace varios años, en la CNEA, se está desarrollando tecnología de aceleradores electrostáticos para la producción de neutrones mediante reacciones nucleares inducidas por haces de partículas cargadas.

Particularmente, existe un gran interés por la reacción D (d, n). Esta reacción nuclear productora de neutrones ocurre a energías de bombardeo muy bajas, y ya a 150 keV tiene una sección eficaz importante.

Con el fin de llevar a cabo esta reacción nuclear, se requiere que un haz de deuterones ( $d^+$ ) de alta corriente impacte sobre un material al que llamaremos blanco de producción de neutrones (BPN), el cual debe contener, a su vez, átomos de deuterio de manera estable. Uno de los materiales propuestos es el  $TiD_2$ , el cual ha sido fabricado en la CNEA.

La homogeneidad del hidruro a lo largo de la superficie de la película delgada de  $TiD_2$  garantiza la tasa de producción de neutrones. B. Kasemo y E. Törnquist, han observado que la formación del hidruro depende del número de sitios de disociación. Este número es fuertemente dependiente de la presión de hidrógeno y la pureza de la superficie evitando la contaminación con gases como  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $N_2$  y  $O_2$ .

Por otro lado, con el fin de poder drenar toda la energía del haz incidente sobre el blanco de producción de neutrones, se propone incorporar al diseño del acelerador un sistema de refrigeración de alto desempeño que cumpla con una serie de requerimientos tanto desde el punto de vista termo mecánico como desde el punto de vista de la neutrónica.

Uno de los desafíos durante la fabricación de este dispositivo, consiste en la unión entre dos piezas de aluminio, una plana y otra en la cual se han mecanizado los microcanales de geometría cuadrada de  $500 \mu m$  de espesor por los que circulará el refrigerante. La técnica de unión elegida en este caso es la soldadura por difusión (Gagetti, 2017).

El objetivo de esta tesis consiste en estudiar el grado de homogeneidad de deuterio en películas delgadas de  $TiD_2$ , mediante la técnica de imágenes con neutrones, utilizando la instalación para radiografía y tomografía de CNEA, en el reactor de investigación RA-6 ubicado en el Centro Atómico Bariloche.

Como así también verificar de modo no invasivo que el procedimiento por el cual se ha llevado a cabo esta soldadura ha cumplido con el objetivo deseado, o sea, en unir de manera plena la tapa del dispositivo con el disipador de calor y que el flujo de agua circula únicamente por los microcanales. Para ello, se propone utilizar la técnica de imágenes por neutrones.

Palabras claves: neutrografía, películas delgadas, blanco de producción de neutrones.

## Abstract

For several years, electrostatic accelerator technology has been developed for the production of neutrons through nuclear reactions induced by charged particles at CNEA.

Particularly, there is great interest in the reaction  $D(d, n)$ . This reaction occurs at very low bombardment energies, and already at 150 keV it has an important effective cross section.

In order to carry out this nuclear reaction, a high-current deuteron ( $d^+$ ) beam is required to impact a material we will call a neutron production target, which must contain deuterium atoms in a stable way. One of the proposed materials is  $TiD_2$ , which has been manufactured at CNEA.

The homogeneity of the hydride along the surface of the thin film of  $TiD_2$  guarantees the neutron production rate. B. Kasemo y E. Törnquist have observed that hydride formation depends on the number of dissociation sites. This number is strongly dependent on hydrogen pressure and surface purity, avoiding contamination with gases like  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $N_2$  y  $O_2$ .

On the other hand, in order to be able to drain all the energy of the incident beam on the neutron production target, it is proposed to incorporate a high performance cooling system into the accelerator design that meets a series of requirements.

One of the challenges during the manufacture of this device is the union between two pieces of aluminum, one flat and the other in which the microchannels of 500  $\mu m$  thick block geometry through which the refrigerant will circulate have been machined. The joining technique chosen in this case is diffusion welding (Gagetti, 2017).

The objective of this thesis is to study the degree of homogeneity of deuterium along the thin films of  $TiD_2$ , using the neutron imaging technique at the CNEA radiography and tomography facility, in the RA-6 research reactor located in the Atomic Center in Bariloche city.

On the other hand, this work aims to verify in a non-invasive way that the procedure by which this welding has been carried out has fulfilled the desired objective, that is, to fully connect the cover of the device with the heat sink and that water flow circulates only through the microchannels. For this, it is proposed to use the neutron imaging technique.

Keywords: neutrography, thin films, neutron production target.

# Agradecimientos

A mis directores, el Dr. Manuel Suarez Anzorena y el Dr. Aureliano Tartaglione.

Al Instituto Sabato.

Al LAHN.

Al Ing. Julio Marín.

Al Mg. Carlos Ararat Ibarquen.

A todo el personal del CAC que colaboro con este trabajo.

# Índice

1. Introducción.....	1
1.1.Desarrollo de tecnología de aceleradores para la producción de neutrones.....	1
1.2.Acelerador electroestático cuadrupolar. Desarrollo Argentino.....	3
1.3.Técnicas neutrónicas para la caracterización de materiales .....	5
2. Características de un blanco de producción de neutrones (BPN) para aceleradores.....	6
2.1.Diseño, características y método de fabricación de un BPN deTiD <sub>2</sub> .....	6
2.1.1. El Sistema de refrigeración.....	9
3. Técnicas de caracterización .....	12
3.1.Interacción de neutrones con la materia: técnica de imágenes con neutrones.....	12
3.1.1. Características del neutrón.....	12
3.1.2. Fundamentos de la técnica de imágenes por neutrones .....	13
3.1.3. Determinación de la transmisión mediante neutrografía.....	17
3.1.4. Reactor de investigación RA 6.....	19
3.1.5. El instrumento de neutrografía del RA 6.....	19
3.2.Perfilometría óptica.....	24
3.2.1. Fundamentos de la técnica.....	24
3.2.2. Equipamiento.....	25
3.3.Espectroscopia por ablación laser (LIBS).....	27
3.3.1. Fundamentos de la técnica.....	27
3.3.2. Características del equipo .....	27
3.3.3. Ventajas y desventajas de LIBS .....	28
3.3.4. Interacción del pulso laser con la materia .....	29
3.3.5. Equipamiento.....	31

4. Fabricación de películas delgadas de Ti, TiHx y prototipo del sistema de refrigeración.....	34
4.1. Fabricación de películas delgadas de Ti y TiHx mediante la técnica PVD .....	34
4.2. Muestra 0.....	37
4.2.1. Fabricación de blancos otogonales.....	38
4.2.2. Fabricación de blancos circulares .....	41
4.2.3. Depósito de la película delgada.....	42
4.2.4. Medición de espesores.....	44
4.3. Prototipo del sistema de refrigeración .....	48
5. Ensayos con imágenes con neutrones.....	49
5.1. Estudio analítico de la transmisión de neutrones .....	49
5.2. Muestra 0.....	51
5.2.1. Estudio analítico de la transmisión .....	51
5.2.2. Muestra 0. Arreglo y condiciones experimentales. ....	53
5.2.3. Muestra 0. Transmisión en la zona de la muestra .....	55
5.3. Análisis de la dispersión .....	56
5.3.1. Análisis de la dispersión sin muestra.....	56
5.3.2. Análisis de los resultados de la dispersión .....	57
5.4. 2° Experimento Muestra 0 .....	58
5.4.1. Arreglo experimental .....	58
5.4.2. Análisis de las imágenes .....	59
5.5. Ensayo del blanco octogonal.....	61
5.5.1. Arreglo experimental .....	61
5.5.2. Toma de imágenes.....	62
5.5.3. Procesamiento de los datos .....	62
5.5.4. Análisis de los resultados .....	64
5.5.5. Medición con LIBS.....	65

5.6. Ensayo del sistema de refrigeración.....	69
5.6.1. Arreglo experimental .....	69
5.6.2. Toma de imágenes.....	70
5.6.3. Análisis de los resultados .....	71
6. Conclusiones.....	72
7. Bibliografía .....	75
8. Listado de publicaciones .....	78

# 1. Introducción

## 1.1. Desarrollo de tecnología de aceleradores para la producción de neutrones

La primera fuente de neutrones desarrollada por el hombre consistió en una fuente radioactiva emisora de partículas alfa, las cuales al impactar sobre un blanco de berilio, inducen la reacción  $\text{Be}(\alpha, n)$ . Este experimento, llevado a cabo por J. Chadwick, fue el que permitió identificar al neutrón por primera vez, dando inicio a la carrera en el desarrollo de fuentes de neutrones (Chadwick, 1932).

Una de las formas de clasificar las fuentes es mediante el proceso físico por el cual los neutrones son producidos. En tal sentido, unas fuentes pertenecen al grupo en donde la generación de neutrones se lleva a cabo mediante reacciones nucleares inducidas a partir de un haz de partículas cargadas (iones, protones o electrones) en este caso podemos destacar el acelerador LINAC (hoy desactivado) del Centro Atómico Bariloche y las fuentes de spallation como por ejemplo el SNS del Laboratorio Nacional Oak Ridge en Estados Unidos. El otro grupo de fuentes se asocia directamente a la fisión nuclear que se produce en el núcleo de un reactor nuclear, podemos citar el reactor OPAL de Australia (el cual es de fabricación argentina), el FRMII de Alemania y el RA-6 de Argentina.

Inicialmente se buscó aprovechar la aceleración de electrones. Los mismos pueden producir neutrones a partir de una reacción fotonuclear: los electrones acelerados al impactar contra un blanco de alto número atómico (Ej. Plomo), emiten radiación de frenado (Bremsstrahlung), la cual excita los núcleos del blanco circundantes al punto de impacto, promoviendo la producción de neutrones. Este tipo de fuentes también puede ser pulsada, podemos citar el acelerador LINAC (Torres, 2010).

Actualmente, mediante aceleradores se puede manipular prácticamente cualquier tipo de ion que sea posible generar en una fuente de iones, teniendo la posibilidad de acelerar las partículas en un rango de energía que puede ir desde los eV hasta los GeV.

A su vez, dependiendo de la aplicación, la corriente del haz transportado puede ir desde los nanoamperes hasta los miliamperes. Dado además que existe una amplia gama de reacciones nucleares inducidas por haces de partículas cargadas, el uso de aceleradores permite disponer de un amplio espectro en relación a la tasa de producción de neutrones así como la energía a la cual son generados (IAEA, 2012) (Kreiner, 2014).

Las fuentes de neutrones intensas más usuales debido a los altos flujos obtenidos, no aparecieron hasta luego de diciembre de 1942, cuando entra en criticidad el primer reactor de fisión de uranio, el CP-1 (Chicago pile-1), dando inicio a una tecnología que creció exponencialmente hasta mediados de 1960.

La generación de neutrones por el proceso nuclear de “spallation” abrió una amplia línea de desarrollo de fuentes muy intensas de neutrones. Este proceso consiste en el impacto de protones de alta energía ( $\approx$  GeV) sobre un blanco compuesto por un material de alto número atómico, como por ejemplo plomo, tungsteno o mercurio.

Todas las tecnologías mencionadas contemplan grandes instalaciones, lo que vuelve la producción intensa de neutrones un proceso complejo y de alta inversión por parte del sector público.

En Argentina, el desarrollo de fuentes de neutrones inicia con los reactores nucleares destinados a la investigación en 1958, cuando entra en criticidad el RA-1. Aunque ya en 1954 comienza a funcionar el Departamento de aceleradores (CNEA), contando con un sincrociclotrón y un acelerador lineal. En 1969 entra en funcionamiento el acelerador de electrones para la producción de neutrones pulsados en el Centro Atómico Bariloche (LINAC).

Desde los años 80, la CNEA y como producto directo de esta, la compañía estatal INVAP, se han posicionado como especialistas

internacionales en el diseño y construcción de reactores de investigación. Esta trayectoria permitió al país ofrecer y vender al mundo reactores de investigación de alta performance cada vez más complejos tal como ha sido el caso de Perú (RP-10), Argelia (NUR), Egipto (ETRR-2) y Australia (OPAL).

Actualmente, se encuentra en construcción el reactor multipropósito RA-10 en el Centro Atómico Ezeiza, lo que proveerá a la Argentina con una de las instalaciones más modernas y de mayor flujo del mundo.

Dadas las múltiples y exclusivas aplicaciones de las fuentes de neutrones, sumado a que algunos países han decidido llevar a cabo un plan de cierre de reactores de investigación y producción, existe un déficit de fuentes de neutrones intensas y seguras para satisfacer las necesidades de la comunidad científica. En tal sentido, los aceleradores tienen una ventaja importante, desde el punto de vista de la seguridad, la facilidad de operación y especialmente la recepción del público. Además los costos de inversión y mantenimiento son menores que los reactores de fisión, en términos de neutrones generados.

## **1.2. Acelerador electroestático cuadrupolar. Desarrollo Argentino**

Desde hace varios años, en la CNEA se está desarrollando tecnología de aceleradores electrostáticos como fuente de neutrones para diversas aplicaciones (J Bergueiro, 2011). El desarrollo de aceleradores incluye la fabricación de estructuras mecánicas y subsistemas electromecánicos como las fuentes de alta tensión, tubos de aceleración y transporte de haces, fuentes de iones, sistemas de generación de vacío y blancos deuterados de producción de neutrones. Las principales aplicaciones de los neutrones se pueden ver en la Tabla 1.

<b>Campo de aplicación</b>	<b>Ejemplos</b>
Física y tecnología nuclear	Análisis por activación nuclear
	Física de neutrones

	Transmutación de residuos radioactivos
	Producción de radioisótopos
Materia Condensada	Estructura cristalina
	Propiedades magnéticas
Ingeniería	Estrés residual
	Fisuras internas e inhomogeneidad de materiales
	Daño inducido por neutrones
Industrial	Minería y prospección petrolífera
	Neutrografía
Arqueología	Inspección no destructiva de fósiles
Biología	Estructuras biológicas
Medicina	Terapia por captura neutrónica
Seguridad de fronteras	Detección de explosivos, armas químicas y materiales nucleares especiales

Tabla 1. Principales aplicaciones de los neutrones

Como resultado de estos esfuerzos, el proyecto actualmente se encuentra en el testeado de una máquina de 720 kV que tendrá la capacidad de transportar hasta 10 mA de protones o deuterones para luego impactar en el blanco productor de neutrones.

Con el objetivo de profundizar la caracterización de este blanco de producción de neutrones, en esta tesis se estudiará el grado de homogeneidad superficial del hidruro de  $TiD_2$  y se validará el proceso de fabricación del sistema de microcanales utilizados para la refrigeración del blanco, mediante la técnica de imágenes con neutrones, utilizando la instalación de neutrografía y tomografía de la CNEA en el reactor de investigación RA-6 en el Centro Atómico Bariloche.

### **1.3. Técnicas neutrónicas para la caracterización de materiales**

Estas técnica de caracterización son no destructivas y si bien ya muy desarrolladas internacionalmente, con aplicaciones en temas específicos y de alto impacto tecnológico, se encuentran aún en desarrollo para gran parte de la comunidad de ciencia y tecnología de Argentina. Estas técnicas permiten complementar otras técnicas no destructivas, como puede ser la radiografía o el ultrasonido.

En el caso de los hidruros el coeficiente de atenuación es mayor que para una aleación sin hidrurar, por lo cual en particular la neutrografía es adecuada debido a que esta diferencia en los coeficientes de atenuación genera una diferencia en el flujo de los neutrones transmitidos. Esto ya se ha aprovechado en la caracterización de aleaciones de Circonio y su correspondiente hidruro (N.L. Buitrago, 2018).

## 2. Características de un blanco de producción de neutrones (BPN) para aceleradores

### 2.1. Diseño, características y método de fabricación de un BPN de $TiD_2$

El diseño de este blanco contempla varios sub-sistemas tal cual indica el esquema de la Figura 1.

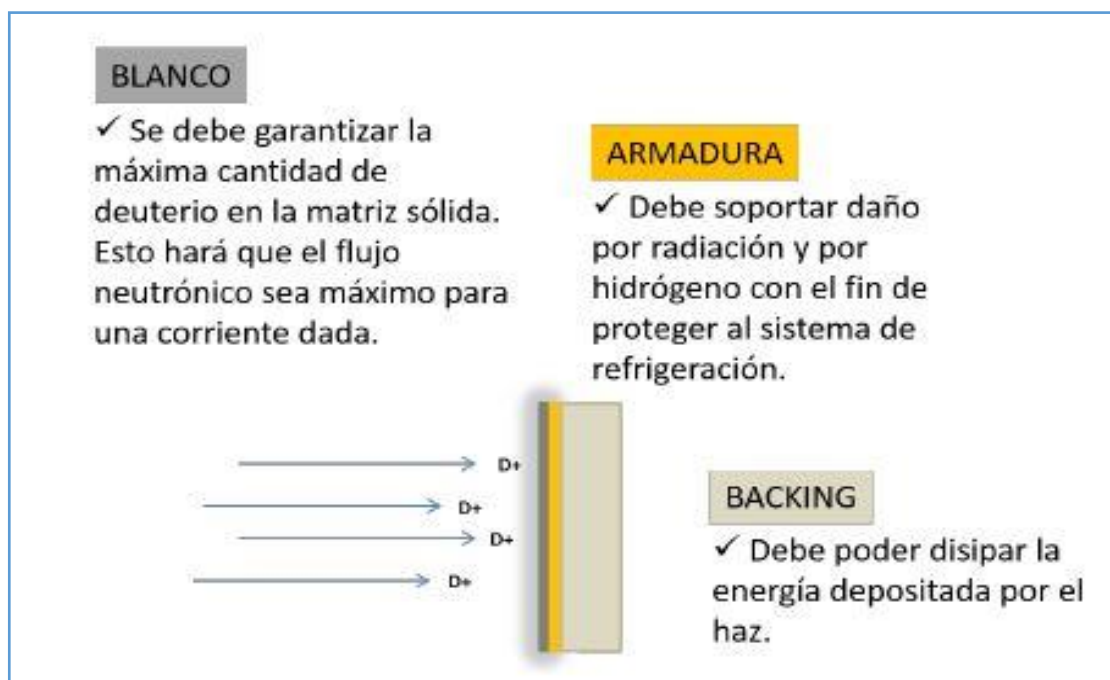
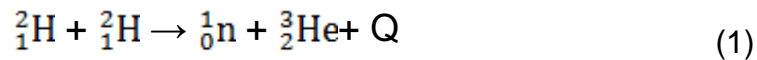


Figura 1. Diseño conceptual del blanco.

Como podemos observar, el sistema consiste en primer lugar en un material blanco en donde se llevará a cabo la reacción nuclear propiamente dicha. Los deuterones incidentes colisionan con los átomos de deuterio del blanco y emiten un neutrón.

La reacción nuclear que describe este proceso de producción se muestra en la expresión 1, en donde Q es la energía de la reacción.

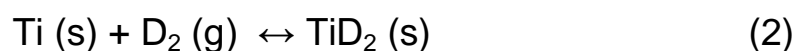


Con  $Q=3,26$  MeV,  $E_n=2,45$  MeV y  $E_{\text{He}3}=0,82$  MeV

La reacción de fisión es inducida por un ion de deuterio que impacta contra otro deuterio que se encuentra en el blanco, promoviendo la formación de neutrón y un átomo de  ${}^3\text{He}$ , por cada impacto. En este caso el producto de la reacción dispone de un exceso de masa Q positivo, por lo que la reacción de la expresión 1 no presenta una energía umbral para producirse. Debido a esto, es posible obtener una tasa de producción de neutrones relevante aún si la energía de los  $d^+$  incidentes es relativamente baja. Por ejemplo, para una energía de deuterones de 150 keV, la producción de neutrones asciende a  $5 \cdot 10^8$  n / mA s. Este tipo de reacción, tiene la propiedad de producir neutrones mono energéticos de 2,45 MeV, siempre que la energía de los deuterones incidentes sea mucho menor que el Q de la reacción.

