

C. N. E. A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 2	AÑO 1978

04.78.06

CNEA-NT 6/78

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
PRESIDENCIA DE LA NACION

DIRECCION DE INVESTIGACION Y DESARROLLO
GERENCIA DE DESARROLLO

ALGORITMO NUMERICO PARA LA DETERMINACION DE COEFICIENTES DE
DIFUSION UTILIZANDO ESPECTROMETRIA ALFA

S. Kurokawa, F. Dymont y A. Marajofsky

Departamento de Materiales
Buenos Aires - Argentina

1978

A NUMERICAL ALGORITHM FOR THE EVALUATION OF DIFFUSION
COEFFICIENTS USING ALPHA SPECTROMETRY

SUMMARY

Several authors (1), (2) have reported the construction of abaci derived from the energy spectra of alpha-emitting tracers in order to determine their diffusion coefficients. The abaci were built considering suitable parameters of the spectrum of each nuclide (such as half-width, peak shift, etc.) for a given resolution of the detection system. In every case measures of these parameters in experimental spectra were graphical.

The purpose of this work was to find a numerical algorithm to avoid graphical determinations. This led to choosing certain moments of the energy spectrum which can characterise the width of the corresponding curve. It was also possible to build abaci independent of the tracer and the absorbing material, and also of the detector resolution.

ALGORITMO NUMERICO PARA LA DETERMINACION DE COEFICIENTES DE
DIFUSION UTILIZANDO ESPECTROMETRIA ALFA

S. Kurokawa^{*}, F. Dymont⁺ y A. Marajofsky⁺

RESUMEN

Diversos autores (1) y (2) han confeccionado ábacos para la determinación de coeficientes de difusión de radiotrazadores emisores alfa, a partir de sus espectros de energía. Tales ábacos fueron construídos utilizando parámetros adecuados que caracterizan el espectro de cada nucleido (ancho a altura mitad, corrimiento de picos, etc.), para una resolución del sistema de detección; pero la medición de todos estos parámetros en los espectros registrados experimentalmente debe hacerse en forma gráfica.

El propósito de este trabajo fué encontrar un algoritmo numérico para evitar la determinación gráfica. Para ello se tomó alguno de los momentos del espectro de energías cuyo valor sirve para caracterizar la curva correspondiente. Asimismo, el método de los momentos permitió construir ábacos independientes del radiotrazador, del poder frenador dE/dx , y de la resolución del detector empleado.

* Becaria CONICET

+ Dpto. de Materiales, Gcia. de Desarrollo, CNEA

ALGORITMO NUMERICO PARA LA DETERMINACION DE COEFICIENTES DE DIFUSION UTILIZANDO ESPECTROMETRIA ALFA

I. INTRODUCCION

La espectrometría alfa, a través del "método de degradación de la energía", permite obtener coeficientes de difusión en sistemas donde existen radiotrazadores emisores alfa, y resulta especialmente útil en materiales nucleares.

La degradación del espectro de energías después de un recocado de difusión de una muestra sobre la que se depositó una capa delgada de un trazador emisor alfa, se debe a la pérdida de energía de las partículas alfa en su pasaje por la materia.

La energía con que una de ellas llega a la superficie depende del espesor de materia atravesada: será tanto más pequeña cuanto mayor haya sido la penetración del átomo emisor en la muestra; y todas las que parten de una misma profundidad x tendrán la misma energía residual E al llegar a la superficie.

A partir del espectro de energías $A=g(E)$ registrado en un analizador multicanal, se puede obtener la actividad en función del espesor $A=h(x)$, si se conoce la relación profundidad vs. energía $E=f(x)$. Finalmente, siendo la actividad del trazador proporcional a su concentración $A(x)=rc(x)$, es posible obtener el perfil de difusión y a partir de él, el coeficiente de difusión D .

II. IMPORTANCIA Y NECESIDAD DEL METODO PARA MEDIR PEQUEÑOS COEFICIENTES DE DIFUSION

Utilizando la relación $\overline{x^2}=2Dt$ (II-1) donde $\sqrt{\overline{x^2}}$ es la penetración media de los átomos difundentes y t es el tiempo de recocado de difusión, se puede hallar el límite de la medida del

coeficiente de difusión.

El método de obtención de perfiles de difusión por seccionamiento mecánico es uno de los más usados. Siendo $0.1 \mu\text{m}$ el límite de corte para el seccionamiento, suponiendo que la penetración media de los átomos se alcanza en la 5ª capa seccionada, y si se trabaja con un tiempo de recocido relativamente grande, $t = 5 \times 10^5$ seg., se tiene $\bar{x}^2 \approx 0.25 \mu\text{m}^2$ y $D \approx 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{seg.}$ Vale decir, en el mejor de los casos, el límite del método está dado por este valor.

En el método de la espectrometría alfa, la menor distancia confiable estará relacionada con la resolución del equipo detector pues los átomos que pierden energías del orden de la resolución, no podrán ser apreciados por el detector. Trabajando con el mismo tiempo de recocido, si se cuenta con una buena resolución, del orden de 20 Kev, suponiendo que la pérdida de energía por unidad de longitud es $dE/dx \approx 350 \text{ Kev}/\mu\text{m}$ (valor de dE/dx en UO_2), y en el caso extremo en que la distancia media de los átomos emisores corresponde a una pérdida de energía de 20 Kev, se tendrá $\bar{x}^2 \approx 3.2 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$ y $D \approx 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{s.}$ Esto significa que usando el método de espectrometría alfa, el rango accesible de D se extiende en un factor 100 (1).

En consecuencia, este método para determinar la difusividad de trazadores emisores alfa, resulta ventajoso cuando las penetraciones medias del nucleido son muy pequeñas, del orden del micrón o menor. Este es un procedimiento rápido y no destructivo (3) permitiendo seguir los perfiles en el transcurso del tiempo.

III. PLANTEO GENERAL DEL PROBLEMA. FACTORES QUE COMPLICAN LA INTERPRETACION DE LOS ESPECTROS

Si se tiene difusión en volumen, la distribución del trazador, antes y después de la difusión, está dada por:

$$c(x) = \begin{cases} N & \delta(x=0) & t=0 \\ \frac{N}{\sqrt{\pi Dt}} \exp(-x^2/4Dt) & t>0 \end{cases} \quad (III-1)$$

donde N es la concentración inicial del trazador. Y está ligada a la actividad del trazador emisor de modo que $a(x)=rc(x)$, siendo r constante.

Dado un trazador monoenergético la radiación alfa proveniente de distintas profundidades x, será emitida con una misma energía E_0 . Sin embargo, emergerá de la superficie con energías E diferentes porque habrá recorrido distancias distintas en el absorbente transfiriéndole diferentes cantidades de energía. Esa pérdida de energía por unidad de longitud está dado por el poder frenador $dE/dx = -\epsilon(E)$. Si bien dE/dx es función de la energía (4), para las penetraciones mencionadas más arriba ($\approx 1 \mu m$), puede considerarse $dE/dx = \text{constante} = \epsilon_m$ (III-2). Entonces, $E = E_0 - \epsilon_m x$ (III-3), y si el alcance de las partículas alfa en el medio es R, se tiene $E = E_0(1 - x/R)$.

Esto significa que existe una relación biunívoca entre la concentración del radiotrazador que se encuentra a una profundidad x, y la energía residual E con que llegan a la superficie $x=0$, las partículas alfa que emite.

En la figura 1 se muestra el perfil de difusión y el espectro de energías que se tendría con un detector ideal, antes y

después de la difusión.

De acuerdo a lo dicho hasta aquí, los gráficos c vs. x y a vs. E debieran ser semejantes y las pendientes de las curvas $\ln c$ vs. x^2 y $\ln a$ vs. E^2 , proporcionales. Entonces, debiera ser posible obtener el coeficiente de difusión D a partir de la pendiente de esta última.

Sin embargo, los espectros que se registran en un analizador multicanal (figura 2) no son los esperados sino que aparecen modificados por distintos factores:

- a) la resolución del detector y el ruido electrónico propios del instrumento de medición utilizado (1), (2), (5);
- b) el "straggling" de las partículas alfa dentro del material (6), (7).

El primer factor hace que la línea espectral alfa correspondiente a la energía E (o equivalentemente a partículas provenientes de una profundidad x), se ensanche en forma de una gaussiana de varianza σ_d alrededor de E . Este efecto se supone constante para todas las energías.

El segundo factor también da lugar al ensanchamiento de la línea alfa como otra gaussiana de varianza σ_s . Este efecto se debe a un fenómeno estadístico y su valor depende del número de choques de las partículas alfa y en consecuencia, de la profundidad. La relación entre σ_s y x es de la forma $\sigma_s = \gamma \sqrt{x}$ con γ una constante (6) y (7).

Si bien σ_s es en principio función de la profundidad x , para las penetraciones pequeñas que interesan puede considerarse constante (6).

Ambos fenómenos son independientes uno de otro de modo que sus efectos dan lugar a una única gaussiana centrada en x , de

varianza σ tal que

$$\sigma^2 = \sigma_d^2 + \sigma_s^2 \quad (III-4)$$

y ligada a la resolución con que se registran los espectros en el analizador (ancho de la línea alfa a altura mitad) como

$$\sigma = \frac{\text{resolución}}{2 \times 1.18} \quad (III-5)$$

Dada la relación (III-3) será posible trabajar en adelante tanto en el espacio de energías como en el de penetraciones.