El tipo de blanco de producción de neutrones elegido está formado esencialmente por un sustrato de aluminio sobre el que se deposita una película de titanio mediante la técnica PVD.

Los elementos de transición del grupo IV, tales como el titanio, tienen la capacidad de absorber cantidades considerables de hidrógeno, o cualquier isotopo del mismo, para formar hidruros binarios. Para nuestro caso de estudio, la reacción de la expresión 2 muestra la formación de  $\text{TiD}_{2(s)}$  a partir de titanio sólido y deuterio gaseoso.



La entalpia de formación ( $\Delta H_f$ ) es de aproximadamente -160 kJ/mol, esto implica que, por un lado estamos frente a un metal con gran capacidad para absorber hidrógeno, promoviendo la formación del hidruro correspondiente, y por otro lado, al tener valores menores que mucho de los hidruros conocidos ( $AlH_3$ ,  $VH_2$ , o  $MgH_2$ ), se trata de un compuesto que requiere mayor temperatura para dar inicio a la descomposición (reacción reversible) (Anzorena M. S., 2017).

Entre los materiales que pueden alojar deuterio en su matriz y son de esta manera buenos candidatos para la fabricación de blancos, el deuteruro de titanio, es la forma química que más se ha estudiado debido a las particulares propiedades que presenta. Por ejemplo, el titanio es un conocido acumulador de hidrógeno (getter) y sus isótopos (Burrell & Armstrong, 1985) (Checchetto & Scardi, 1999) . Una de las grandes ventajas de esta forma química es que, la densidad atómica del deuterio por unidad de volumen en el sistema  $TiD_2$ , presenta el mayor valor comparado con otros hidruros metálicos, siendo así mayor la probabilidad de la reacción y por ende la tasa de producción de neutrones.

Debido a esto, uno de los primeros desafíos consiste en garantizar la retención de átomos de deuterio en una matriz sólida de manera estable bajo las condiciones de irradiación donde lo más relevante será la temperatura del blanco y las condiciones de vacío a las cuales este se encuentre.

Con el fin de minimizar el daño en el sistema de refrigeración, se utiliza una capa intermedia entre ambos, en donde los iones incidentes remanentes terminarán de ser absorbidos. Este subsistema se denomina armadura. La particularidad de la armadura radica en que debe estar compuesta de un material cuyo umbral de Fisuración inducida por hidrógeno (ampollado) sea lo más elevado posible (Anzorena M. S., 2016). En la Figura 2 se puede apreciar un blanco de producción de neutrones de tamaño real.



Figura 2. BPN tamaño real.

Como fue mencionado antes, la homogeneidad del hidruro a lo largo de la superficie de la película delgada de  $TiD_2$  garantiza la tasa de producción de neutrones. Durante el proceso de fabricación, algunos trabajos han observado (Kasemo, 1979) que la formación del hidruro depende del número de sitios de disociación. Este número es fuertemente dependiente de la presión de hidrógeno y la pureza de la superficie, evitando la contaminación con gases como  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $N_2$  y  $O_2$ .

Uno de los objetivos de este trabajo es determinar si bajo las condiciones de fabricación de hidruros en películas delgadas desarrolladas previamente, se puede garantizar que la formación de  $TiD_2$  se extiende de manera homogénea a lo largo de toda la superficie.

#### 2.1.1. El Sistema de refrigeración

El sistema de refrigeración debe ser capaz de remover la energía depositada por el haz incidente y mantener el sistema en un rango seguro de temperatura que garantice la integridad estructural y las propiedades del material hidrurado. En trabajos previos (Gagetti, 2017), se desarrolló un sistema de microcanales paralelos por los que circulará un fluido refrigerante. El sistema tiene dos agujeros circulares en su parte superior, uno para la entrada y otro para la salida del fluido; a continuación de la entrada del fluido, el

modelo tiene un pleno plano por el cual el fluido es conducido hacia los 21 microcanales de 1 mm de profundidad por 0,5 mm de ancho y 20 mm de largo, cada canal está separado por aletas de 0,5 mm y todo el cuerpo del disipador es de aluminio. La forma de los microcanales se puede apreciar en la Figura 3.

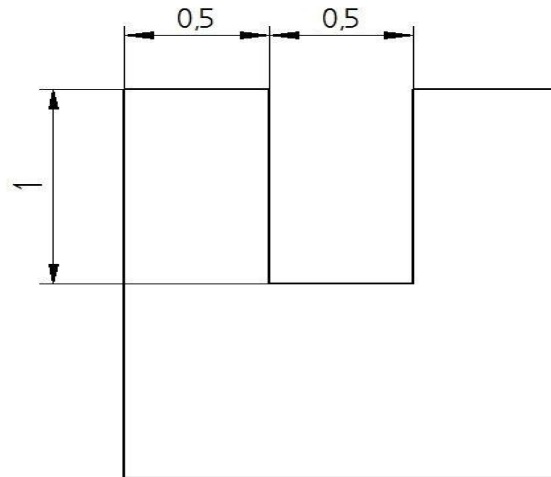


Figura 3. Esquema de los microcanales.

La operación de este sistema se basa en la circulación de agua, para lo cual al prototipo se le instalaron dos tomas para entrada y salida, como se puede apreciar en la Figura 4.

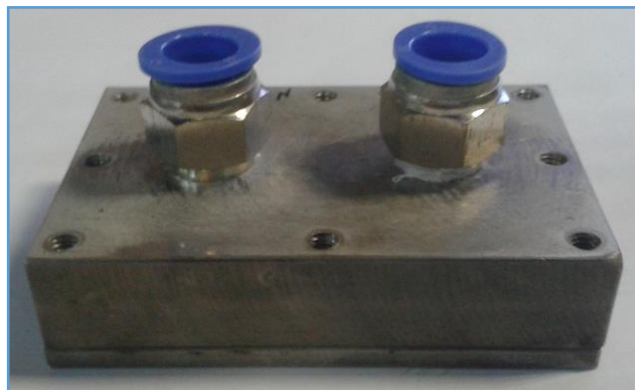


Figura 4. Sistema de refrigeración con entrada y salida.

Para validar la soldadura de difusión se tuvo que cortar la muestra y analizar si los picos de cada canal se soldaron con la placa con el fin de evitar el flujo cruzado. Este método tiene el inconveniente que es un ensayo destructivo. Para analizar la eficacia de la soldadura por difusión, proponemos el ensayo de imágenes por neutrones, el cual es no destructivo y nos permite evaluar el proceso de fabricación. En la Figura 5 se puede apreciar ambas partes soldadas por la técnica de difusión a 580 °C y 25 minutos en vacío.



Figura 5. Soldadura por difusión.

## 3. Técnicas de caracterización

En este Capítulo describiremos las técnicas de caracterización que fueron utilizadas en el desarrollo de esta tesis.

### 3.1. Interacción de neutrones con la materia: técnica de imágenes con neutrones.

#### 3.1.1. Características del neutrón

Desde su descubrimiento en 1932 por James Chadwick, los neutrones han tenido un rol protagónico en la ciencia y la tecnología. Además de la importancia de su descubrimiento desde el punto de vista del entendimiento de la estructura nuclear, los neutrones se han utilizado transversalmente desde entonces y de manera creciente en las ciencias naturales, ingeniería y tecnología de materiales con un impacto clave para el desarrollo de muchas (Anzorena M. S., 2017).

Una de las principales ventajas que presentan los neutrones, es la ausencia de carga eléctrica, permitiendo penetrar en la materia a profundidades mucho mayores que las partículas cargadas y la radiación electromagnética. En la Tabla 2 se presentan las principales características del neutrón.

Masa	$1,675 \cdot 10^{-27}$ kg (939,56 MeV/c <sup>2</sup> )
Carga	0
Spin	1/2

Vida Media	≈ 15 min.
Tipo de decaimiento	β -

Tabla 2. Principales características de los neutrones.

Asimismo, las explicaciones que se han desarrollado, se basan en las propiedades de la interacción que existe entre los neutrones y la materia. Básicamente, esta interacción se puede dividir en dos grandes grupos: dispersión y absorción. El primero de ellos, tanto elástico como inelástico, se debe a la interacción nuclear que existe entre un neutrón y el núcleo del material dispersor (dispersión nuclear). Asimismo, existe una interacción magnética dipolar, entre el momento magnético de los neutrones, y el campo magnético creado por el spin y el momento magnético orbital de los electrones en el sólido.

Dentro de los fenómenos de absorción, el neutrón es capaz de llevar a cabo reacciones nucleares con la formación de una nueva partícula. Por ejemplo, en esta clasificación se encuentran las reacciones  $(n, \gamma)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, 2n)$ , entre otras.

### 3.1.2. Fundamentos de la técnica de imágenes por neutrones

Esta técnica se basa en la atenuación del flujo de neutrones al atravesar un material pero, a diferencia de la técnica de radiografía en la cual los rayos X interactúan con la nube electrónica, los neutrones interactúan con los núcleos atómicos tal como se puede apreciar en la Figura 6.

En el caso de los rayos X la atenuación está directamente relacionada con el número atómico  $Z$ , pero en el caso de los neutrones la atenuación está relacionada con la sección eficaz total (captura más dispersión) por lo que no hay una relación lineal entre la sección eficaz total y el número atómico, como se puede apreciar en la Figura 7.

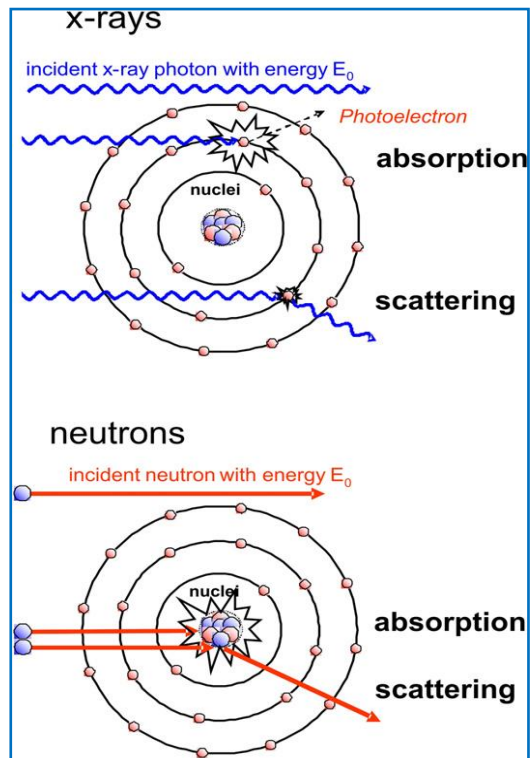


Figura 6. Interacción con la materia

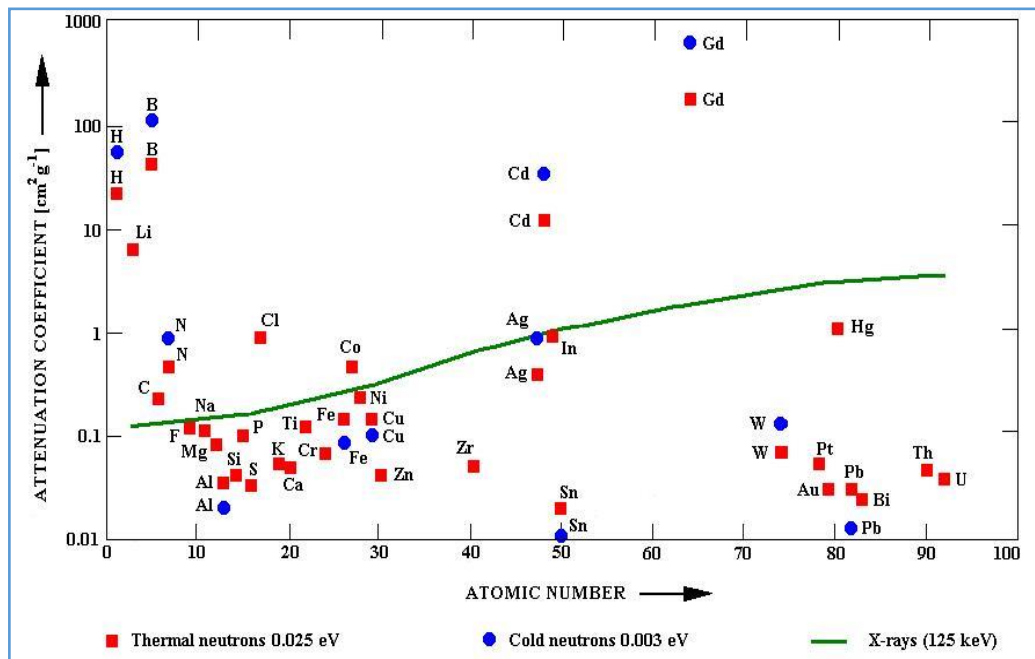


Figura 7. Relación entre el número atómico y el coeficiente de atenuación

Esto tiene consecuencias directas en la relación de contraste que se puede observar entre distintos elementos de la tabla periódica combinados en un objeto. Para radiación electromagnética elementos livianos son muy transparentes y elementos pesados de similar número atómico, indistinguibles. Para los neutrones los elementos livianos (H) son opacos, y elementos pesados transparentes e incluso puede presentarse alto contraste entre elementos pesados vecinos en la tabla periódica. El fenómeno transmisión de los neutrones está regido por la ley de Beer – Lambert, la cual se puede ver en la expresión 3, en donde la transmisión está en función del coeficiente de transmisión, el cual es igual a la sección eficaz macroscópica total por la densidad nuclear.

$$T = \frac{I}{I_0} = e^{-\Sigma d} = e^{-\sigma N d} \quad (3)$$

En donde:

$T$  = *Transmisión*

$I$  = *Intensidad del haz transmitido*

$I_0$  = *Intensidad del haz incidente*

$\Sigma$  = *Coefficiente de atenuación*

$d$  = *Espesor de la muestra*

$N$  = *Densidad de átomos en volumen*

$\sigma$  = *Sección eficaz total*

El coeficiente de atenuación es una propiedad de los elementos que componen el material, y es función de la energía del neutrón (E) o de manera equivalente de la longitud de onda (N.L. Buitrago, 2018).

En un experimento de imágenes por neutrones, un haz de neutrones, colimado ilumina la muestra y un detector plano bidimensional se localiza

detrás de esta, perpendicular a la dirección del haz. Un esquema de la interacción se puede ver en la Figura 8.

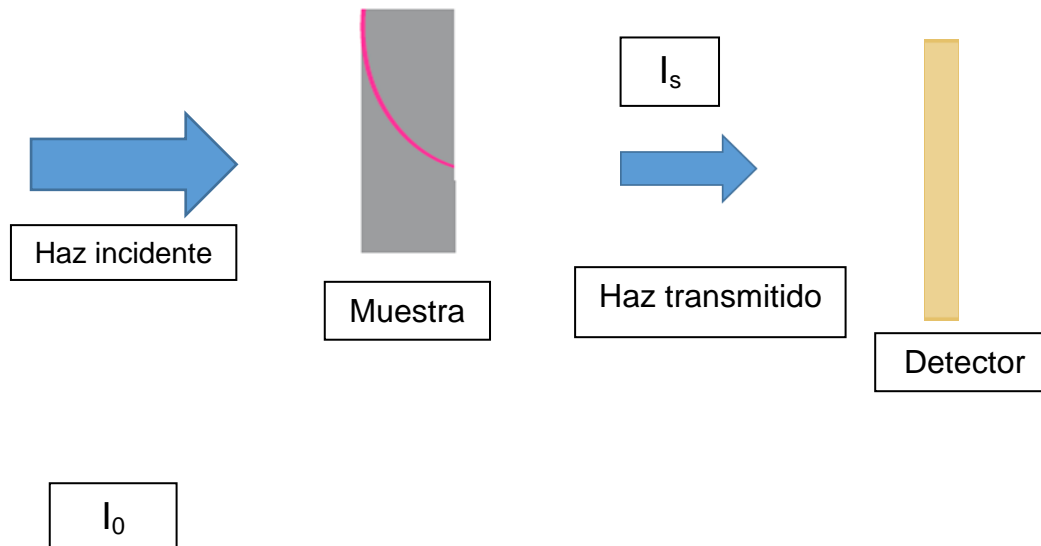


Figura 8. Esquema del proceso de neutrografía

La transmisión del haz  $T(x,y)$  se mide de acuerdo a tres imágenes: la imagen del haz sin muestra  $I_0$ , la imagen con él haz obturado  $B$  y la imagen del haz con la muestra  $I_s$ . El cociente  $I_s$  sobre  $I_0$  corresponde a la normalización de la imagen tomada. Con esta operación es posible cancelar efectos en la imagen producidos por inhomogeneidades en el haz, defectos en el centellador y algunos efectos introducidos por la óptica de detección. La imagen con él haz obturado, se realiza para sustraer la contribución que el ruido intrínseco que cada uno de los pixeles tiene cuando no son expuestos a ningún fotón (corriente oscuridad), lo que se hace obturando el haz. En la expresión 4 podemos ver la formulación matemática.

$$T(x, y) = \frac{I_s(x, y) - B(x, y)}{I_0(x, y) - B(x, y)} \quad (4)$$

### 3.1.3. Determinación de la transmisión mediante neutrografía

Para poder aplicar la expresión (4) y operar matemáticamente con imágenes digitales se empleó el programa de uso libre denominado Image J (Image J, 2019). Durante el experimento de neutrografía se adquirieron cierta cantidad de imágenes con un mismo tiempo de exposición tanto para la muestra con el haz ( $I_s$ ), como para el haz sin muestra ( $I_0$ ) y la medición con el haz obturado (B), estos valores constituyen la característica fundamental del experimento. Una vez que obtenemos estos valores procedemos a normalizar las imágenes con la expresión 4.

Otra herramienta que tiene el Image J es la posibilidad de analizar la transmisión en función de la posición sobre la imagen, incluyendo la posibilidad de elegir zonas de la imagen para ser estudiadas, esta técnica se utilizó en esta tesis.

El proceso de normalización de las imágenes se puede apreciar en la Figura 9, en donde todo el experimento comienza con el arreglo experimental para posicionar la muestra en la cámara del instrumento de neutrografía, obtener las imágenes y luego procesarlas.

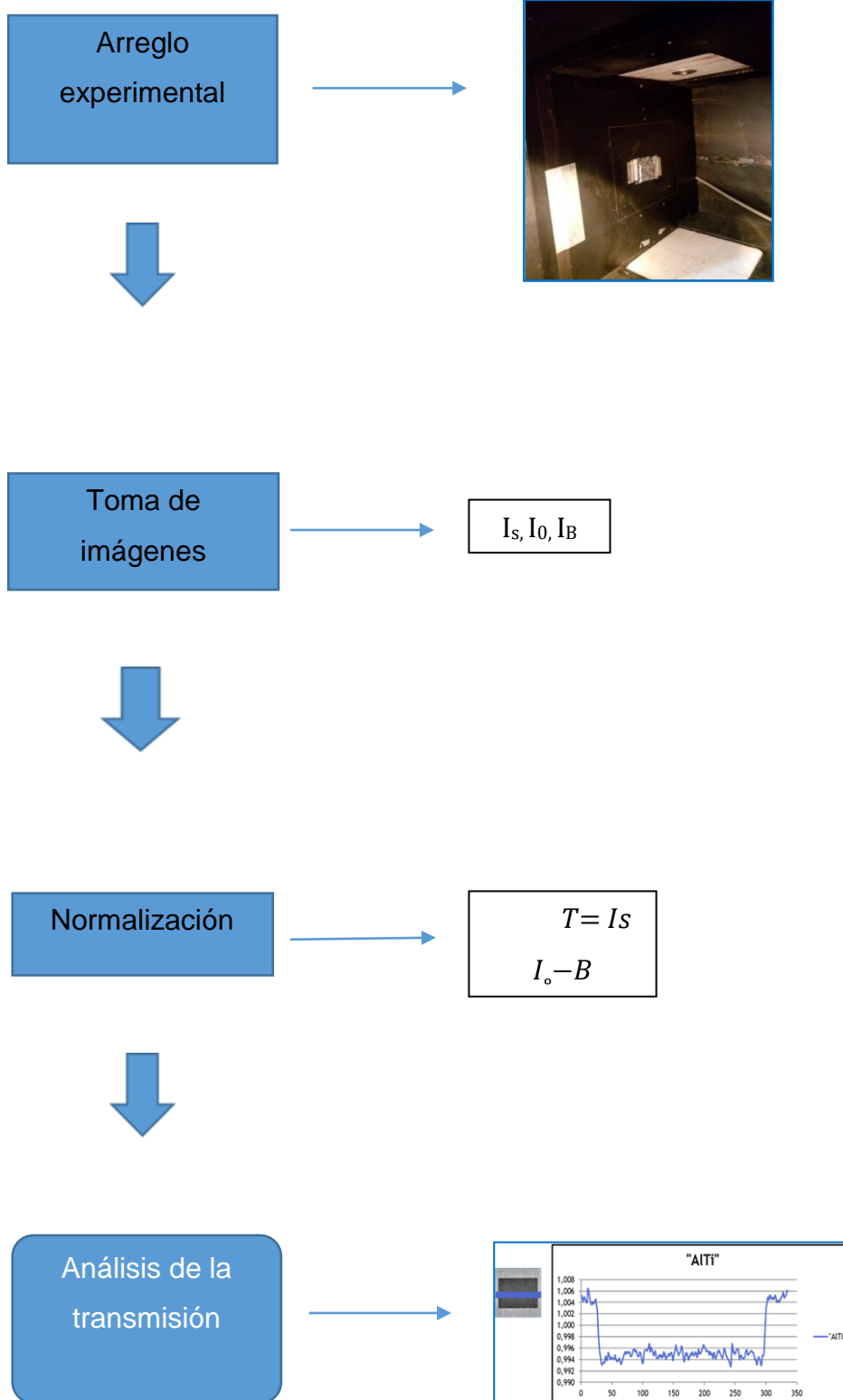


Figura 9. Proceso para normalización de las imágenes tomadas en el instrumento de neutrografía del RA-6.

### 3.1.4. Reactor de investigación RA-6

El reactor RA-6 sito en el Centro Atómico Bariloche fue diseñado y construido íntegramente por Argentina e inaugurado en octubre de 1982. Se realizó un proyecto de modernización para un aumento de potencia del reactor, que involucró además un cambio en la tecnología y el grado de enriquecimiento de los elementos combustibles. El proyecto se llevó a cabo desde 2007 hasta 2009 y el reactor pasó de tener una potencia máxima operativa de 500 kW, a 1 MW (CNEA, 2019).

#### Características técnicas

- Reactor de investigación tipo piletta de 1 MW
- Flujo neutrónico térmico:  $1,5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> s
- Elementos combustibles tipo placa MTR con siliciuro de uranio, de bajo enriquecimiento (19,7%)
- Reflector de grafito
- Refrigerado y moderado por agua liviana desmineralizada
- Cuatro barras de control grueso (de plata, indio y cadmio) más una barra de control fino (de acero)
- Sistema de refrigeración primario y secundario con agua por convección forzada
- Cinco conductos de extracción radiales
- Un sistema de transporte neumático
- Una celda caliente

### 3.1.5. El instrumento de neutrografía del RA-6

La radiografía con neutrones o neutrografía es una técnica no destructiva que permite inspeccionar la estructura interna de dispositivos y materiales. Para su obtención se requiere de una fuente de neutrones, colimadores que

conforman geoméricamente el haz y un dispositivo de detección sensible que permita generar una imagen a partir de los neutrones que se transmiten al atravesar la muestra. En la Figura 10 se indica el concepto básico de funcionamiento de la técnica de neutrografía.

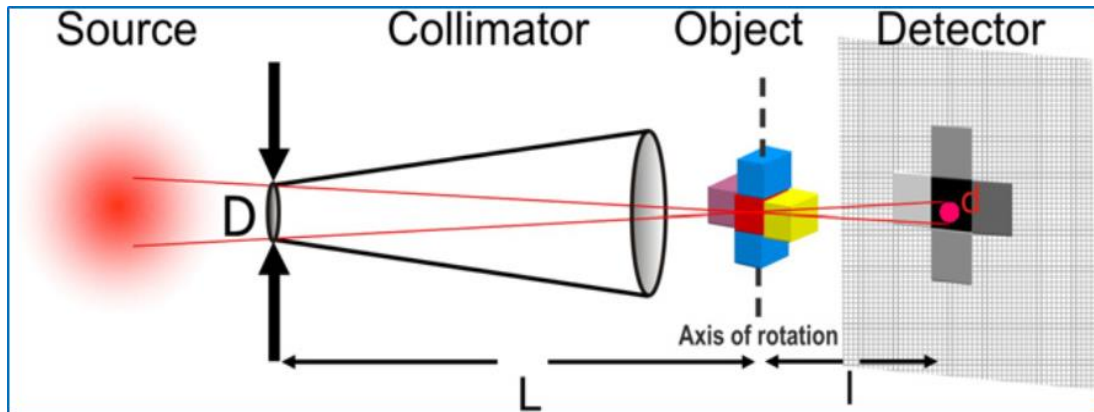


Figura 10. Concepto de la técnica de neutrografía.

Como se mencionó antes, el RA-6 cuenta con cinco conductos de extracción de neutrones hacia el hall del reactor.

En el instrumento de neutrografía, los neutrones son extraídos a través del conducto pasante número 1. Este conducto es un tubo de acero inoxidable que apunta radialmente hacia el núcleo. El mismo penetra el blindaje biológico de hormigón armado y el agua de la pileta del reactor hasta alcanzar la parte posterior del reflector de grafito. El conducto puede inundarse cuando la instalación se encuentra fuera de operación, funciona así como obturador primario del haz para un modo seguro. Existe además un obturador secundario (carro de plomo) que puede desplazarse para obstruir el haz y blindar de este modo la radiación gama hasta niveles que permitan la manipulación segura en el instrumento, esto se puede apreciar en el esquema de la Figura 11.

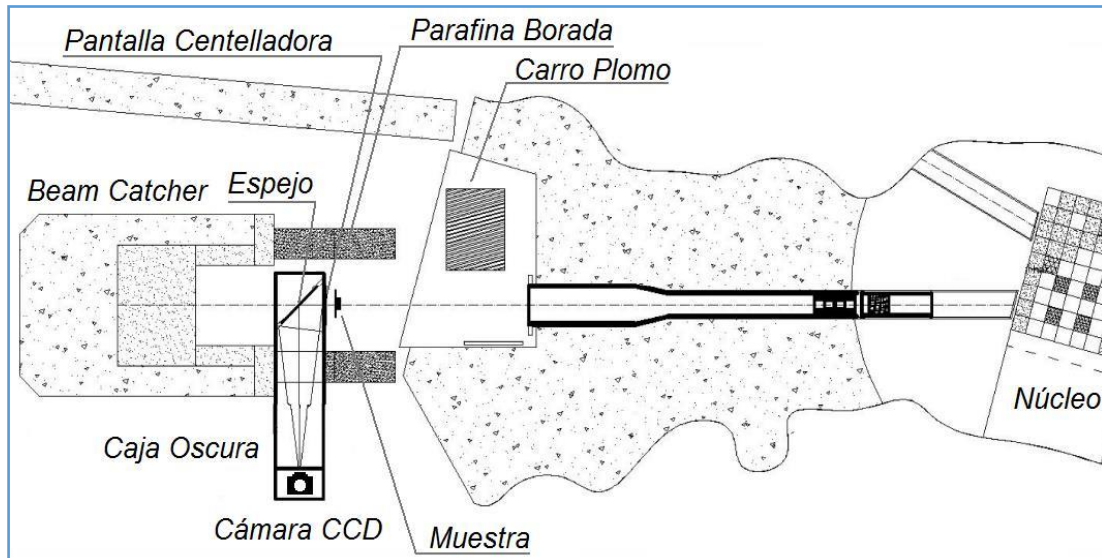


Figura 11. Esquema del instrumento de neutrografía del RA-6.

En el interior del conducto pasante se coloca un dispositivo que alberga un colimador y un delimitador en compartimentos estancos y que permite inundar el conducto manteniendo secos estos componentes para que no sufran oxidación. En el compartimiento más próximo al núcleo se coloca el colimador propiamente dicho, y en el otro compartimento se ubica el delimitador. Un tubo perforado separa los dos componentes dentro del conducto para que los neutrones alcancen el sistema de detección con la geometría y colimación apropiada.

El objetivo del colimador es reducir la divergencia angular del haz de neutrones. El grado de colimación está dado por la relación  $L/D$ , donde  $L$  es la distancia a la fuente y  $D$  es el diámetro del orificio del colimador. En este caso se ha decidido establecer como parámetro de diseño un  $L/D = 100$ . El cono convergente de entrada mide 200 mm de longitud y está hecho de poliboro (polietileno con 5 % de boro). Su función es colimar neutrones térmicos y epitérmicos. Una placa de cadmio con un orificio de 31 mm de radio colima con precisión el haz térmico. Un cono divergente de plomo de 200 mm de largo reduce la componente gama sin afectar la colimación neutrónica. Finalmente,

un conjunto de filtros de zafiro reducen la componente de neutrones rápidos, con poca perturbación relativa a la componente de neutrones térmicos

Para la conformación final del haz se emplea una combinación limitadores de haz para gamas y neutrones. El limitador está compuesto de poliboro y plomo y su interior tiene forma de pirámide truncada, de manera que se conforma la sección transversal del haz a las dimensiones de la placa centelladora (20 cm x 20 cm).

Para que la radiación quede confinada en la instalación de neutrografía se utiliza un "beam catcher", que permite terminar el recorrido del haz, y un blindaje externo. El "beam catcher" es un cilindro de hormigón pesado que está montado sobre rieles para permitir su desplazamiento. Otra fuente de radiación que debe considerarse es la radiación dispersada por las muestras. Para reducir ambas fuentes se ha diseñado un blindaje externo que rodea el recorrido del haz fuera del blindaje biológico. El blindaje realizado consiste en una parte interna compuesta de parafina borada y una parte externa hecha de plomo.

Para posicionar la muestra se dispone de una apertura en el blindaje de 40 cm x 40 cm, esta puerta puede cerrarse por medio de una puerta escalonada hecha de poliboro y plomo. Para sostener el blindaje se ha diseñado una mesa de acero que posee seis patas para distribuir el peso. Cada una de ellas tiene un tornillo con el que puede regularse la altura, lo que posibilita corregir la alineación de la instalación.

Los neutrones transmitidos a través de la muestra inciden sobre una placa centelladora que produce luz visible. La placa centelladora empleada es de ZnS (Ag) con  $^6\text{LiF}$ , mide 20 cm x 20 cm y fue fabricada por Applied Scintillation Technologies. La imagen que se produce en la placa es registrada por una cámara digital sensible a bajos niveles de iluminación. El modelo de la cámara es Penguin 600 CLM de Pixera Corporation, posee una resolución máxima de 2776 x 2074 píxeles y un conversor A/D de 16 bits lo que le permite discriminar 64000 niveles de gris. A la cámara se le monta una lente, en este caso de marca Schneider Kreuznach que tiene un factor f de 0,95. El esquema del sistema de detección se puede apreciar en la Figura 12.

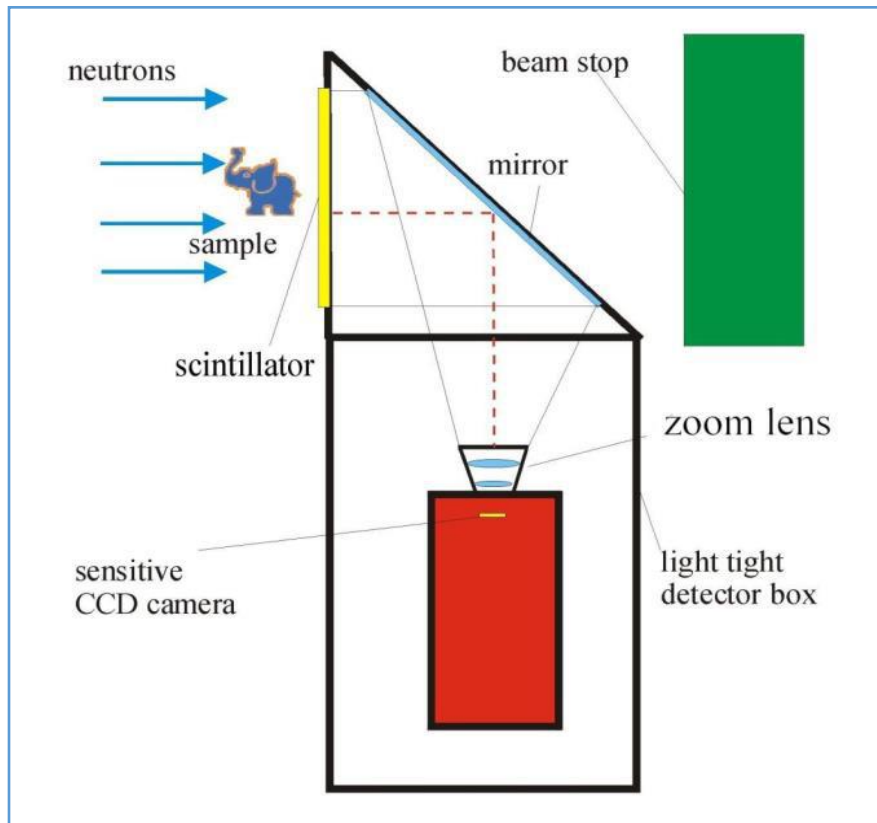


Figura 12. Esquema del sistema de detección.

El registro de la imagen se realiza de modo indirecto para evitar que la radiación dañe el sensor CCD de la cámara; para ello se utiliza un sistema de

dos espejos cuyas caras reflectoras se hallan por delante del vidrio y de este modo se evitan distorsiones ópticas. Todo el sistema óptico se encuentra dentro de una caja oscura para evitar otras fuentes de luz que reduzcan el contraste. La caja oscura posee un blindaje hecho de 5 cm de poliboro y 2,5 cm de plomo para proteger la cámara de la radiación. El almacenamiento de las imágenes obtenidas se realiza con una computadora (Marin, 2012). En la Figura 13 se puede apreciar la unidad de neutrografía del RA-6 y al operador colocando una muestra por la puerta de acceso lateral.

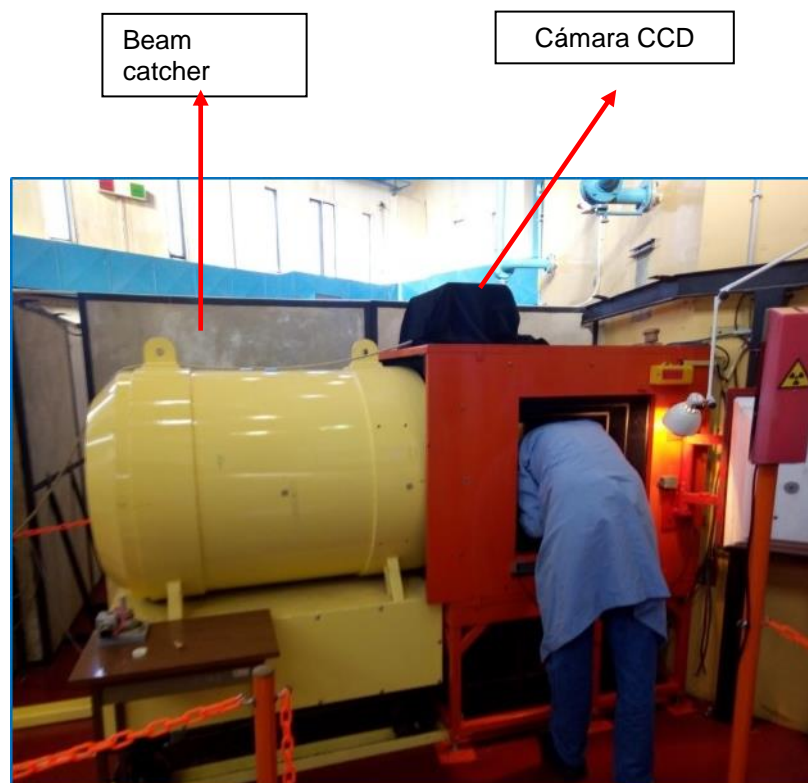


Figura 13. Instrumento de neutrografía del RA-6.

## 3.2. Perfilometría óptica

### 3.2.1. Fundamentos de la técnica

Esta técnica se fundamenta en el fenómeno de interferencia en películas delgadas. Este fenómeno es consecuencia de la interferencia de las ondas de luz que se refleja en la superficie anterior y posterior de películas delgadas

transparentes. El espesor de las películas es del orden de magnitud de la longitud de onda de la luz (entre 380 y 760 nm).

Dependiendo de su espesor, una película delgada puede ser perfectamente reflejante o perfectamente transmisora de la luz de una longitud de onda determinada. Estos efectos son consecuencia de interferencia constructiva o destructiva.

La Figura 14 muestra un interferómetro de Michelson, como se muestra la luz que proviene de una fuente externa incide sobre el divisor de haz y es seccionada en amplitud en dos ondas. Una onda se refleja sobre el espejo móvil, pasa a través del divisor de haz y continúa hacia el detector. Otra onda se refleja primero sobre el espejo fijo y después sale del divisor del haz y se dirige hacia el detector. La lámina del compensador es idéntica en espesor y orientación a la del divisor de haz. Su función es igualar las longitudes de trayectoria óptica cuando ambos espejos están a la misma distancia del divisor de haces.

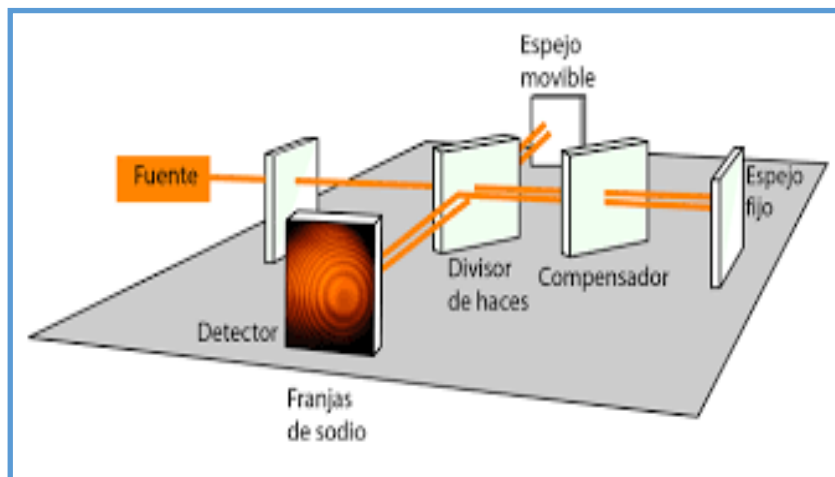


Figura 14. Interferómetro de Michelson.

### 3.2.2. Equipamiento

El Centro Atómico Constituyentes cuenta con una sala limpia grado 1000 que depende de la Gerencia de Investigación y Aplicaciones No Nucleares, la cual tiene un perfilometro óptico marca Veeco, modelo Wyko NT1100, tal como se muestra en la Figura 15. Con una capacidad de medición sin contacto, en

tres dimensiones, con la capacidad de medir el perfil topográfico de la muestra. Cuenta con lentes objetivos de 1.5X, 2.5X, 5.0X, 10X, 20X y 50X. Opera dos técnicas de medición: óptica de corrimiento de fase e interferometría vertical con luz blanca. La fuente de luz es una lámpara halógena de tungsteno con selección manual del filtro. El rango de medición es de 0,1 nm hasta 1 mm. El perfilómetro funciona con un sistema en que los aumentos operan con interferómetros del tipo Michelson y Mirau. Además la muestra tiene que tener cierta inclinación para favorecer la interferencia ya que esto favorece la diferencia de longitud de los caminos ópticos.