Al registrar un espectro, la resolución finita del equipo reemplaza cada línea espectral de energía E' por una gaussiana centrada en E' , o equivalentemente en x' :

$$a(x, x') = C \exp \frac{-(x-x')^2}{2 \sigma_x^2} \quad (III-6)$$

La actividad real en x' será:

$$a(x') = \int_{-\infty}^{\infty} a(x, x') dx = C \int_{-\infty}^{\infty} \exp \frac{-(x-x')^2}{2 \sigma_x^2} dx = C \sigma_x \sqrt{2\pi}$$

$$\text{De donde } C = \frac{a(x')}{\sigma_x \sqrt{2\pi}} \quad (III-7)$$

y

$$a(x, x') = \frac{a(x')}{\sigma_x \sqrt{2\pi}} \exp \frac{-(x-x')^2}{2 \sigma_x^2} \quad (III-8)$$

Esta es la contribución a la actividad en x que se registra experimentalmente en un analizador multicanal, debido a la gaussiana

centrada en x' . (figura 3). Y la actividad observada en x será la integral de (III-8) sobre todas las x' :

$$A(x) = \int_0^{\infty} a(x') \frac{1}{\sigma_x \sqrt{2\pi}} \exp \left[\frac{-(x-x')^2}{2 \sigma_x^2} \right] dx' \quad (\text{III-9})$$

Esta expresión es una ecuación integral en la cual la incógnita es $a(x')$; su deconvolución puede hacerse mediante sistema de ecuaciones lineales, antitransformadas de Fourier, o polinomios de Legendre.

Aunque la solución analítica de (III-9) existe, su resolución numérica puede ser compleja; en el caso en que el mecanismo predominante es la difusión en volumen, la expresión de $a(x')$ es conocida:

$$a(x') = r c(x') = \frac{A}{\sqrt{\pi} Dt} \exp \left(\frac{-x'^2}{4Dt} \right) \quad (\text{III-10})$$

donde $A=rN$.

Y en este caso,

$$A(x) = \int_0^{\infty} \frac{A}{\sigma_x \sqrt{\pi} \sqrt{2Dt}} \exp \left(\frac{-x'^2}{4Dt} \right) \exp \left[\frac{-(x-x')^2}{2 \sigma_x^2} \right] dx' \quad (\text{III-11})$$

Esta es la expresión analítica integral del espectro degradado de una radiación alfa monoenergética, cuando la distribución de los átomos emisores corresponde a la de una difusión en volumen.

Schmitz y Lindner (8) al cuestionarse si un espectrómetro alfa con su resolución limitada reflejaba correctamente la distribución espacial de los átomos trazadores, llegaron mediante

la integración numérica de (III-11) al importante resultado de que para penetraciones grandes, la curva $\ln A$ vs. x^2 tenía pendiente igual a la de $\ln c$ vs. x^2 .

Alcock (5) en cambio, integró la expresión (III-11) analíticamente y obtuvo:

$$A(x) = \frac{A}{\sqrt{\pi} \sqrt{4Dt + 2\sigma_x^2}} \exp\left(\frac{-x^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x \sqrt{Dt}}{\sigma_x \sqrt{2Dt + \sigma_x^2}}\right) \right] \quad (\text{III-12})$$

Se puede observar que para penetraciones muy grandes, o sea, para tiempos de recocido tales que $x^2 = 2Dt \gg \sigma_x^2$, la fórmula converge a la expresión clásica de la difusión en volumen, confirmando asimismo el resultado de Schmitz y Lindner.

IV. EFECTO DE UN SEGUNDO PICO

Con el advenimiento de mejores detectores se alcanza a resolver una segunda línea del espectro alfa de algunos elementos. Hö y Matzke (1) y Schmitz y Marajofsky (2) trataron de ver la influencia de este segundo pico para bajas penetraciones.

El espectro de una radiación con dos picos de energías E_{o1} y E_{o2} puede considerarse como la superposición de dos radiaciones independientes, con un desplazamiento en energía, de una con respecto a la otra. Esto significa que su expresión analítica se obtiene como suma de dos expresiones del tipo (III-12).