Figura 15. Perfilómetro óptico.

### **3.3. Espectroscopia por ablación laser (LIBS)**

#### **3.3.1. Fundamentos de la técnica**

La técnica LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy), es una técnica que utiliza la emisión de átomos, moléculas e iones para identificar los elementos presentes en una sustancia. Esta técnica emplea como fuente de excitación láseres de alta energía. Como el análisis lo realiza sobre la emisión en el plasma, la técnica tiene la capacidad de analizar cualquier sustancia independientemente del estado de agregación, ya sean sólidos, líquidos o gases, incluso en coloides como aerosoles, geles y otros. Debido a que todos los elementos de la tabla periódica emiten luz cuando son excitados convenientemente, la técnica LIBS puede potencialmente resolver la composición elemental de cualquier muestra (Ibarguen C. E., 2013).

#### **3.3.2. Características del equipo**

En la Figura 16 se presenta de manera esquemática el equipo LIBS. Consta de los siguientes dispositivos: una fuente de potencia que entrega energía a un láser de estado sólido (Nd: YAG Neodymium-doped Ytrium Aluminum Garnet; Nd:  $Y_3Al_5O_{12}$ ) el cual genera pulsos laser de potencia (5 a 250 mJ) y duración variables (femto, nano o micro segundos); un lente colector para enfocar la luz generada por el láser a una determinada de la muestra. La muestra se coloca en el portamuestra que puede ser fijo o móvil, y que puede estar dentro de una cámara bajo vacío estático o dinámico o bajo una atmosfera inerte. La radiación continua y discreta emitida por los electrones de las especies ablacionadas por el pulso laser, pasa a través de un lente recolector y luego es conducida a un espectrómetro por medio de una fibra óptica. Este espectrómetro consta de varios detectores los cuales cubren un rango de longitudes de onda y que, en conjunto, define el rango de detección espectral del equipo. La radiación receptada por el espectrómetro es transformada en señales eléctricas que son transportadas y almacenadas en un ordenador. El ordenador dispone de un algoritmo (software) que permite procesar estas señales y representarlas en un gráfico espectral o espectro de emisión.

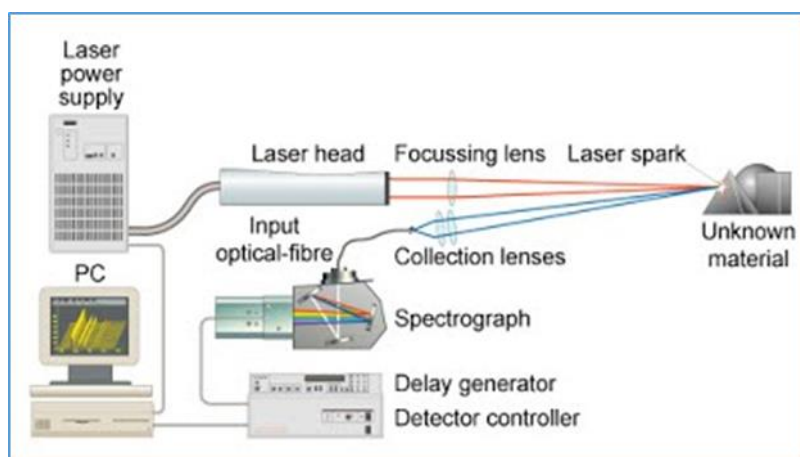


Figura 16. Esquema del equipo LIBS.

### 3.3.3. Ventajas y desventajas de LIBS

La técnica LIBS presenta varias ventajas en comparación con otras técnicas de determinación de composición elemental. Las más importantes son:

- Es un procedimiento rápido, no invasivo, ni destructivo (dependiendo del tamaño de la muestra y la zona de análisis)
- Las muestras pueden estar en estado sólido, líquido o gaseoso.
- No requiere de preparación previa de la muestra y ésta puede tener cualquier geometría.
- Puede tener configuraciones portátiles, para eventuales utilizaciones en trabajos de campo.
- Permite el análisis de materiales extremadamente duros, difíciles de digerir, disolver o físicamente inaccesibles.
- Permite el análisis en tiempos sumamente breves, prácticamente en tiempo real.

La técnica LIBS, como toda técnica analítica, presenta ciertas desventajas. Las más importantes son:

- Los límites de detección están limitados por la intensidad del láser o por el rango de longitudes de onda del espectrómetro.
- El análisis cuantitativo en LIBS normalmente está afectado por fenómenos de interferencia (incluyendo el efecto matriz).

#### 3.3.4. Interacción del pulso laser con la materia

Cuando la radiación electromagnética emitida por un láser pulsado incide sobre la superficie de un material se producen diversos fenómenos: reflexión, transmisión, dispersión o “scattering”, y absorción. La energía absorbida por el material puede, a su vez, dar lugar a: emisión de luz (fluorescencia y/o fosforescencia), calentamiento, fusión y/o vaporización del material; generación de reacciones químicas, y/o generación de plasma.

La energía absorbida interactúa con los electrones de las especies que constituyen el material (átomos, moléculas), excitándolos, por ejemplo aumentando la energía cinética de los electrones libres en el metal, o generando vibraciones en dieléctricos. La desactivación de estas especies puede dar lugar a la emisión de luz (fluorescencia o fosforescencia) o generar calor. Con estos valores de irradiancia cualquier cambio a nivel molecular o atómico que pueda presentarse en la muestra será reversible, siempre y cuando no se produzca algún tipo de reacción química irreversible. Si la irradiancia es superior a los  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> el material se vaporiza violentamente y se produce el fenómeno de ablación.

El termino ablación láser se refiere al proceso de remoción de material desde una superficie sólida cuando la misma es irradiada con un haz láser de adecuada irradiancia. En general el proceso de ablación está acompañado por otros dos fenómenos: la generación de luz y sonido. La emisión de luz se produce porque el material que interactúa con el láser es vaporizado violentamente, se rompen los enlaces de las estructuras que ligan a los átomos y estos se excitan e ionizan formando un plasma.

Este plasma es extremadamente caliente (alrededor de 15000 K). El incremento violento de la temperatura produce un incremento igualmente violento de la presión, generándose así una diferencia de presiones entre la zona de plasma y la atmosfera que rodea a este. Este proceso genera una onda de choque que se percibe como un chasquido.

Por este fenómeno obtenemos el espectro de emisión de la muestra, el cual consiste en un gráfico de intensidad en función de la longitud de onda. Analizando los picos es posible determinar los elementos presentes en la muestra, de acuerdo a su longitud de onda característica.

Desde el punto de vista analítico LIBS ofrece las siguientes ventajas para aplicaciones en la industria y la producción: no tiene ningún tipo de condicionamiento para la forma y tamaño de las muestras, las mismas no requieren preparación previa, la técnica es fácilmente adaptable a la línea de producción y brinda la posibilidad de realizar análisis remoto. Estas ventajas implican una mayor velocidad de análisis y un menor costo operativo, comparando con técnicas analíticas tradicionalmente utilizadas en la industria.

Entre los distintos materiales de impacto industrial que se han analizado con LIBS sobresalen los metales y aleaciones. Particularmente el acero es el que más atención ha acaparado, debido a su amplia utilización en las más diversas áreas y procesos productivos. Por ejemplo se ha empleado la técnica LIBS en una configuración doble pulso para realizar la detección de C, P, S, Mn, Ni, Cr y Si en acero. No hay que dejar de lado el empleo de esta técnica en la determinación de espesores en pinturas automotrices, así como Al y Zn sobre chapas en procesos de galvanizado (Ibarguen C. E., 2013).

Por todas estas facilidades se decidió utilizar la técnica LIBS para estudiar la distribución del hidruro, analizando la muestra con hidruro y sin hidruro.

### 3.3.5. Equipamiento

La División Difusión del Departamento de Propiedades y Transformaciones de la Gerencia de Materiales cuenta con un equipo LIBS en el cual se realizaron las mediciones, el cual se puede apreciar en la Figura 17.

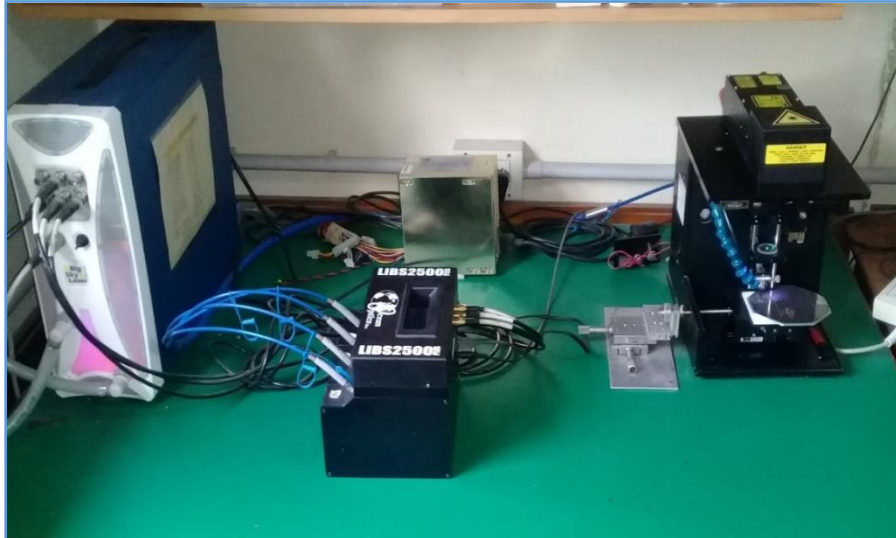


Figura 17. Equipo LIBS de la División Difusión.

Es un modelo comercial Ocean Optics LIBS 2500+, que cuenta con un láser de Nd: YAG de longitud de onda de 1064 nm con un pulso de 50 mJ de energía a una frecuencia de 20 Hz. Cuenta con un espectrómetro de 3 canales con detectores CCD que cubren un rango de longitud de onda de 200 a 500 nm. Se tuvieron en cuenta diversos parámetros con el fin de obtener buena calidad de los espectros y buena estadística en la precisión de la medición. Dichos parámetros obedecen en cierta manera al proceso de ablación de la muestra por medio del pulso del láser y la adquisición de datos del espectrómetro. Estos parámetros característicos son:

1. La energía o potencia de la fuente del láser: es la potencia que la fuente le entrega al láser la cual determina la cantidad de material ablacionado y por ende, la intensidad de señal espectral.
2. El tiempo de retardo  $t_d$ : es el intervalo de tiempo que transcurre desde el instante en que el pulso del láser finaliza su impacto sobre la muestra y el instante en que el espectrómetro comienza a

detectar la radiación emitida, Figura 18. Este parámetro puede variarse dependiendo de la generación de las emisiones discretas durante la formación del plasma y su posterior enfriamiento.

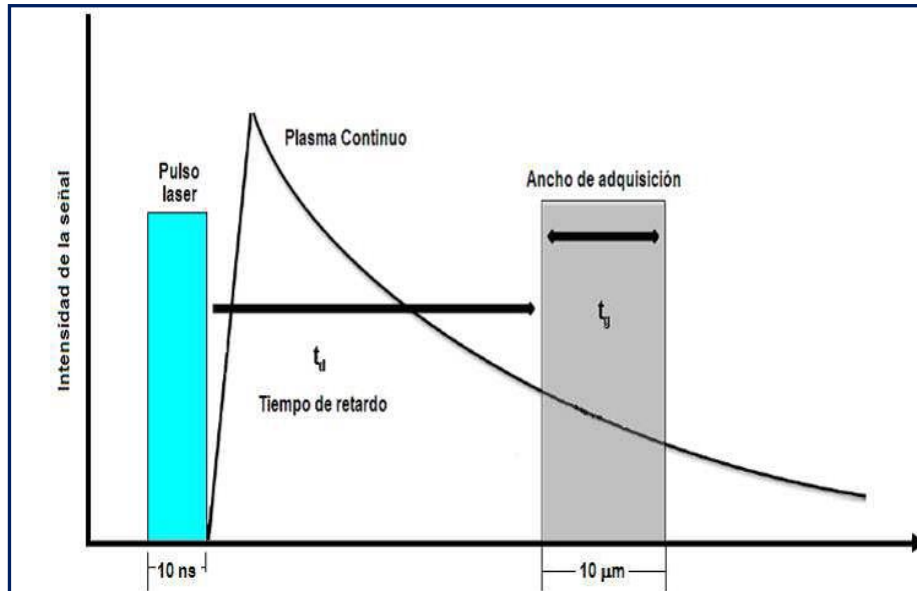


Figura 18. Diagrama de eventos en función del tiempo entre la generación del pulso láser y la adquisición de datos.

3. El número de disparos: sirve para obtener una mayor precisión final. Cada disparo produce un espectro de emisión, y el espectro definitivo resulta del promedio de un número determinado de disparos. Este parámetro define la repetitividad y reproducibilidad de la medición
4. La profundidad de los disparos: permite determinar la profundidad en unidades de longitud en función del número de disparos ya que es importante saber cómo varía la cantidad un determinado elemento dentro de una matriz.
5. El ambiente de medición: en nuestro caso las mediciones se realizaron a presión atmosférica en presencia de aire seco.

En la Tabla 3 se pueden ver las especificaciones del equipo LIBS.

### Especificaciones del equipo LIBS Ocean Optics LIBS2500+

<b>Modelo:</b>	LIBS 2500+
<b>Láser:</b>	Md-YAG de 50 mJ
<b>Longitud de onda:</b>	1064 nm
<b>Resolución</b>	0,1 nm de FWHM
<b>Rango espectral:</b>	3 espectrómetros HR 2000+ 200 – 500 nm
<b>Distancia focal:</b>	6 cm
<b>Variación de energía:</b>	2 – 4,6 J
<b>Relación señal/ruido:</b>	300/1

Tabla 3. Especificaciones del equipo LIBS.

La técnica LIBS ha sido utilizada en muestras con films delgados, como en el caso de muestras de molibdeno con una película de W-Al con un espesor de 1,5 – 1,8  $\mu\text{m}$ , con la cual se ha podido detectar hidrógeno y deuterio (Salvatore Almaviva, 2016).

## **4. Fabricación de películas delgadas de Ti, TiHx y prototipo del sistema de refrigeración**

Con el fin de poder estudiar si las condiciones de fabricación de hidruros en películas delgadas de Ti propuestas por Suarez Anzorena et. al (Anzorena M. S., 2017) garantizan una distribución homogénea a lo largo de la superficie, en esta tesis se ha propuesto trabajar con muestras conformadas de un sustrato de aluminio de espesor cercano a los 3 mm con una película de Ti de espesor 1,5  $\mu\text{m}$ , aproximadamente, con hidrógeno y sin hidrógeno. Más allá que el blanco deberá estar fabricado con deuterio y no hidrógeno, la selección de este último responde a que se dispone de un mayor contraste mediante la técnica de imágenes con neutrones que con deuterio. Así también se expondrán las características de fabricación del sistema de refrigeración con microcanales.

### **4.1. Fabricación de películas delgadas de Ti y TiHx mediante la técnica PVD**

Para realizar el depósito de una película delgada de titanio y su posterior hidruración se utilizó una evaporadora marca Leybold – Heraeus modelo Univex 300 de origen alemán. En la Figura 19 se puede apreciar la campana de la evaporadora.



Figura 19. Campana de la evaporadora Univex

En la Figura 20 podemos ver el tablero de control de la evaporadora, desde donde se accionan las bombas, mecánica y turbomolecular, cuenta con un vacuometro y el control del cañón de electrones.



Figura 20. Tablero de control de la evaporadora.

La técnica se denomina PVD (Physical Vapor Deposition), el objetivo de esta técnica es la transferencia controlada de átomos de una fuente hacia el sustrato donde se forma el film (Ohring, 1980). En una campana se hace vacío por medio de dos bombas, una mecánica y otra turbomolecular. Luego se enciende el cañón de electrones y el operador comienza a aumentar la corriente hasta fundir el metal, el cual comienza a evaporarse y se deposita en el sustrato el cual es fijado en una placa calefactora para lograr la adherencia del film. En la Figura 21 se puede apreciar la campana, la base, el crisol donde se coloca el titanio y el cañón de electrones que es la fuente de energía para fundir y evaporar el titanio, el sistema de vacío que conecta con las bombas por medio de una válvula plato accionada neumáticamente, la sonda para la

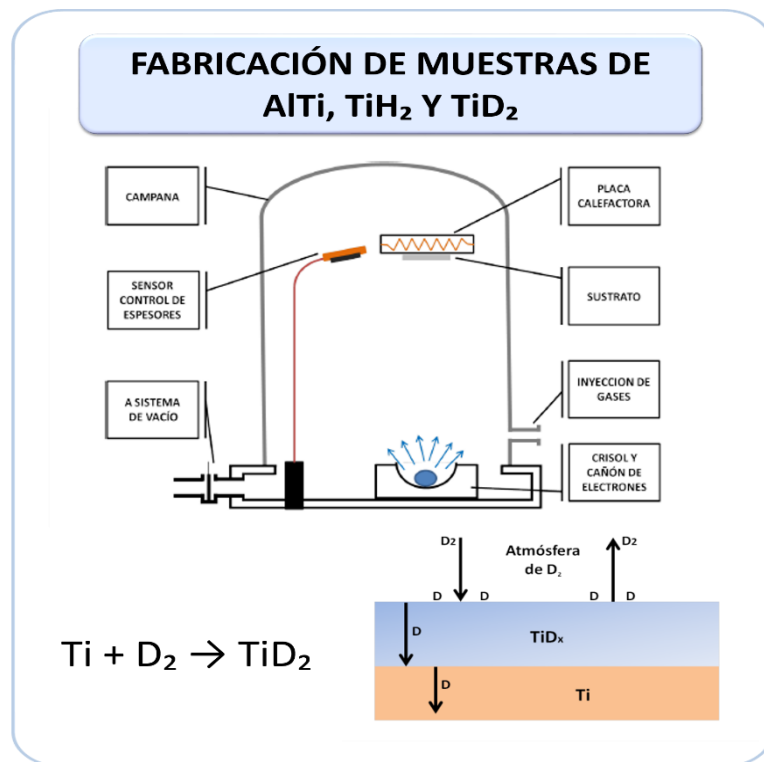


Figura 21. Esquema de la evaporadora para la generación de películas delgadas y mecanismo de hidruración.

microbalanza con la cual se registra el espesor del depósito y la velocidad de deposición, y la cual tiene que estar a la altura del sustrato para ser más exacta la medición. Con el fin de calibrar la microbalanza se fabricaron unos blancos de aluminio circulares sobre los que se depositó una película de titanio

y su espesor se midió con el perfilometro. De esta manera se utilizó el espesor medido por perfilometría como patrón para calibrar la microbalanza. Por último se encuentra la placa calefactora en la cual se sujeta la muestra. La máquina cuenta con dos vacuómetros para medir el vacío y un potenciómetro para controlar la corriente del haz de electrones. La placa calefactora tiene una unidad de potencia con un controlador PID en el cual se establece la temperatura del sustrato.

Para el proceso de hidruración se utilizó una válvula aguja marca PFEIFFER, modelo EVN 116, la cual ha sido instalada en una de las bridas de la base de la evaporadora, por la cual se inyectó hidrógeno. Se utilizó un manómetro de presión absoluta tipo Bourdon marca Leybold para comprobar el vacío, además se usó un detector de hidrógeno como medida de seguridad por su alta explosividad.

## **4.2. Muestra 0**

La muestra 0 consiste en dos blancos de forma rectangular de 4,5 cm x 3,5 cm. Cada muestra consiste en un sustrato de aluminio, el cual se utiliza porque es uno de los metales más transparentes a neutrones, se puede mecanizar fácilmente, y tiene una alta conductividad térmica lo cual favorece la transmisión del calor y con esto la eficiencia del sistema de refrigeración.

En una de las muestras se realizó un depósito de titanio con la técnica PVD. En la otra muestra se hizo el mismo depósito de titanio pero luego se realizó una hidruración, formando el compuesto  $TiH_2$  de 1,3  $\mu m$  de espesor. Esto se puede apreciar en la Figura 22.



Figura 22. Muestra 0

En la Tabla 4 se pueden apreciar los parámetros de fabricación de la película delgada de Ti y la posterior hidruración. Cabe destacar que estos parámetros son el resultado experimental de aquellos valores que maximizan la cantidad de hidrógeno en la muestra.

Proceso	Film de Ti	Hidruración
$T_0$	264 °C	204 °C
$T_f$	250 °C	200 °C
$P_0$	$3 \cdot 10^{-5}$ mbar	$2,8 \cdot 10^{-6}$ mbar
$P_f$	$1,2 \cdot 10^{-6}$ mbar	$1 \cdot 10^{-5}$ mbar

Tabla 4. Características del depósito mediante PVD.

#### 4.2.1. Fabricación de blancos octogonales

Se fabricaron blancos octogonales de aluminio con las dimensiones parecidas al banco de producción de neutrones real, se eligió una geometría

octogonal de 4 cm de lado y con un apotema promedio de 3 cm, lo cual nos da una superficie de 48 cm<sup>2</sup>. El espesor del sustrato de aluminio es de 3 mm.

#### Preparación del sustrato

Luego de cortar el material se procedió a maquinarlo en una fresadora CNC marca Sylix 7 utilizando un programa en Mach 3, se realizó un planeo sobre ambas caras con el objetivo de lograr un espesor uniforme y un paralelismo aceptable entre las caras.

Después del mecanizado se controló la planitud con mármol de granito y reloj comparador, una de las muestras mostraba una distorsión apreciable, esto se confirmó después cuando no fue posible pulirla. En la Figura 23 se puede apreciar el control de planitud con el reloj comparador.



Figura 23. Control de planitud.

El desbaste se hizo a mano debido a que la pieza es muy grande para utilizar la pulidora de la División Metalografía del Departamento de caracterización de materiales, se pasó por todos los papales de lija # 220, # 320, # 400, # 600, # 1000, # 1200, # 2000 y # 2500, se realizó un trabajo cuidadoso al observar constantemente la muestra debido a que se raya con facilidad por ser de aluminio, en la Figura 24 se puede apreciar el trabajo de pulido.



Figura 24. Pulido de la muestra.

Luego se realizó el pulido con pulidora, utilizando un paño con pasta de diamante de 6  $\mu\text{m}$  y luego con pasta de 1  $\mu\text{m}$ . Con el objetivo de acelerar el proceso se probó un pulido electrolítico el cual no funciono debido a la gran superficie de la muestra; la fuente no entregaba la corriente necesaria. Como resultado de esta prueba hubo que empezar el desbaste desde la lija # 220 de nuevo.

Se logró finalmente un pulido a espejo con un mínimo de rayas en dos muestras, la muestra distorsionada no pudo ser pulida y termino siendo descartada. En la Figura 25 se puede apreciar la muestra instalada en la placa calefactora.



Figura 25. Muestra terminada.

#### 4.2.2. Fabricación de blancos circulares

Se decidió fabricar unas nuevas muestras experimentales para realizar el depósito de titanio con el objetivo de calibrar la microbalanza con la técnica de perfilometría óptica, Este tipo de muestra se puede apreciar en la Figura 26.



Figura 26. Muestras circulares para la calibración de la microbalanza del equipo de deposición de Ti.

#### 4.2.3. Depósito de la película delgada

Los blancos de aluminio recibieron un depósito de una película delgada de titanio. Como materia prima se utilizó un alambre de titanio de 0,3 mm de diámetro, grado 1 ASTM F 1341. Se hicieron ovillos de alambre de titanio y luego se decaparon con una solución de ácido según recomienda (Petzow, 1999).

El titanio fue decapado sumergiéndolo en la siguiente solución:

5 ml	40 % HF
20 ml	68 % HNO <sub>3</sub>
25 ml	Agua destilada

Luego se lo enjuagó con alcohol etílico. Como su forma es en alambre, se lo fundió en una evaporadora tipo PVD. Este trabajo de decapado se puede apreciar en la Figura 27.



Figura 27. Decapado de los ovillos de titanio.

A las muestras circulares se les hizo un depósito de titanio con los siguientes parámetros:

<b>Muestras circulares</b>	
Vacío inicial	$1 \cdot 10^{-4}$ mbar
Vacío final	$1,8 \cdot 10^{-6}$ mbar
Temperatura inicial	262 °C
Temperatura final	213 °C
Espesor del depósito según microbalanza	Muestra 1 = 0,252 $\mu\text{m}$ Muestra 2 = 0,484 $\mu\text{m}$ Muestra 3 = 0,601 $\mu\text{m}$ Muestra 4 = 1,177 $\mu\text{m}$

A las muestras octogonales se les hizo un depósito de titanio con los siguientes parámetros:

<b>Muestras octogonales</b>	
Vacío inicial	4. 10 <sup>-5</sup> mbar
Vacío final	1,2. 10 <sup>-6</sup> mbar
Temperatura inicial	250 °C
Temperatura final	171 °C
Espesor del depósito según microbalanza	1,216 μm

La hidruración de los blancos octogonales se llevó adelante en la maquina Leybold, con los siguientes parámetros:

Temperatura inicial: 204 °C

Presión inicial: 2,8. 10<sup>-6</sup> mbar

Una vez ingresado el hidrógeno la temperatura es de 165 °C

Presión del hidrógeno: 1000 mbar

Tiempo: 2 h

#### **4.2.4. Medición de espesores**

La medición de las películas delgadas se llevó a cabo con un perfilometro óptico. Primero medimos las muestras redondas de aluminio 2005 pulidas y sonicadas para contrastar la medición de espesor realizada con la microbalanza de la maquina Leybold. Con esta medición se calibró la

microbalanza para posteriormente realizar el depósito de titanio y posterior hidruración.

En una segunda etapa se realizó la medición de la muestra octogonal con hidruro y sin hidruro, para esto decidimos utilizar el programa Gwyddion (Gwyddion.net, 2019), mediante el cual se realizó el cálculo del espesor en base a los datos provistos por el equipo, en la Figura 28 se puede apreciar el grafico generado por el equipo para una de las muestras estudiadas.

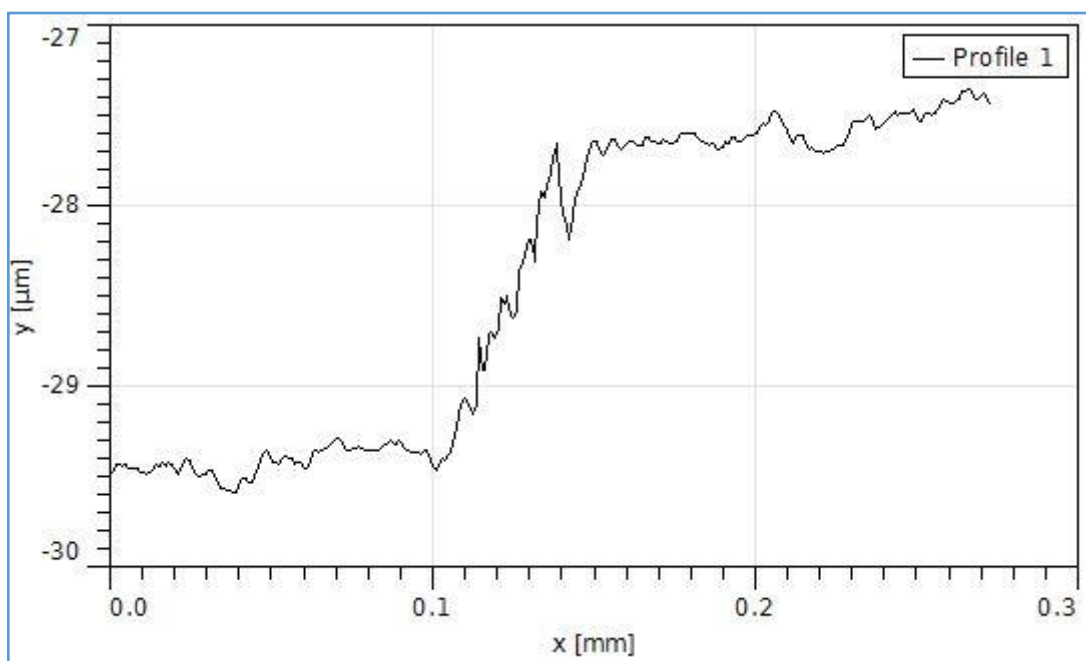


Figura 28. Medición del espesor.

Realizamos mediciones sobre muestras redondas en las cuales se hizo un depósito de titanio con la técnica PVD en la evaporadora Leybol y registrando el espesor medido con microbalanza y medido con perfilometría óptica. Hallamos una correlación lineal aceptable, considerando también la desviación standard al hacer varias mediciones sobre la misma muestra, lo cual se puede apreciar en la Figura 29.

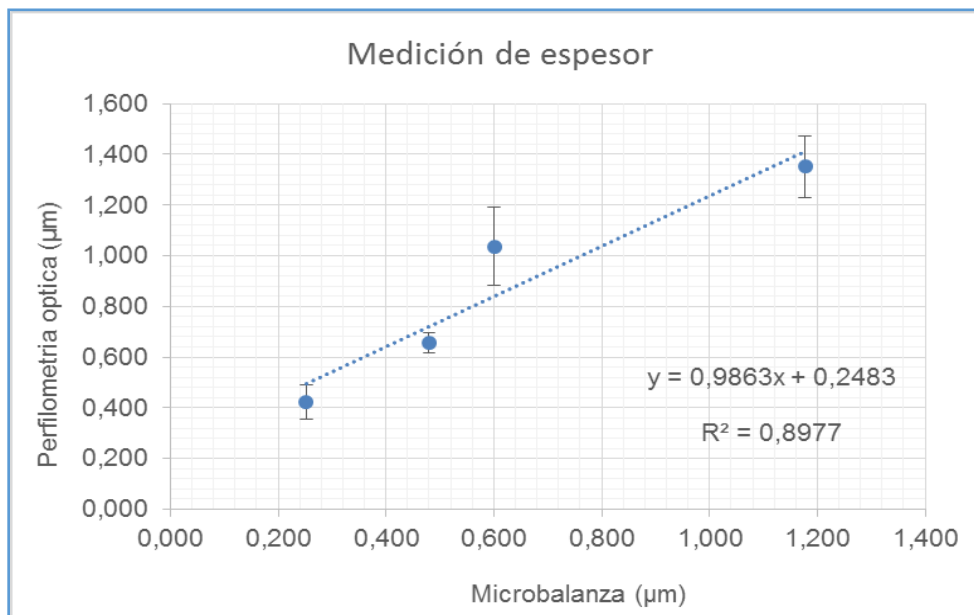


Figura 29. Medición de espesores con microbalanza y perfilometro. El error de la microbalanza es del orden de 1 nm y por lo tanto queda dentro del área del punto.

De esta forma utilizando las muestras redondas de aluminio hidruradas se obtuvo una curva de calibración con la cual podemos obtener los espesores deseados durante el proceso de hidruración.

### **Blanco octogonal. Medición de la película delgada de titanio.**

Durante el trabajo con el blanco octogonal realizamos el depósito de titanio, el blanco circular presenta un escalón en los lugares donde se colocan las grampas de sujeción, posicionándonos en ese sector con el perfilometro podemos ver la altura del escalón generado por el depósito de titanio. Esta medición la realizamos en tres puntos correspondientes a un escalón, tal como se puede apreciar en la Figura 30.

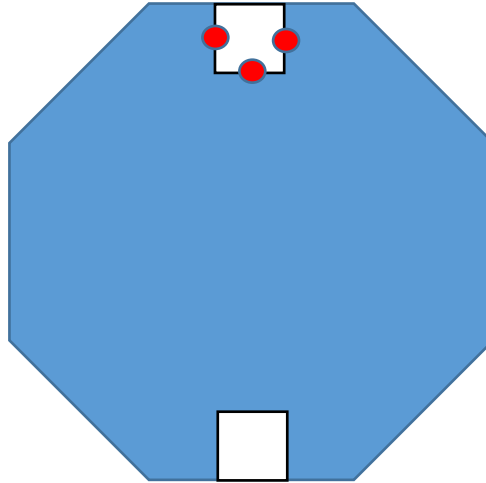


Figura 30. Puntos de medición con el perfilómetro

Los puntos rojos de la Figura 30 indican el haz de luz del perfilómetro y como se puede ver se posicionan sobre el escalón, se toman 3 mediciones y se obtiene el promedio. Los datos obtenidos para un espesor medido con microbalanza de 1,216  $\mu\text{m}$  se pueden apreciar en la Tabla 5.

Muestras		Espesor promedio ( $\mu\text{m}$ )	Desviación Standard
Muestra AlTi	Lado 1	2,0	0,1
	Lado 2	1,4	0,3
Muestra AlTiHx	Lado 1	2,1	0,2
	Lado 2	1,8	0,2

Tabla 5. Medidas del espesor de los blanco octogonales

### 4.3. Prototipo del sistema de refrigeración

Tal como se comentó anteriormente el sistema de refrigeración utilizado es un prototipo fabricado para validar el sistema de refrigeración (Gagetti, 2017). El dissipador de microcanales fue maquinado en aluminio 1050 y la tapa fue maquinada en aluminio 6063. La base maquinada con microcanales y plenos, y la tapa con la entrada y salida del fluido se muestran en la Figura 31.

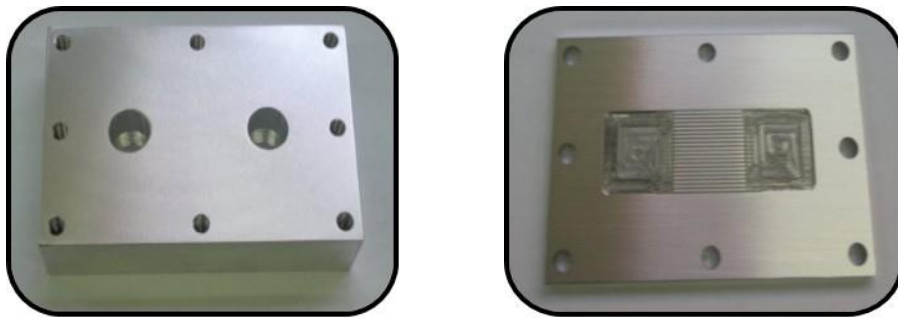


Figura 31. A la izquierda la tapa del dissipador y a la derecha la base con los microcanales.

La base y la tapa fueron soldadas usando la técnica de soldadura por difusión. El proceso de soldadura por difusión se implementa generando una rugosidad controlada sobre ambas superficies a soldar, en este caso las rugosidades fueron realizadas con lija #220 y #600 en cada una de las caras. La rugosidad generada sobre la superficie cumple la función de punzar sobre la superficie del material opuesto para romper la capa de óxido superficial que se forma naturalmente en el aluminio y favorecer la difusión de material de una superficie a otra.

Posteriormente se las presenta de manera que queden en un contacto íntimo y se les aplica una presión externa para aumentar el contacto. Finalmente se realiza un tratamiento térmico en un horno de atmosfera de argón a 580 °C durante 25 minutos (Gagetti, 2017).

## **5. Ensayos con imágenes con neutrones**

En este capítulo comentaremos bajo qué condiciones se llevó a cabo la toma de imágenes con neutrones y analizaremos los resultados obtenidos. Sin embargo, es importante previo a un ensayo experimental, conocer si el sistema que deseamos estudiar se puede resolver mediante la técnica elegida. En tal sentido, en la siguiente sección estudiaremos desde el punto de vista teórico el poder de resolución de la técnica para el estudio del contenido de una película delgada de  $\text{TiH}_2$ .

### **5.1. Estudio analítico de la transmisión de neutrones**

Para comenzar el análisis se necesitan los valores de la sección eficaz total de los elementos que componen el film de titanio y del film del hidruro de titanio, estos datos fueron obtenidos de la página web del NIST Center for neutron research. Tal como se indica en la Tabla 6. Se toma un valor de energía representativo del espectro de carácter térmico.

Longitud de onda = 1.8 Å	Energía = 25 meV	Ti	TiH <sub>2</sub>
Densidad [g/cm <sup>3</sup> ]		4,5	3,76
Sección eficaz macroscópica [cm <sup>-1</sup> ]			
Coherente		0,081	0,224
Incoherente		0,165	7,42
Absorbida		0,345	0,307
Total		0,591	7,951

Tabla 6. Datos característicos de secciones eficaces.

Como se puede apreciar en la Tabla 6 existe una diferencia de la sección eficaz total entre el titanio y el hidruro de titanio, lo cual a priori indica que existirá algún contraste.

En el caso de los microcanales tenemos que utilizar los valores correspondientes al agua y al aluminio; los cuales se pueden ver en la Tabla 7.

Longitud de onda = 1.8 Å	Energía = 25 meV	Al	H <sub>2</sub> O
Densidad (g/cm <sup>3</sup> )		2,7	1
Sección eficaz macroscópica [cm <sup>-1</sup> ]			
Coherente		0,09	0,004
Incoherente		0,0	5,621
Absorbida		0,014	0,022
Total		0,104	5,647

Tabla 7. Datos característicos de secciones eficaces.

Como se puede apreciar existe también diferencia entre la sección eficaz del agua y del aluminio, lo cual anticipa un buen contraste en la imagen por neutrones del sistema de refrigeración con los microcanales.

## 5.2. Muestra 0

### 5.2.1. Estudio analítico de la transmisión

El objetivo de este análisis es determinar la diferencia de transmisión del haz de neutrones entre la muestra sin hidruro y con hidruro; para esto utilizaremos el contraste generado por la diferencia de secciones eficaces de los distintos elementos y se tendrá en cuenta el espesor del hidruro.

Si hacemos el cálculo según (5):

$$\frac{T_{Ti} - T_{TiH_2}}{T_{Ti}} = \frac{W_H}{41000} [ppm H] * Z * (\Sigma_{TiH} - \Sigma_{Ti}) \quad (5)$$

$T_{Ti}$  : Transmisión de la muestra con titanio

$T_{TiH_2}$  : Transmisión de la muestra con el hidruro

$W_H$ : Masa de la muestra en ppm

$Z$ : Espesor de la muestra

$\Sigma_{TiH}$ : Coeficiente de atenuación del hidruro

$\Sigma_{Ti}$ : Coeficiente de atenuación de la muestra con titanio

Con esta expresión (N.L. Buitrago, 2018) podemos apreciar la variación de la transmisión teniendo en cuenta la diferencia entre las sección eficaces totales del titanio y del hidruro de titanio.

El hidruro no tiene una relación estequiometrica 2H: Ti sino una relación entre 1,89 y 1,94. La cual nos da un promedio de 1,9. Esto corresponde a las condiciones de fabricación de las muestras que se utilizaron en este trabajo. El valor 41000 corresponde a la composición del hidruro de titanio a temperatura ambiente. En la Figura 32 podemos ver el diagrama de fases titanio-hidrógeno.