Como para una radiación monoenergética es $A(x) = Af(x)$, donde

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \sqrt{4Dt + 2\sigma_x^2}} \exp\left(\frac{-x^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x \sqrt{Dt}}{\sigma_x \sqrt{2Dt + \sigma_x^2}}\right) \right] \quad (\text{IV-1})$$

para una radiación con dos máximos de energías el correspondiente espectro estará dado por:

$$A(x) = r_1(Af(x)) + r_2(Af(x - \delta)) \quad (IV-2)$$

donde r_1 , r_2 son los rendimientos de las radiaciones y δ la separación entre picos, que de acuerdo a (III-3), es

$$\delta = \frac{E_{o1} - E_{o2}}{\epsilon_m}$$

Entonces resulta,

$$A(x) = \frac{A}{\sqrt{\pi} \sqrt{4Dt + 2\sigma_x^2}} \left\{ r_1 \exp\left(\frac{-x^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x\sqrt{Dt}}{\sigma_x \sqrt{2Dt + \sigma_x^2}}\right) \right] + \right. \\ \left. + r_2 \exp\left(\frac{-(x - \delta)^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{(x - \delta)\sqrt{Dt}}{\sigma_x \sqrt{2Dt + \sigma_x^2}}\right) \right] \right\} \quad (IV-3)$$

En la figura 4 puede advertirse la diferencia que existe entre el perfil de difusión c vs. x (curva 1), y las curvas que representan los espectros A vs. x , para uno y dos picos (curvas 2 y 3 respectivamente). Y en la figura 5 se han graficado $\log c$ vs. x^2 y $\log A$ vs. x^2 , correspondientes a las curvas de la figura 4. Puede observarse que solamente para muy grandes penetraciones las pendientes de las tres curvas convergen hacia un único valor. Esto indica que de ninguna manera es lícito calcular el coeficiente de difusión a partir de curvas $\log A$ vs. x^2 , con mediciones de $A(x)$ obtenidas en el espectro experimental, para las bajas penetraciones que interesan en la difusión en materiales nucleares.

V. CALCULO DE D

Como solución al problema de que la resolución finita y el efecto del 2º pico no permiten obtener directamente D a partir del espectro, para bajas penetraciones, se ha encontrado un método que básicamente consiste en lo siguiente:

- simular los espectros haciendo uso de la expresión analítica (IV-3), para cada resolución (o sea, para cada σ_x), para cada tiempo de difusión (o sea, para cada $\sqrt{Dt}$), para cada nucleido (o sea, para cada r_1 , r_2 y δ), y para cada material (o sea, para cada ϵ_m).
- caracterizar cada curva midiendo en ella algún parámetro adecuado p.
- construir ábacos p vs. $\sqrt{Dt}$ para cada σ_x .
- medir el parámetro p en el espectro experimental registrado en un analizador multicanal con un σ_x dado, luego de un recocido de difusión de duración t.
- recurrir al ábaco p vs. $\sqrt{Dt}$ correspondiente al σ_x usado, buscar $\sqrt{Dt}$ para el valor de p medido, y determinar D para el tiempo de difusión t empleado.

V.1. OBTENCION DE LOS ESPECTROS ALFA A PARTIR DE SU EXPRESION ANALITICA A(x)

Utilizando la expresión (IV-3) se prepararon programas de cálculo en FORTRAN IV para simular los espectros de energía de los radioisótopos ^{238}Pu y ^{233}U . Cada uno de éstos está caracterizado por las siguientes radiaciones:

Elemento	$E_{\alpha 1}$ (Mev)	r_1 (%)	$E_{\alpha 2}$ (Mev)	r_2 (%)
^{233}U	4.820	83	4.780	15
^{238}Pu	5.490	72	5.456	28

En el rango de energías con que se trabaja (4-5 Mev) y para UO_2 como absorbente, el poder frenador dE/dx puede considerarse constante (4).

Para ambos isótopos se tomó $dE/dx = \epsilon_m = 344 \text{ Kev}/\mu\text{m}$.

Con este valor la separación entre picos resulta:

$$\delta = x_2 - x_1 = (E_{o1} - E_{o2}) / \epsilon_m = 0.116 \mu\text{m}.$$

Los datos fueron procesados en una computadora IBM/370 y los gráficos de los espectros se hicieron en una CALCOMB plotter.

Se obtuvieron curvas para distintas resoluciones:

Res. (Kev)	23	40	47	58	70
ζ_E (Kev)	10	17	20	25	30
ζ_x (μm)	0.03	0.05	0.06	0.07	0.09

y distintas penetraciones:

$$\sqrt{Dt} \text{ (}\mu\text{m)}: 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5.$$

Una visión en conjunto de la evolución de los espectros del ^{238}Pu , para una resolución dada y distintos tiempos de difusión se presentan en las figuras 6, 7 y 8.

En cada uno de estos gráficos se observa el desplazamiento de los máximos hacia las energías decrecientes, o equivalentemente, hacia las x crecientes; una disminución en el conteo correspondiente a la energía principal E_{o1} , y un ensanchamiento del espectro para sucesivas penetraciones.