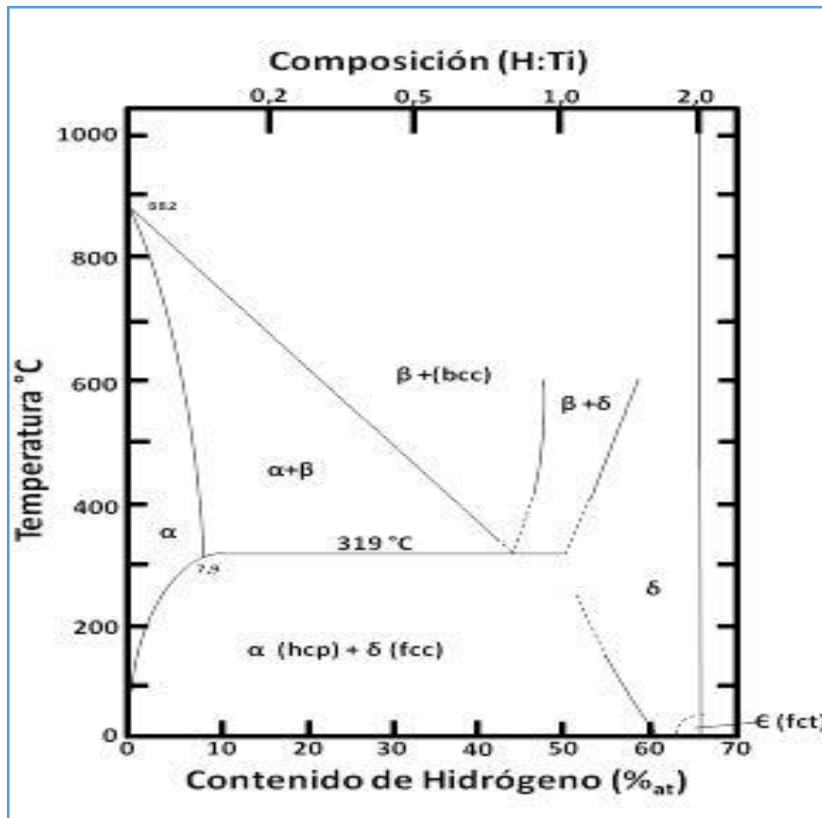


Figura 32. Diagrama de fases titanio-hidrógeno.

Si partimos que para el caso cero tenemos un 4,1 % de hidrógeno en masa en el hidruro de titanio y un espesor de 1  $\mu\text{m}$ , obtenemos un 0,07 % de  $\Delta T$ , este valor indica que para observar un contraste, la relación señal ruido deberá ser al menos 1/100 por lo que será necesario hacer un experimento con muy buena estadística.

### 5.2.2. Muestra 0. Arreglo y condiciones experimentales.

De la muestra 0 contamos con 20 imágenes con 30 segundos como tiempo de exposición ( $I_s$ ), todas las imágenes fueron tomadas en la unidad de neutrografía del RA-6 y procesadas con el programa Image J. Contamos además con la misma cantidad de imágenes sin la muestra ( $I_0$ ) y con el haz bloqueado (B). A las imágenes se las normalizo según la expresión 4.

En la Figura 33 se puede apreciar un histograma de intensidad, donde se puede apreciar la parte correspondiente al centellador (hasta el pixel 100) y a la

muestra con su correspondiente efecto de borde, donde tenemos valores de intensidad mayores esto se debe a los neutrones dispersados.

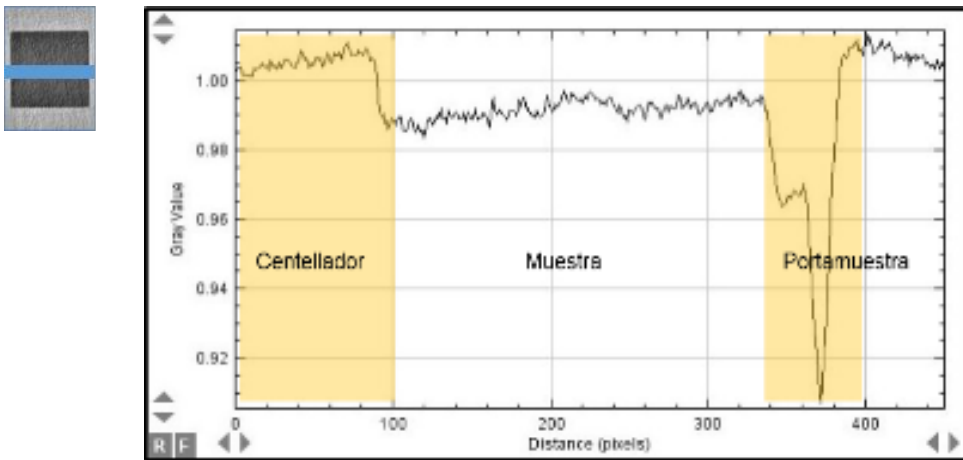


Figura 33. Perfil de intensidad horizontal.

Se analizó la transmisión con diferentes cantidades de imágenes, calculando para cada caso la desviación standard, con lo cual se pudo apreciar que la estadística de dispersión mejora a medida que tomamos mayor cantidad de imágenes, se realizó un gráfico de la desviación standard en función del número de imágenes, el cual se puede apreciar en la Figura 34.

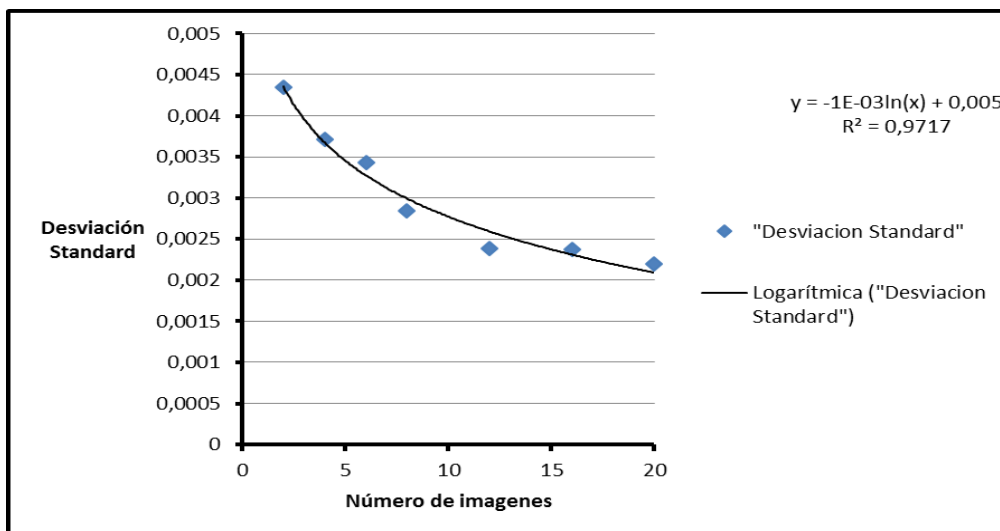


Figura 34. Desviación standard de la transmisión en función del número de imágenes.

### 5.2.3. Muestra 0. Transmisión en la zona de la muestra

Para analizar los datos se recortó la zona correspondiente a la muestra y en un mismo gráfico se expuso la muestra sin hidrógeno y con hidrógeno. En color azul podemos apreciar la muestra de AlTi y en color rojo la muestra con AlTiHx, como se puede ver en la Figura 35, ambas muestras se solapan y no se puede distinguir la variación de intensidad de la muestra con hidruro y sin hidruro.

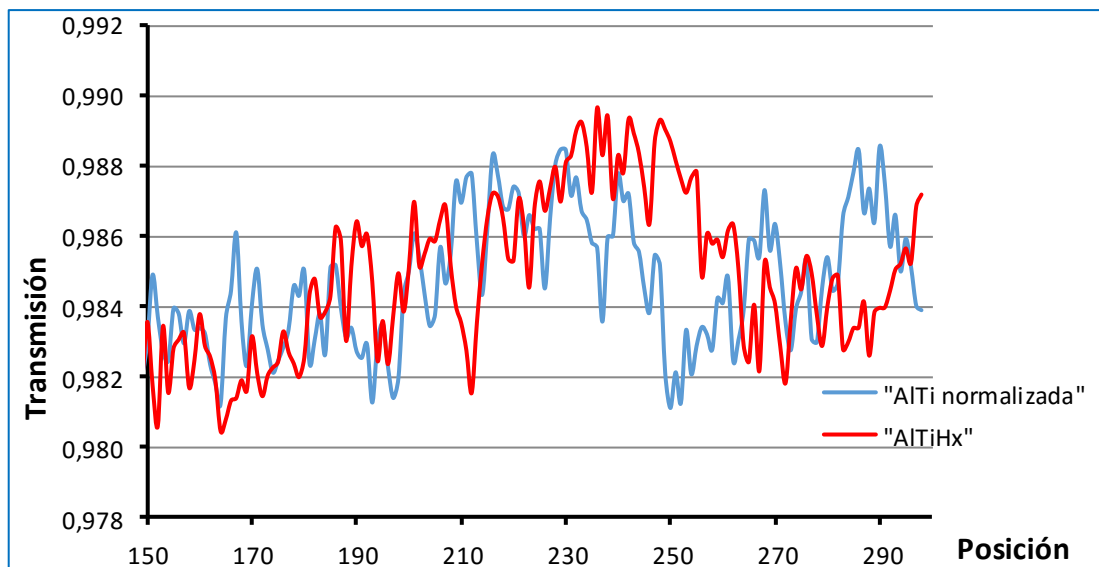


Figura 35. Intensidad en la zona de la muestra.

## 5.3. Análisis de la dispersión

### 5.3.1. Análisis de la dispersión sin muestra

El objetivo de este análisis es evaluar si la mesa portamuestra genera neutrones dispersados, los cuales serían una fuente de error para las posteriores mediciones. Primeramente se realizó el grafico de transmisión a la izquierda de la muestra de arriba hacia abajo como se puede apreciar en la Figura 36.

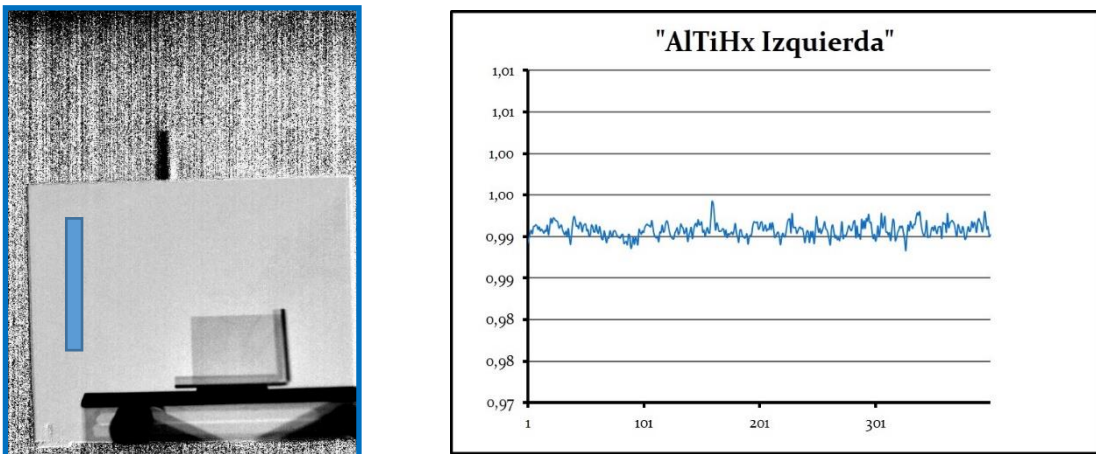


Figura 36. Neutrografia e histograma de intensidad.

En el paso siguiente se graficó la transmisión en el centro de la imagen de arriba hacia abajo como se puede ver en la Figura 37.

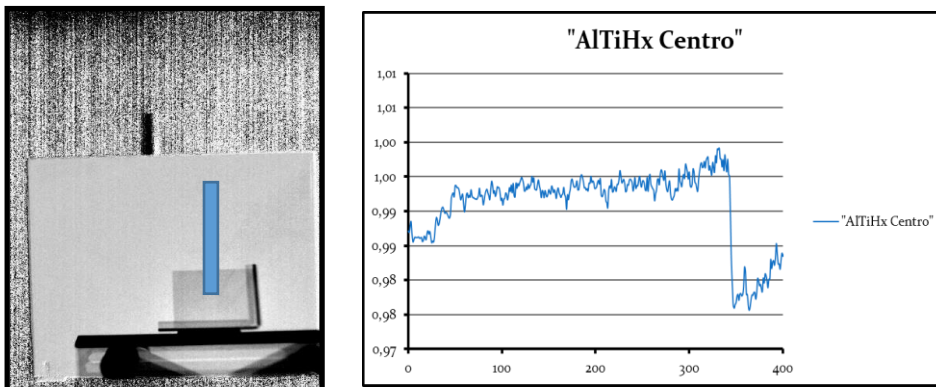


Figura 37. Neutrografia e histograma de intensidad.

En el último caso se graficó la transmisión a la derecha de la muestra de arriba hacia abajo, como se aprecia en la Figura 38.

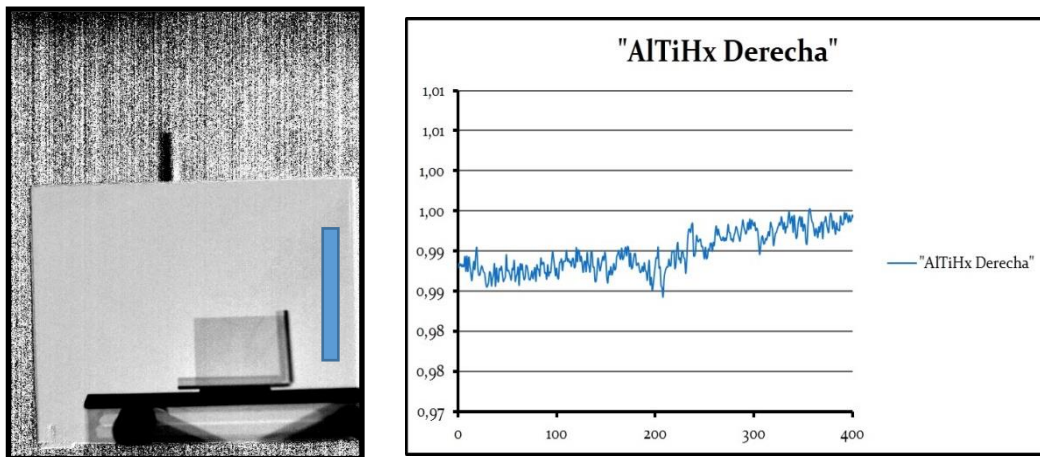


Figura 38. Neutrografia e histograma de intensidad.

## Conclusiones

En el gráfico de transmisión de la zona vertical izquierda se puede apreciar el centellador. En el gráfico de transmisión de la zona central se puede apreciar el efecto de borde al entrar en la muestra y parte de la transmisión sobre la muestra. En la posición a la derecha de la muestra podemos ver nuevamente el centellador.

### 5.3.2. Análisis de los resultados de la dispersión

En la Figura 34 se puede apreciar que a medida que aumenta el número de imágenes disminuye la desviación standard de la transmisión.

En la Figura 35 se observa que no se puede apreciar la muestra con hidruro de la sin hidruro.

Como conclusión podemos ver que para disminuir el ruido de la transmisión necesitamos tomar más imágenes y que aumentando el tiempo de exposición podemos aumentar la resolución. Además la mesa portamuestra genera neutrones dispersados con lo cual decidimos eliminarla.

## 5.4. 2° Experimento Muestra 0

Tomando en cuenta las conclusiones anteriores realizamos un nuevo experimento tomando 60 imágenes de 60 segundos, son 3600 segundos para la adquisición de las imágenes de la muestra  $I_s$ , a los que hay que agregarle la misma cantidad de tiempo para el haz sin muestra  $I_0$  y para el haz cerrado B. Esto nos da en total un poco más de 3 hs. de experimento. Se eligió esta cantidad de imágenes con ese tiempo con el fin de mejorar la relación señal-ruido (mejor estadística). Además en el mismo sentido se decidió retirar la mesa portamuestra para minimizar la dispersión de neutrones.

### 5.4.1. Arreglo experimental

El arreglo experimental consistió en envolver la muestra con papel aluminio, debido a su baja activación y sección eficaz total, fijándolo con cinta sobre el centellador, con esto se logró prescindir de la mesa portamuestra como se puede ver en la Figura 39.

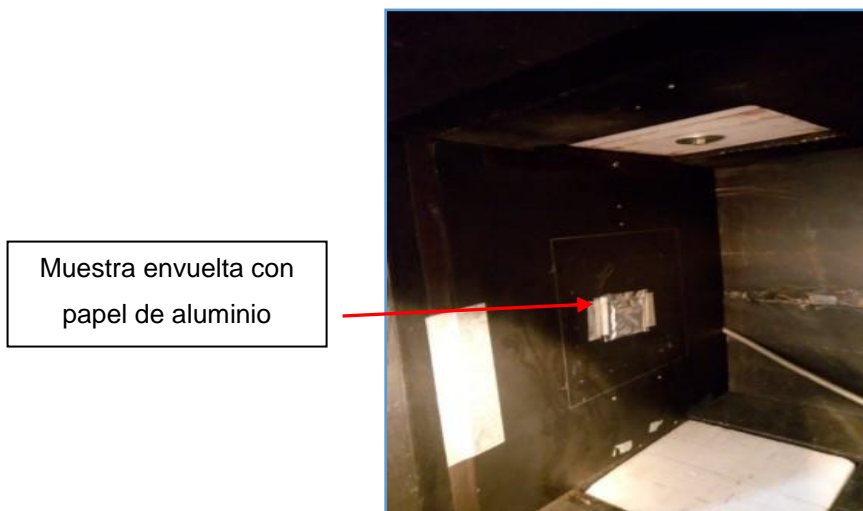


Figura 39. Interior de la unidad de neutrografía.

Se graficó la transmisión en función de la posición usando el programa Image J, tomando un área horizontal a una altura de la mitad de la muestra de izquierda a derecha, como se aprecia en la Figura 40.

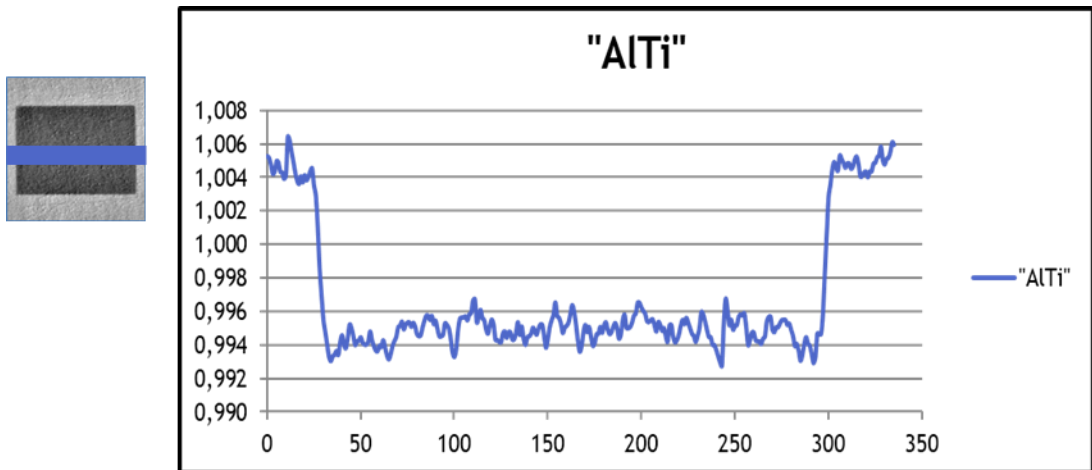


Figura 40. Histograma de intensidad de la muestra AITi.

Luego en un mismo grafico se superpusieron las imágenes de la transmisión de la muestra AITi y AITiHx normalizado con el centellador. Se graficó el área correspondiente a la muestra dejando de lado el área del centellador Figura 41.