Además se observa que la forma de las curvas es fuertemente dependiente de la resolución del detector. Las curvas 1 corresponden a $t=0$, o sea, a espectros de energía anteriores a la difusión y dan cuenta de la actividad de una capa fina de radiotrazador depositada en la superficie $x=0 \mu\text{m}$. En la figura 6, para

$\sigma_x = 0.03 \mu\text{m}$, la curva 1 muestra claramente los dos picos característicos de la radiación alfa del ^{238}Pu . En la figura 7, para $\sigma_x = 0.05 \mu\text{m}$, ya casi no se resuelve el 2º pico de la curva 1; y en la figura 8, para una mayor resolución ($\sigma_x = 0.07 \mu\text{m}$), los dos picos se superponen y no se diferencian uno de otro. Vale decir, para un detector con resolución pobre, el efecto de la segunda línea es, esencialmente, dar lugar a un pico más ancho desde el comienzo.

Con un recocido corto (Dt pequeño), el pico de energía más bajo aparece a veces más grande que el pico de energía, originalmente mayor (figura 6, curvas 2 a 5). En el caso opuesto de un recocido prolongado (Dt grande) el espectro aparece extendido hacia las energías más bajas; el ancho a altura mitad llega a ser hasta 20 o 30 veces el original.

En la figura 9 se muestran los espectros de ^{233}U para una resolución muy baja ($\sigma_x = 0.01 \mu\text{m}$) y distintos tiempos de recocido.

V.2. PREPARACION DE ABACOS

Los distintos espectros permiten seleccionar, en cada caso, para cada σ_x y para cada $\sqrt{Dt}$ algún parámetro apropiado que los caracterice:

- a- el ancho a altura mitad.
- b- el desplazamiento del pico más intenso de energía E_{01} .
- c- la variación en el cociente de los máximos.
- d- la disminución del conteo en E_{01} .

Hö y Matzke (1) tomaron como parámetros a, b y d; Schmitz y Marajofsky (2), a y c.

En los espectros obtenidos en este trabajo, un parámetro

medible en todos ellos es el ancho a altura mitad. Los ábacos correspondientes se presentan en la figura 10.

El desplazamiento del pico más intenso no es un parámetro útil para las resoluciones consideradas porque su medida es difícil; esta es posible si se cuenta con valores muy bajos de $\sqrt{Dt}$ y una muy buena resolución.

Lo mismo sucede con el cociente de picos, que si bien muy sensible, sólo es utilizable mientras ellos son distinguibles.

La disminución de la actividad en E_{01} fué un parámetro medible y los ábacos correspondientes se muestran en la figura 11.

Sin embargo, los ábacos confeccionados con estos parámetros presentan los siguientes inconvenientes:

- 1) la medición de los parámetros en los espectros se hace gráficamente.
- 2) los ábacos dependen de cada absorbente, de cada nucleido y de cada resolución.

V.3. BUSQUEDA DE UN ALGORITMO NUMERICO

Para solucionar el primer problema se buscó algún parámetro numérico que por su tratamiento matemático disminuyera el efecto de las fluctuaciones estadísticas, y que al mismo tiempo caracterizara el ensanchamiento de una curva tipo gaussiana. Para ello se eligió alguno de los momentos del espectro de energías puesto que su valor da cuenta de la transformación sufrida por la curva para distintos tiempos de difusión.

Los momentos de 1° y 2° orden con respecto a $x=0$ son:

$$\overline{x}_2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} xA(x)dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A(x) dx} \quad \overline{x}_2^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x^2 A(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A(x) dx} \quad (V-3.1)$$

Tomando como parámetro uno de estos momentos puede construirse el ábaco $\overline{x_2}$ vs. $\sqrt{Dt}$ o $\overline{x_2^2}$ vs. $\sqrt{Dt}$, para cada nucleido y material, y para cada resolución.

CALCULO DE LOS MOMENTOS A PARTIR DEL ESPECTRO EXPERIMENTAL:

La determinación del parámetro en el espectro experimental $A_{\text{exp}}(x)$ debe efectuarse mediante las sumatorias

$$\overline{x_2} = \frac{\sum_i x_i A_{\text{exp}}(x_i)}{\sum_i A_{\text{exp}}(x_i)} \quad \text{o} \quad \overline{x_2^2} = \frac{\sum_i x_i^2 A_{\text{exp}}(x_i)}{\sum_i A_{\text{exp}}(x_i)} \quad (\text{V-3.2})$$

donde el número de términos está limitado por la cantidad de canales del analizador multicanal.

V.4. GENERALIZACION A OTROS ISOTOPOS

Tomando como parámetros los momentos del espectro con dos picos subsiste el segundo problema planteado: es necesario construir un ábaco para cada material, para cada radioisótopo y para cada resolución. Con el método de los momentos es posible obtener ábacos independientes del nucleido si se toman como parámetros los momentos, pero del espectro de un único pico:

$$\overline{x_1} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx} \quad \overline{x_1^2} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x^2 A_1(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx} \quad (\text{V-4.1})$$

$$\text{donde } A_1(x) = \frac{A}{\sqrt{\pi} \sqrt{4Dt + 2\sigma_x^2}} \exp\left(\frac{-x^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \text{erf}\left(\frac{x \sqrt{Dt}}{\sigma_x \sqrt{2Dt + \sigma_x^2}}\right) \right]$$

Se observa que $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$ son independientes del trazador pues-

to que resultan sólo función de σ_x y $\sqrt{Dt}$. Para distintas resoluciones se calcularon $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$ con diferentes penetraciones usando el método de integración numérica de Simpson y con ellos se confeccionaron los ábacos $\overline{x_1}$ vs. $\sqrt{Dt}$ (figura 12) y $\overline{x_1^2}$ vs. $\sqrt{Dt}$ (figura 13).

Dado que en la experiencia se registran los espectros $A_{2exp}(x)$ con dos picos resulta necesario hallar la relación matemática que liga los momentos $\overline{x_2}$ y $\overline{x_2^2}$ del mismo con los $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$ de un único pico.

El espectro de dos picos puede escribirse como:

$$A_2(x) = A_1(x) + M A_1(x-\delta) \quad (V-4.2)$$

donde $M=r_2/r_1$ y $A_1(x)=r_1 A(x)$ donde $A(x)$ corresponde a la expresión (III-12).

Reemplazando (V-4.2) en (V-3.1) resulta:

$$\overline{x_2} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_2(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_2(x) dx} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x) dx + M \int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x-\delta) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx + M \int_{-\infty}^{\infty} A_1(x-\delta) dx}$$

y con el cambio de variable $z=x-\delta$:

$$\begin{aligned} \overline{x_2} &= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x) dx + M \int_{-\infty}^{\infty} (z+\delta) A_1(z) dz}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx + M \int_{-\infty}^{\infty} A_1(z) dz} = \\ &= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x) dx + M \left[\int_{-\infty}^{\infty} z A_1(z) dz + \delta \int_{-\infty}^{\infty} A_1(z) dz \right]}{(1+M) \int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx} = \end{aligned}$$

$$\frac{1}{1+M} \left[(1+M)\overline{x_1} + M\delta \right] = \overline{x_1} + \frac{M\delta}{1+M} \quad (V-4.3)$$

Análogamente, haciendo el mismo reemplazo y el mismo cambio de variable para $\overline{x_2}$ en (V-3.1) resulta:

$$\overline{x_2} = \overline{x_1} + \frac{M\delta^2}{1+M} + \frac{2M\delta}{1+M} \overline{x_1} \quad (V-4.4)$$

De (V-4.3) y (V-4.4) se obtiene la relación buscada: los momentos del espectro de un solo pico a partir de los de dos:

$$\begin{cases} \overline{x_1} = \overline{x_2} - \frac{M\delta}{1+M} \\ \overline{x_1^2} = \overline{x_2^2} - \frac{2M\delta}{1+M} \overline{x_2} - \frac{M\delta^2}{1+M} + 2\left(\frac{M\delta}{1+M}\right)^2 \end{cases} \quad (V-4.5)$$

CÁLCULO DE LOS MOMENTOS DEL ESPECTRO DE UN SOLO PICO A PARTIR DEL ESPECTRO EXPERIMENTAL

En el espectro de dos picos que se registra en el analizador multicanal, se calculan los momentos $\overline{x_2}$ y $\overline{x_2^2}$ mediante

$$\overline{x_2} = \frac{\sum_i x_i A_{2\exp}(x_i)}{\sum_i A_{2\exp}(x_i)} ; \quad \overline{x_2^2} = \frac{\sum_i x_i^2 A_{2\exp}(x_i)}{\sum_i A_{2\exp}(x_i)} \quad (V-4.6)$$

y usando (V-4.5) se obtienen $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$.

Se verificó numéricamente la bondad del algoritmo hallando por un lado $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$ mediante las integrales (V-4.1) y por el otro a través de (V-4.5) calculando $\overline{x_2}$ y $\overline{x_2^2}$ con las expresiones:

$$\overline{x_2} = \frac{\sum_i x_i A_2(x_i)}{\sum_i A_2(x_i)} ; \quad \overline{x_2^2} = \frac{\sum_i x_i^2 A_2(x_i)}{\sum_i A_2(x_i)} \quad (V-4.7)$$

tomando un número de términos tal que simulara los momentos

(V-4.6) calculados a partir del espectro experimental, con un número finito de sumandos fijado por la cantidad de canales del analizador multicanal. Se chequearon ambos valores comprobándose un muy buen acuerdo.