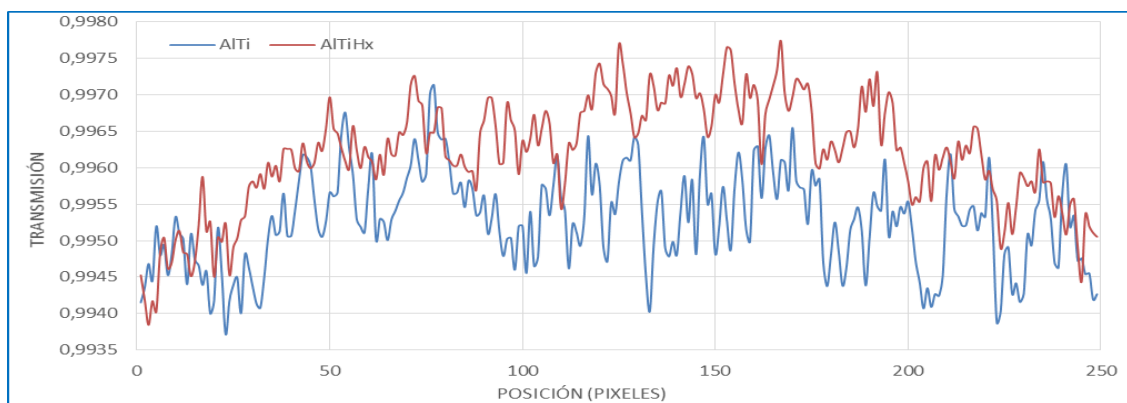


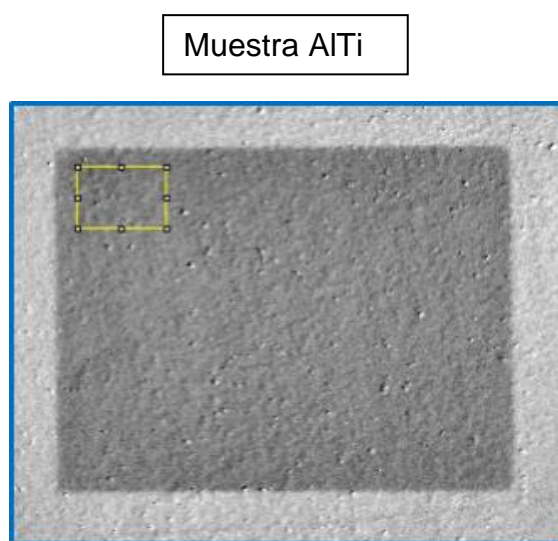
Figura 41. Histograma de intensidad de la muestra 0.

#### 5.4.2. Análisis de las imágenes

En la Figura 41 se puede apreciar el solapamiento de las dos curvas, es decir no es posible aún determinar con claridad cuál es la que tiene hidruro; aunque se ha logrado reducir el ruido comparado con la Figura 35.

El análisis inicial se hizo sobre una banda horizontal de la imagen, pero con el objetivo de seguir estudiando la distribución del hidruro se estudiará la intensidad de transmisión en el área de toda la muestra.

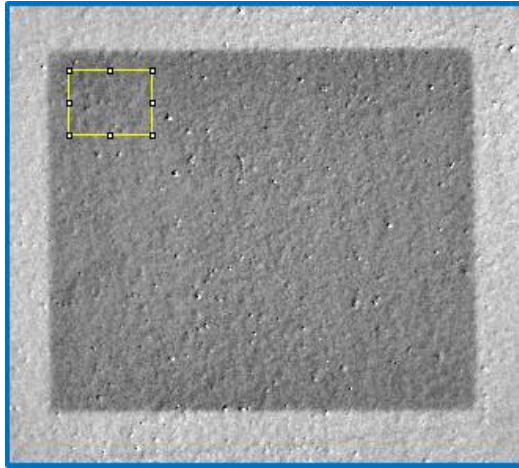
Para seguir con el análisis, a la imagen de la muestra de AlTi se la dividió en 16 cuadrantes y se obtuvieron los valores de transmisión para cada uno de ellos. Asimismo, se calculó el valor de transmisión medio ( $T_m$ ) en toda la superficie, con su error absoluto y porcentual, como se puede apreciar Figura 42.



$$T_m = 0,9925 \pm 0,0007$$
$$\text{Error} = 0,070\%$$

Figura 42. Muestra AlTi.

De igual manera se trabajó con la muestra de AlTiHx normalizada, se la dividió en 16 cuadrantes y se obtuvieron los valores de transmisión junto con su error absoluto y porcentual Figura 43.



$$T_m = 0,9923 \pm 0,001$$
$$\text{Error} = 0,1\%$$

Figura 43. Muestra AlTiHx.

Los valores de desviación standard de la muestra son bajos, es decir que la variación de la transmisión a lo largo de la superficie de la muestra es baja, sin embargo se puede apreciar que hay un solapamiento en los valores de transmisión tal como se vio en la Figura 41.

## 5.5. Ensayo del blanco octogonal

El presente experimento consiste en estudiar la homogeneidad del hidruro de titanio sobre un blanco de producción de neutrones octogonal, de dimensiones similares al blanco real.

### 5.5.1. Arreglo experimental

La muestra es un blanco de forma octogonal que tiene 4 cm de lado y una superficie aproximada de 48 cm<sup>2</sup>, se envolvió con un papel de aluminio y se fijó a la placa centelladora con cinta de papel, teniendo especial cuidado en que la cinta no se superponga a la muestra, como se puede apreciar en la Figura 44.



Figura 44. Arreglo experimental del blanco octogonal.

### 5.5.2. Toma de imágenes

Las imágenes se tomaron con el reactor operando a una potencia de 500 kW, se tomaron 60 imágenes con un tiempo de exposición de 50 segundos, con una profundidad de 16 bits; utilizando una placa centelladora AST de 500  $\mu\text{m}$ .

Se tomaron 60 imágenes con el haz ( $I_s$ ) y sin el haz ( $B$ ). Las imágenes como en todos los casos fueron rotadas utilizando el programa Matlab para poder ver las imágenes de frente al haz y luego procesadas con el programa Image J; se las normalizo y luego se graficó la transmisión en función de la posición en forma horizontal de izquierda a derecha, como se hizo en 5.4.1.

### 5.5.3. Procesamiento de los datos

Procesamos los datos utilizando en programa Image J, se utilizó la herramienta plot profile para hallar la transmisión sobre la muestra en posición horizontal de izquierda a derecha, como se puede ver en la Figura 45.

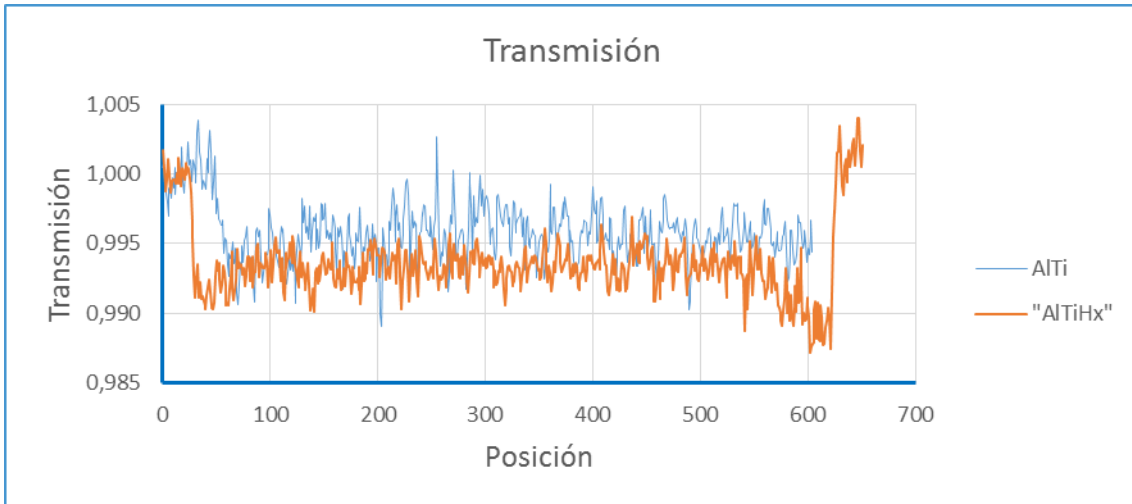


Figura 45. Gráfico de la transmisión en función de la posición.

Con el objetivo de expresar esta curva en valores de coeficientes de transmisión, para independizarnos del espesor, se midió el espesor de la muestra con un micrómetro marca Thebmya con un rango de 0-25 mm y una resolución de 0,01 mm. Tomando varias mediciones se obtuvo el promedio para cada una de las muestras.

Luego trabajando matemáticamente sobre la expresión

$$T(x,y) = \exp(-d * \Sigma(x,y,E)) \quad (6)$$

En donde  $d$  es el espesor de la muestra y  $\Sigma$  es el coeficiente de atenuación, que es directamente proporcional a la sección eficaz total, depende de la posición y la energía del neutrón. Operando matemáticamente llegamos a la expresión del coeficiente de atenuación en función de la transmisión y el espesor.

$$\Sigma = \frac{-\ln T(x,y)}{d} \quad (7)$$

Con esta expresión podemos graficar el coeficiente de atenuación en función de la posición como se ve en la Figura 46.

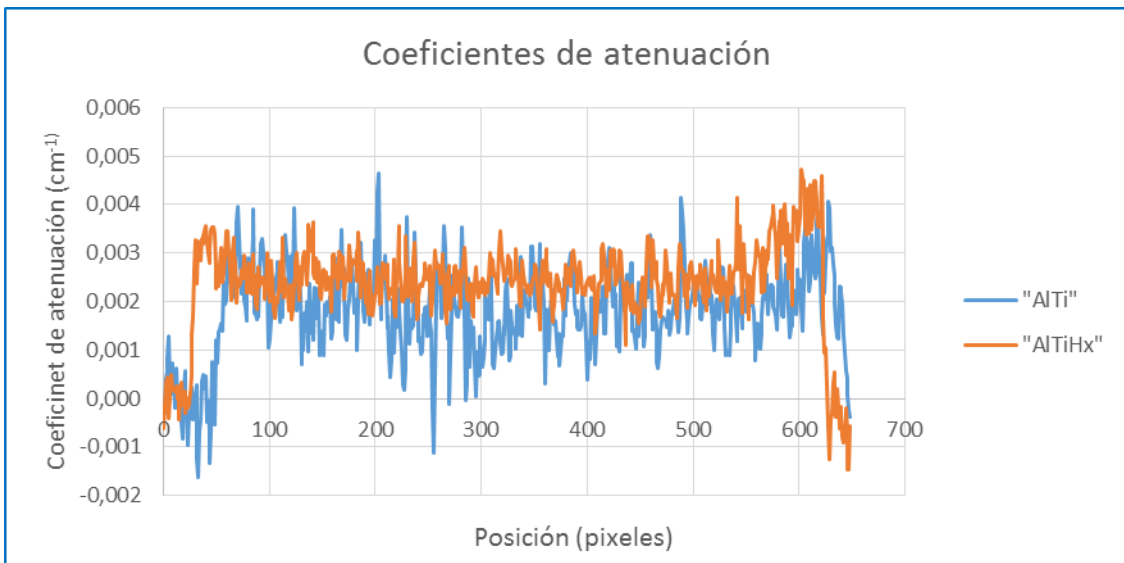


Figura 46. Coeficiente de atenuación en función de la posición.

#### 5.5.4. Análisis de los resultados

Como se puede apreciar en la Figura 45 hay una diferencia entre la transmisión de la muestra AlTi y la transmisión de la muestra AlTiHx. Pero cuando calculamos el coeficiente de atenuación con la expresión 6 y luego lo graficamos en función de la posición podemos apreciar un solapamiento de las dos curvas según se puede ver en la Figura 46.

Como conclusión podemos decir que la técnica de imágenes con neutrones mediante el instrumento de neutrografía del RA-6 no tiene la suficiente sensibilidad. Debido a que no contamos con una fuente de neutrones fríos, que al tener baja energía nos darían un contraste mayor; y además el bajo flujo de neutrones del instrumento, lo que conlleva que para tener una buena estadística se necesitaría un tiempo prolongado de medición para el estudio propuesto.

En conversaciones con el jefe de la unidad y este último con el asesoramiento de expertos internacionales, se llegó a la conclusión que la unidad tiene un error del 3 % debido a los neutrones dispersados por el beam

catcher. Además la cámara CCD tiene baja resolución para los niveles requeridos en este tipo de experimento.

#### 5.5.5. Medición con LIBS

##### Preparación de las muestras

Con el objetivo de determinar la distribución del hidruro y comparar ambas muestras, dividimos la muestra en cuadrículas, partiendo de un rectángulo de 8,5 x 5 cm, lo dividimos en celdas cuadradas de 5 mm de lado. El trazado se realizó con una escuadra combinada marca Plantec y una microfibra roja de trazo 0,1 mm, como se puede apreciar en la Figura 47.

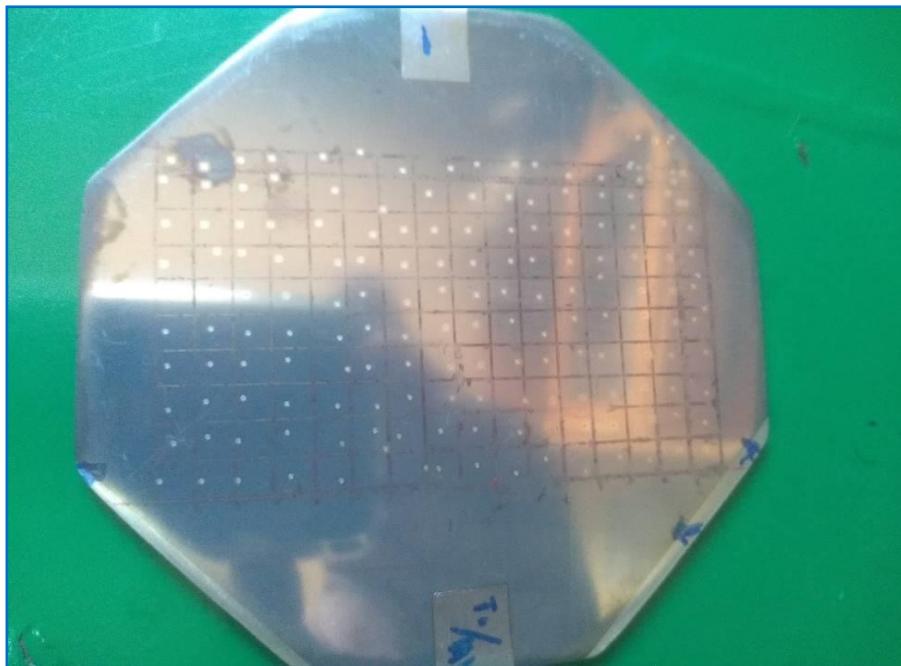


Figura 47. Blanco octogonal con cuadrícula.

Para hacer las mediciones se realizaron disparos LIBS utilizando la metodología de único cráter; se selecciona una sola posición y se realizan 5 disparos LIBS por cada cuadrícula. De cada disparo se obtiene un espectro LIBS, el programa permite guardar los datos de cada disparo, como resultado se obtienen los espectros en superficie y en profundidad de la muestra. En la Figura 46 podemos ver los cráteres dejados por el láser. En la Figura 48 se pueden observar las líneas características del Ti, H y d.

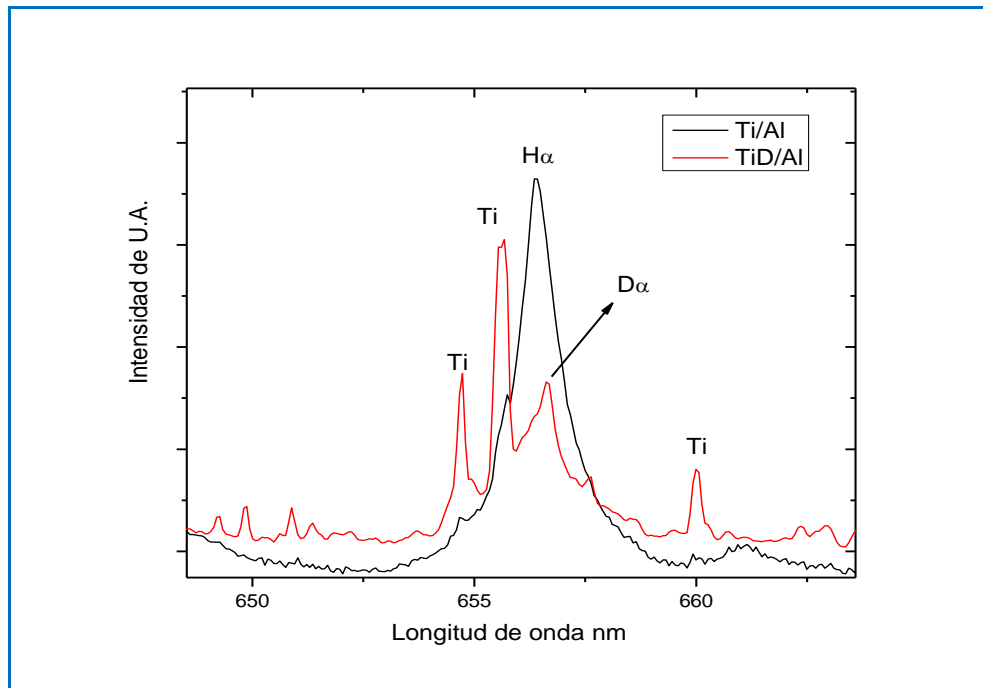


Figura 48. Intensidad en función de la longitud de onda.

En la zonas de 650-660 nm, se muestra la señal característica del H del aire presente en el medio en el momento de realizar la medición LIBS que está identificada como H $\alpha$  a 656,39 nm para la muestra sin hidrógeno (color negro), sin embargo en la muestra con hidrógeno, se observa que hay una superposición de las señales de hidrógeno y deuterio, identificado como D $\alpha$  656,66 nm (espectro de color rojo). (Ibarguen C. E., 2013).

Si bien esta zona sirvió para identificar la presencia de hidrógeno en la muestra, no es una buena zona a la hora de cuantificar debido al solapamiento de las señales de emisión de hidrógeno y titanio en la muestra. Por esto se decidió trabajar en la zona de 486 nm en la cual el hidrógeno presenta una

señal característica correspondiente a la  $H\beta$  486.15 nm, como se puede apreciar en la Figura 49, la cual es bien diferenciable e intensa y a comparación de la muestra no hidrurada, la señal es muy baja siendo esta señal la escogida para realizar las correspondientes mediciones (Ibarguen C. A., 2020).

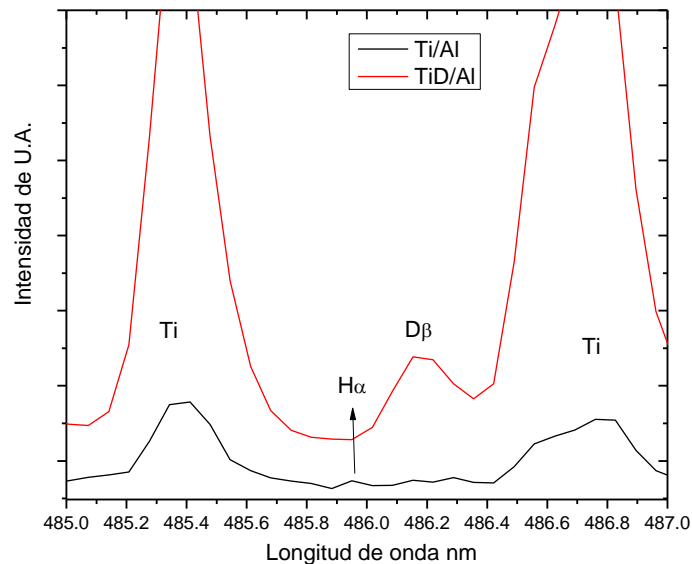


Figura 49. Intensidad en función de la longitud de onda.

Si comparamos la presencia del hidrógeno en profundidad, teniendo en cuenta los cinco disparos en ambas muestras

En el caso de la muestra con hidruro, en la Figura 50 se puede apreciar como desciende la concentración relativa de hidrógeno en la película de titanio.

El primer disparo, en color rojo, muestra la distribución del hidruro en la superficie, se puede apreciar que el hidruro se distribuyó uniformemente en toda la superficie y no se formaron islas de hidruro sino que este ocupó toda la superficie. En los disparos subsiguientes, azul, verde, turquesa, gris; podemos ver que a medida que avanzamos en profundidad tenemos menos concentración del hidruro, pero así también se observa que la distribución es homogénea.

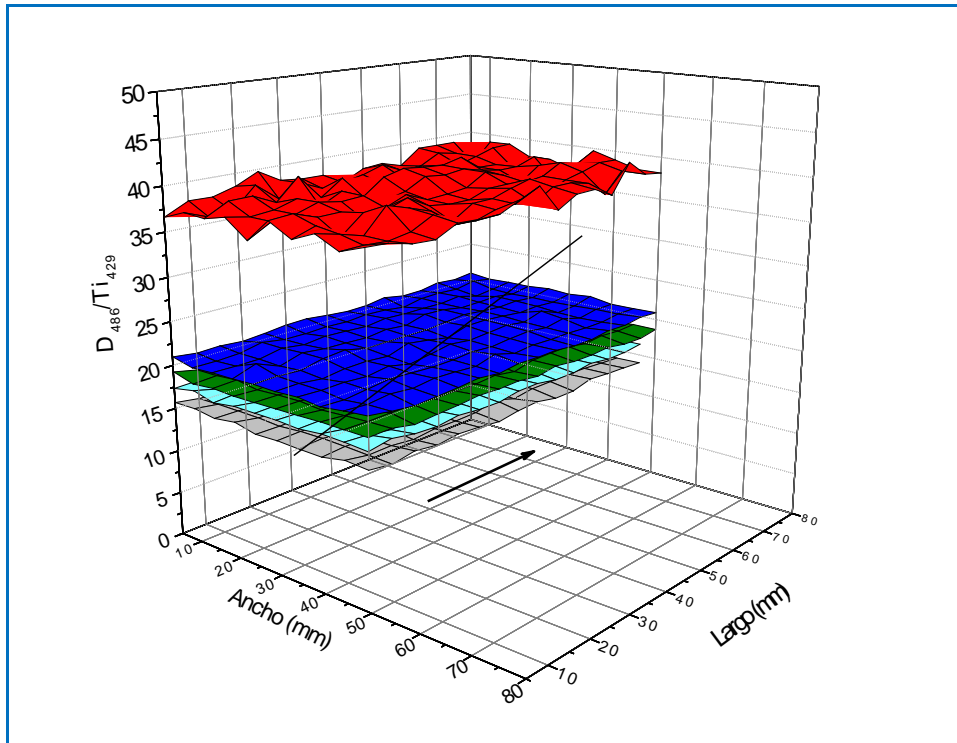


Figura 50. Muestra con hidruro.

En el gráfico de la Figura 51 podemos ver que para la muestra AlTi, color rojo, prácticamente no tiene concentración de hidrógeno y en cambio en la muestra con el hidruro se detecta el hidrógeno. Además podemos apreciar que a medida que hacemos más disparos y avanzamos en profundidad disminuye la concentración de hidrógeno de manera exponencial en la muestra con el hidruro, color negro.

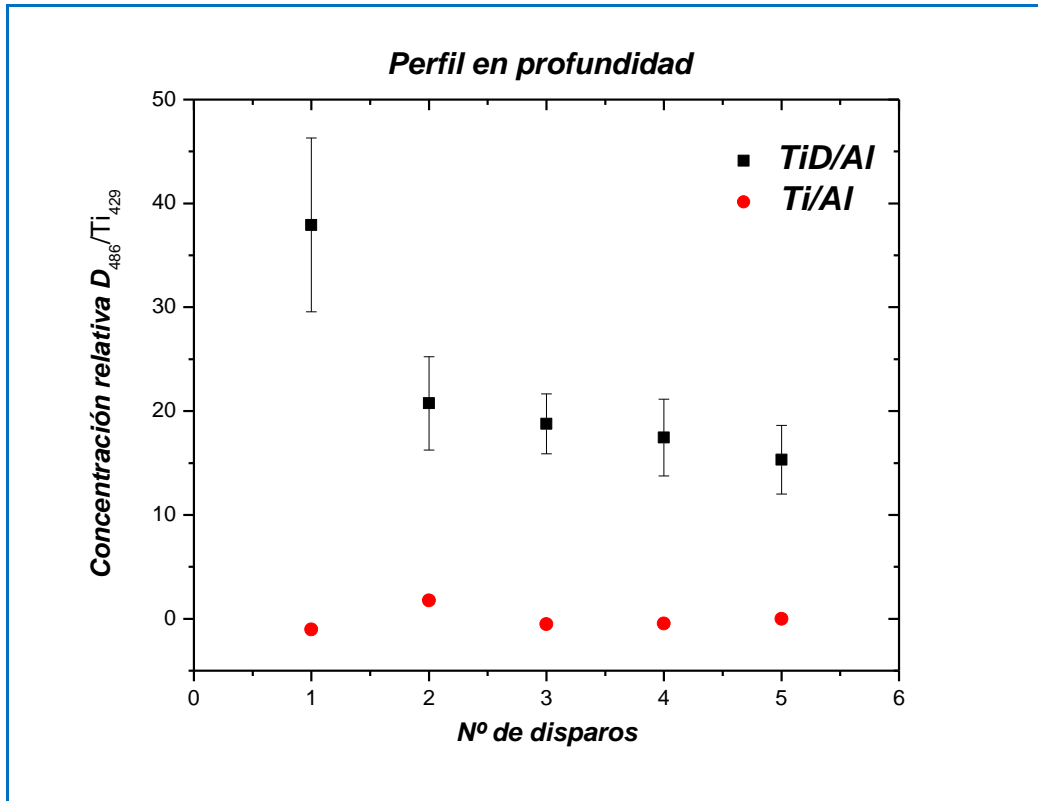


Figura 51. Gráfico de la concentración de hidrógeno en función del número de disparos.

## 5.6. Ensayo del sistema de refrigeración

El presente experimento consiste en evaluar mediante la técnica de imágenes por neutrones la eficacia de la soldadura por difusión del sistema de refrigeración del blanco de producción de neutrones.

### 5.6.1. Arreglo experimental

Para poder realizar este ensayo era necesario tomar las imágenes en dos condiciones distintas: el sistema sin agua y el sistema con agua. Se diseñó un arreglo experimental que permitiera el llenado del sistema de refrigeración y que no obstaculizará el haz de neutrones, como se puede ver en la Figura 52. Por este motivo se fabricaron 2 codos a 90° con la rosca correspondiente para fijarlo al sistema de refrigeración y un sistema de cañerías plásticas con acople rápido junto con una válvula para el llenado del sistema de refrigeración. En este caso se utilizó una mesa porta muestra.

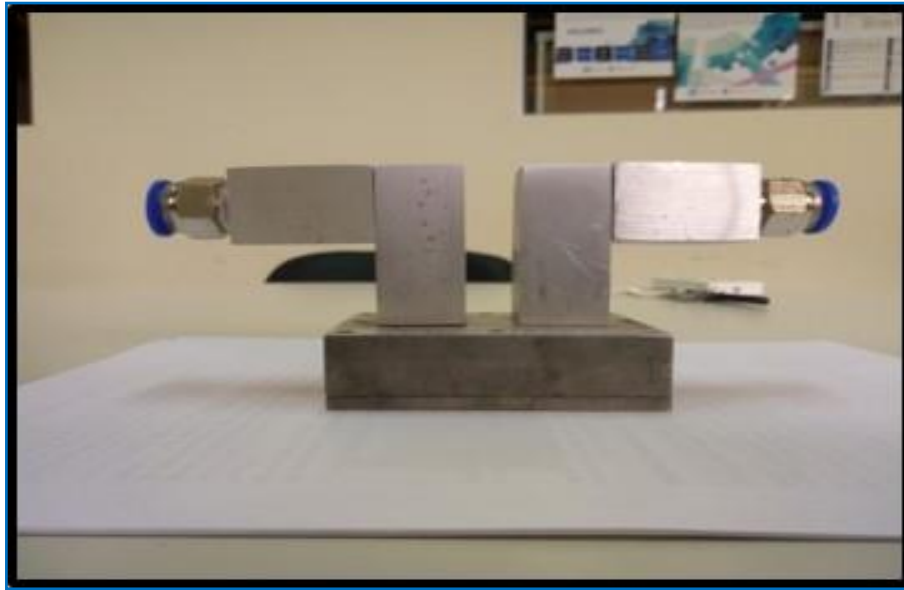


Figura 52. Sistema de refrigeración con los acoples

### 5.6.2. Toma de imágenes

Para la toma de imágenes se agregaron al arreglo experimental las mangueras con una válvula utilizando los acoples rápidos, se lo situó dentro del instrumento de neutrografía posicionándolo con la mesa portamuestra, la idea central es que los codos no obstruyan el haz de neutrones sobre la zona de interés, el arreglo experimental se puede ver en la Figura 53.

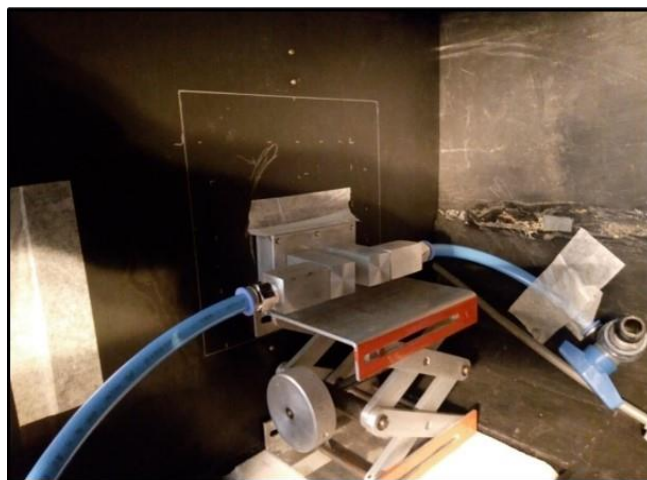


Figura 53. Arreglo experimental.

Primero se tomaron las imágenes sin agua, luego se lo lleno de agua. El agua contiene hidrógeno, el cual tiene una alta sección eficaz total con lo cual obtenemos un buen contraste entre el sistema de refrigeración lleno y vacío, como se puede apreciar en la Figura 54.

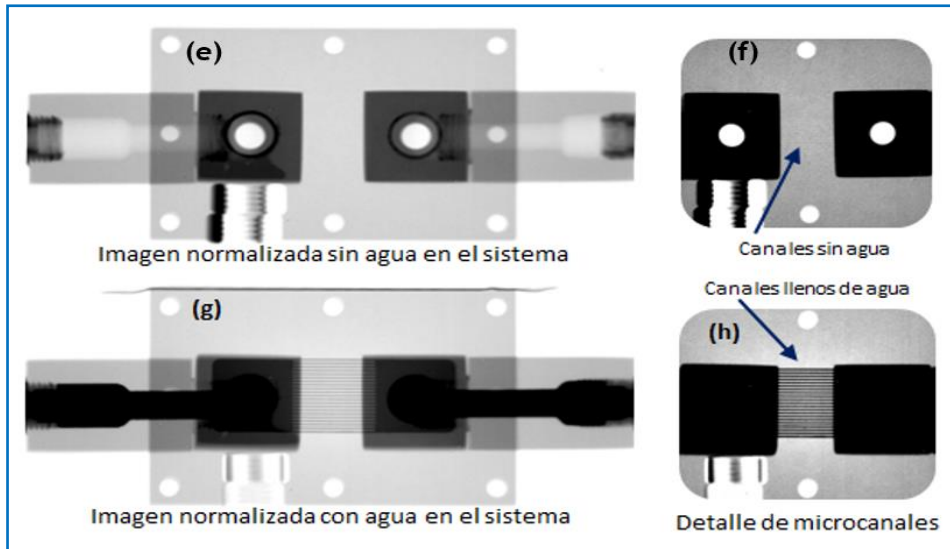


Figura 54. Neutrografía con y sin agua.

### 5.6.3. Análisis de los resultados

Como se puede observar en la Figura 54 (e) aparece con mucho contraste los codos y la muestra de aluminio, en la Figura 54 (f) hacemos un zoom de la zona de los microcanales, en donde no se los divisa. En la Figura 54 (g) podemos ver la muestra con agua, se pueden ver las mangueras llenas de agua y por último en la Figura 54 (h) vemos un zoom de la zona de los microcanales donde se puede apreciar que no existe flujo cruzado ni se han formado piletas, por lo que podemos inferir que la soldadura por difusión de los microcanales resulto exitosa.

## 6. Conclusiones

Esta tesis pretende estudiar el grado de distribución de un hidruro en un blanco de producción de neutrones, como así también estudiar la eficacia de la técnica de soldadura por difusión en un sistema de refrigeración por microcanales. Fabricamos muestras nuevas de dimensiones reales con especial cuidado en la hidrogenación. Mejoramos la dispersión de neutrones debido a objetos auxiliares, como la mesa portamuestra; además mejoramos la estadística aumentando el número de imágenes y el tiempo de exposición pusimos énfasis en medir precisamente el espesor del depósito. Como primera conclusión podemos destacar que el instrumento de neutrografía del reactor RA- 6 es apto para hacer estudio de imágenes por neutrones en muestra que no requieren una alta resolución, como el caso del estudio de los microcanales. En el caso del estudio de la distribución del hidruro por imágenes con neutrones, pese a todos los esfuerzos no fue posible resolver ambas señales debido a que el instrumento del RA-6 no tiene la suficiente resolución, ya que si la diferencia de atenuación entre la muestra con hidruro y la muestra sin el hidruro es de 0,07 % es imposible detectarlo si la unidad tiene un error del 3 %. Como conclusión final podemos decir que el instrumento no es apto para este tipo de análisis.

Sin embargo se utilizó la técnica LIBS como técnica complementaria, la cual es una técnica destructiva pero que nos permitió ver la distribución del hidruro superficialmente y en profundidad, logrando observar una distribución homogénea del mismo.

Recordando que la técnica de imágenes por neutrones es una técnica no destructiva para poder resolver el experimento necesitaríamos contar con una fuente de neutrones fríos, con los cuales conseguiríamos un coeficiente de atenuación mayor del hidruro, esto se podría realizar en una instalación como la que tiene el NIST que opera con neutrones fríos. Cuando este operativo el reactor RA-10, nuestro país contara con un instrumento de neutrografía y

tomografía denominado ASTOR el cual tendrá una fuente de neutrones fríos con un L/D entre 120 y 1500.

En el caso del prototipo del sistema de refrigeración, la resolución espacial fue suficiente para poder llevar adelante el ensayo no destructivo debido a la gran diferencia de sección eficaz del aluminio y del agua, además del espesor de los microcanales. En un futuro se debería ensayar con agua circulando a una determinada presión para reproducir las condiciones de operación.

## Anexo 1

### Características del aluminio 2005

%	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Pb	Zn	Bi	Ti
Mínimo	0,10	0,10	3,50	0,10	0,20	1,00	–	–	–
Máximo	0,80	0,80	5,00	0,80	1,00	2,00	0,30	0,20	0,20

Propiedades físicas:

Densidad [g/cm<sup>3</sup>] = 2,8

Módulo de elasticidad [MPa] = 75000

Coefficiente de Poisson = 0,33

Coefficiente de dilatación (0 a 100 °C) [°C<sup>-1</sup> x 10<sup>6</sup>] = 24

Propiedades: Muy buena maquinabilidad con procesos de arranque de viruta, pobre soldabilidad con técnicas TIG o MIG.

## 7. Bibliografía

- Anzorena, M. B. (2018). Damage evaluation of proton irradiated titanium deuteride thin film to be used as neutron products targets. *Applied Surface Science*(443), 68-73.
- Anzorena, M. S. (2016). et. al, Caracterización and modeling of a MoTaVWZr high entropy alloy. *Materials and Design*(111), 382-388.
- Anzorena, M. S. (2017). *Desarrollo y caracterización de un blanco de producción de neutrones de alta potencia para aplicaciones nucleares y médicas*. San Martín: UNSAM - CNEA.
- Burrell, M. C., & Armstrong, N. R. (1985). Deuterium uptake in titanium thin films. *Surface Science*, 1(160), 235-252.
- Chadwick, J. (1932). Possible existence of a neutron. *Nature*, 312.
- Checchetto, R., & Scardi, P. (1999). Structural characterization of deuterated titanium thin films. *Journal of materials research*, 5(14), 1969-1976.
- CNEA. (13 de 12 de 2019). *Centro Atómico Bariloche*. Obtenido de CAB: [cab.cnea.gov.ar](http://cab.cnea.gov.ar)
- Gagetti, L. (2017). Desarrollo y Construcción de un Blanco de Producción de Neutrones, orientado a la Terapia por Captura Neutrónica en Boro con Aceleradores. *Tesis doctoral*.
- Gwyddion.net. (04 de 05 de 2019). *Gwyddion*. Recuperado el 02 de 06 de 2019, de [Gwyddion.net](http://Gwyddion.net)
- Halliday, R. K. (1999). *Física Vol. 2 versión ampliada*. México: Compañía editorial continental, S.A. de C.V.

- IAEA. (2012). Neutron Generators for Analytical Purposes. *International Atomic Energy Agency Vienna International Centre*.
- Ibarguen, C. A. (2020). *Estudio de la distribución de Deuterio en muestras de películas de Ti soportado en placas de Aluminio*. Centro Atómico Constituyentes: Division Difusión Gerencia de Materiales.
- Ibarguen, C. E. (2013). *Estudio por medio de LIBS de la interdifusión entre aleaciones en base Zr y aceros inoxidable martensíticos de uso nuclear*. Tesis para optar por el título de Magister en Ciencia y Tecnología de Materiales: Universidad Nacional de San Martín Comisión Nacional de Energía Atómica.
- Image J*. (06 de 01 de 2019). Obtenido de Image J: <http://Imagej.nih.gov>
- J Bergueiro, e. a. (2011). Development of high intensity ion sources for a tandem-electrostatic-quadrupole for accelerator-based boron neutron capture therapy. *Applied Radiation and Isotopes*, 12(69), 1676-1679.
- Kasemo, B. (1979). The kinetics of hydrogen interaction with TiH<sub>x</sub> films, 0<x<2. *Applications of Surface Science* 3, 307-328.
- Kreiner. (2014). Present status of accelerator based bnct. *Reports of Practical Oncology Radiotherapy*, 2, 95-101.
- Marin. (2012). Rediseño, construcción y caracterización de la nueva instalación de neutrografía del RA-6. *Centro Atómico Bariloche - Comisión Nacional de Energía Atómica*.
- N.L. Buitrago, J. S. (2018). Determination of very low concentrations of hydrogen in zirconium alloys by neutron imaging. *Journal of Nuclear Materials*(503), 98-109.
- Ohring, M. (1980). *The Materials Science of Thin Films*. New Jersey: Academic Press.
- Petzow, G. (1999). *Metallographic etching*. Ohio: ASM International.

Salvatore Almviva, L. C. (2016). Measurements of deuterium retention and surface elemental composition with double pulse laser induced breakdown spectroscopy. *IOP Publishing | Royal Swedish Academy of Sciences*.

Torres, L. (2010). *Diseño de una fuente fría de neutrones para el acelerador lineal de CAB*. Centro Atomico Bariloche: Tesis doctoral en Ciencias de la Ingenieria .

## 8. Listado de publicaciones

**Caracterización de un blanco de producción de neutrones de  $TiD_2$  para aceleradores mediante la técnica de imágenes por neutrones.**

Luis A. Martínez, Manuel Suarez Anzorena, Aureliano Tartaglione, Julio Marín, Leonardo Gagetti, Alma Bertolo, Mariela F. del Grosso, Andrés Kreiner,

II Congreso de Técnicas Neutrónicas, 8, 9 y 10 de mayo de 2019. Buenos Aires, Argentina.