V.5. ABACOS INDEPENDIENTES DE LA RESOLUCION Y DEL PODER FRENADOR

Aunque el momento de orden 1 de los espectros de energía es débilmente dependiente de la resolución, ésto no ocurre en general, para los restantes momentos.

El método de los momentos permite construir ábacos no sólo independientes del nucleido, sino de la resolución del detector y del dE/dx .

La expresión del espectro alfa de un solo pico (III-12) puede escribirse como:

$$A_1(x) = \frac{A}{\sqrt{\pi} \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \exp\left(\frac{-x^2}{\alpha^2 + \beta^2}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \frac{\alpha}{\beta}\right) \right] \quad (V-5.1)$$

donde $\alpha = \sqrt{4Dt}$ y $\beta = \sigma_x \sqrt{2}$

y si estos dos parámetros se engloban en uno solo $\alpha' = \frac{\alpha}{\beta}$

$$A_1(x) = \frac{A}{\beta \sqrt{\pi} \sqrt{1 + \alpha'^2}} \exp\left[-\left(\frac{x}{\beta}\right)^2 \frac{1}{1 + \alpha'^2}\right] \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x}{\beta} \frac{\alpha'}{\sqrt{1 + \alpha'^2}}\right) \right] \quad (V-5.2)$$

Haciendo $x = x' \beta$ resulta:

$$A_1(x = x' \beta) = \frac{A}{\beta \sqrt{\pi} \sqrt{1 + \alpha'^2}} \exp\left(\frac{-x'^2}{1 + \alpha'^2}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x' \alpha'}{\sqrt{1 + \alpha'^2}}\right) \right] \quad (V-5.3)$$

Los momentos de $A_1(x)$ resultan:

$$\begin{aligned}\overline{x_1} &= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x A_1(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx} = \frac{\beta \int_{-\infty}^{\infty} x' A_1(x' \beta) dx'}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x' \beta) dx'} = \beta \overline{x_1'} \\ \overline{x_1^2} &= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x^2 A_1(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x) dx} = \frac{\beta^2 \int_{-\infty}^{\infty} x'^2 A_1(x' \beta) dx'}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x' \beta) dx'} = \beta^2 \overline{x_1'^2}\end{aligned}\quad (V-5.4)$$

Llamando

$$\overline{x_1'} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x' A_1(x' \beta) dx'}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x' \beta) dx'} \quad \text{y} \quad \overline{x_1'^2} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} x'^2 A_1(x' \beta) dx'}{\int_{-\infty}^{\infty} A_1(x' \beta) dx'} \quad (V-5.5)$$

se observa que en el cálculo de ambos no aparece explícitamente β y que resultan funciones de α' .

En consecuencia, es conveniente adoptar $\overline{x_1'}$ y $\overline{x_1'^2}$ como parámetros y construir los ábacos $\overline{x_1'}$ vs α' y $\overline{x_1'^2}$ vs α' , los que resultan válidos para cualquier resolución (figuras 14 y 15) y valor de dE/dx .

CALCULO DE $\overline{x_1'}$ Y $\overline{x_1'^2}$ A PARTIR DE LOS ESPECTROS EXPERIMENTALES

En los espectros experimentales se calculan $\overline{x_2}$ y $\overline{x_2^2}$ mediante (V-4.6) y con ellos, $\overline{x_1}$ y $\overline{x_1^2}$ a través de (V-4.5).

Finalmente, como de acuerdo a (V-5.4) $\overline{x_1} = \beta \overline{x_1'}$ y $\overline{x_1^2} = \beta^2 \overline{x_1'^2}$, los valores de $\overline{x_1'}$ y $\overline{x_1'^2}$ buscados se hallan dividiendo por β y β^2 , respectivamente.

VI. RESULTADOS

Siempre que pueda considerarse válida la relación $E=E(x)$, lineal, o sea, para pequeñas penetraciones, es posible trabajar en cualquiera de los dos espacios, energía o penetración, con expresiones semejantes.

Si se trabaja en el espacio de las penetraciones, el procedimiento para obtener el coeficiente de difusión D por el método de los momentos del espectro de energías, suponiendo que se ha elegido el de orden 2, es el siguiente:

- a) Se pasa al espacio x mediante $E=E_0 - \epsilon_m x$.
- b) Se halla el momento $\overline{x^2}$ del espectro registrado en el analizador multicanal.
- c) Se obtiene $\overline{x^2}$ usando la expresión (V-4.5).
- d) Se calcula $\overline{x'^2} = \overline{x^2} / \beta^2$ con $\beta = \sigma_x \sqrt{2}$.
- e) Con este valor de $\overline{x'^2}$ se recurre al ábaco $\overline{x'^2}$ vs α' y se halla $\alpha' = \alpha / \beta = \sqrt{4Dt} / \sqrt{2} \sigma_x$. Para una resolución R dada, siendo $R=2 \times 1.18 \sigma_E$ y $\sigma_E = \sigma_x / \epsilon_m$ y para un tiempo de difusión determinado, se puede hallar el valor de D .

VII. CONCLUSIONES

Se propone un nuevo método para la determinación de coeficientes de difusión en volumen, por medio de la espectrometría alfa de radiotrazadores emisores alfa, que utiliza como parámetro característico alguno de los momentos (primero o segundo), del espectro de energías.

El mismo presenta las siguientes ventajas con respecto a los hasta ahora utilizados:

- a) Es un algoritmo numérico que evita la determinación gráfica del parámetro.

b) Recurriendo a una propiedad conocida de los momentos permite referir el momento del espectro de dos picos al de uno sólo que no depende del nucleido.

c) Por otra parte, se puede hacer el cambio de variable $x=x'\beta$ y englobar las cantidades $\alpha = \sqrt{4Dt}$ y $\beta = \sigma_x \sqrt{2}$ en una sola $\alpha' = \alpha/\beta$ de tal modo que tomando como parámetro x'_1 o x'^2_1 , cada uno de ellos, en función de la variable α' , queda representado en una sola curva universal, de validez general, con las siguientes características:

- No depende de r_1, r_2, E_{o1}, E_{o2} propios de cada radioisótopo.
- No depende de ϵ_m , sea éste determinado por la diferente energía del radiotrazador o por un medio absorbente distinto.
- No depende de σ_x relacionado con el poder frenador ϵ_m y con la resolución del detector.

REFERENCIAS

- 1 A. HO y HJ. MATZKE, Nuclear Instruments and Methods 114 3 (1974) 459.
- 2 F. SCHMITZ y A. MARAJOFISKY, Thermodynamics of Nuclear Materials 11 (1974).
- 3 D.M. KROGER, Journal of Nuclear Materials 41 (1971) 345-347.
- 4 V. NITZKI y HJ. MATZKE, Physical Review B 8 (1973) 1894-1900.
- 5 C.B. ALCOCK et al., Thermodynamics of Nuclear Materials 11 (1966) 57-72.
- 6 J.F. MARIN y M. CONIGLIO, Nuclear Instruments and Methods 42 (1966) 302-304.
- 7 R. EVANS, The Atomic Nucleus, McGraw Hill Book Company, Inc. 1955.

LEYENDAS DE LAS FIGURAS

- FIG. 1
- | | | |
|--|---|-------|
| a. Perfil de difusión | } | $t=0$ |
| b. Espectro de energías | | |
| e. Probeta con depósito delgado en $x=0$ | } | $t>0$ |
| c. Perfil de difusión | | |
| d. Espectro de energías | | |
| f. Probeta con gradientes de concentración | | |
- FIG. 2 Espectros de energía en un monocristal de UO_2 .
- FIG. 3
- Espectro de una línea alfa, o sea, de una fina capa de trazador que se observa en un analizador multicanal de resolución finita, a $t=0$.
 - Esquema de las distintas gaussianas centradas en x' que contribuyen a la actividad en x después de la difusión ($t > 0$).
 - Espectro resultante.
- FIG. 4
- Perfil de concentración del trazador.
 - Espectro de energías de radiación alfa emitida por un trazador monoenergético.
 - Espectro de energías de un trazador con dos energías características.
- FIG. 5 Gráficos de $\log c$ vs x^2 y $\log A$ vs x^2 de las curvas de la figura 4.
- FIG. 6 Evolución de espectros de ^{238}Pu , para $\sigma_x = 0.03 \mu\text{m}$.
- FIG. 7 " " " " " " $\sigma_x = 0.05 \mu\text{m}$.
- FIG. 8 " " " " " " $\sigma_x = 0.07 \mu\text{m}$.
- FIG. 9 " " " " ^{233}U " $\sigma_x = 0.01 \mu\text{m}$.
- FIG. 10 Abacos: ancho a altura mitad vs Dt .
- FIG. 11 Abacos: disminución del conteo en E_{ol} vs Dt .

- FIG. 12 Abacos: momento de orden 1 del espectro de un solo pico vs. $\sqrt{Dt}$.
- FIG. 13 Abacos: momento de orden 2 del espectro de un solo pico vs. $\sqrt{Dt}$.
- FIG. 14 Abacos: (momento de orden 1 del espectro de un solo pico)/ β vs. α' .
- FIG. 15 Abacos: (momento de orden 2 del espectro de un solo pico)/ β^2 vs. α' .

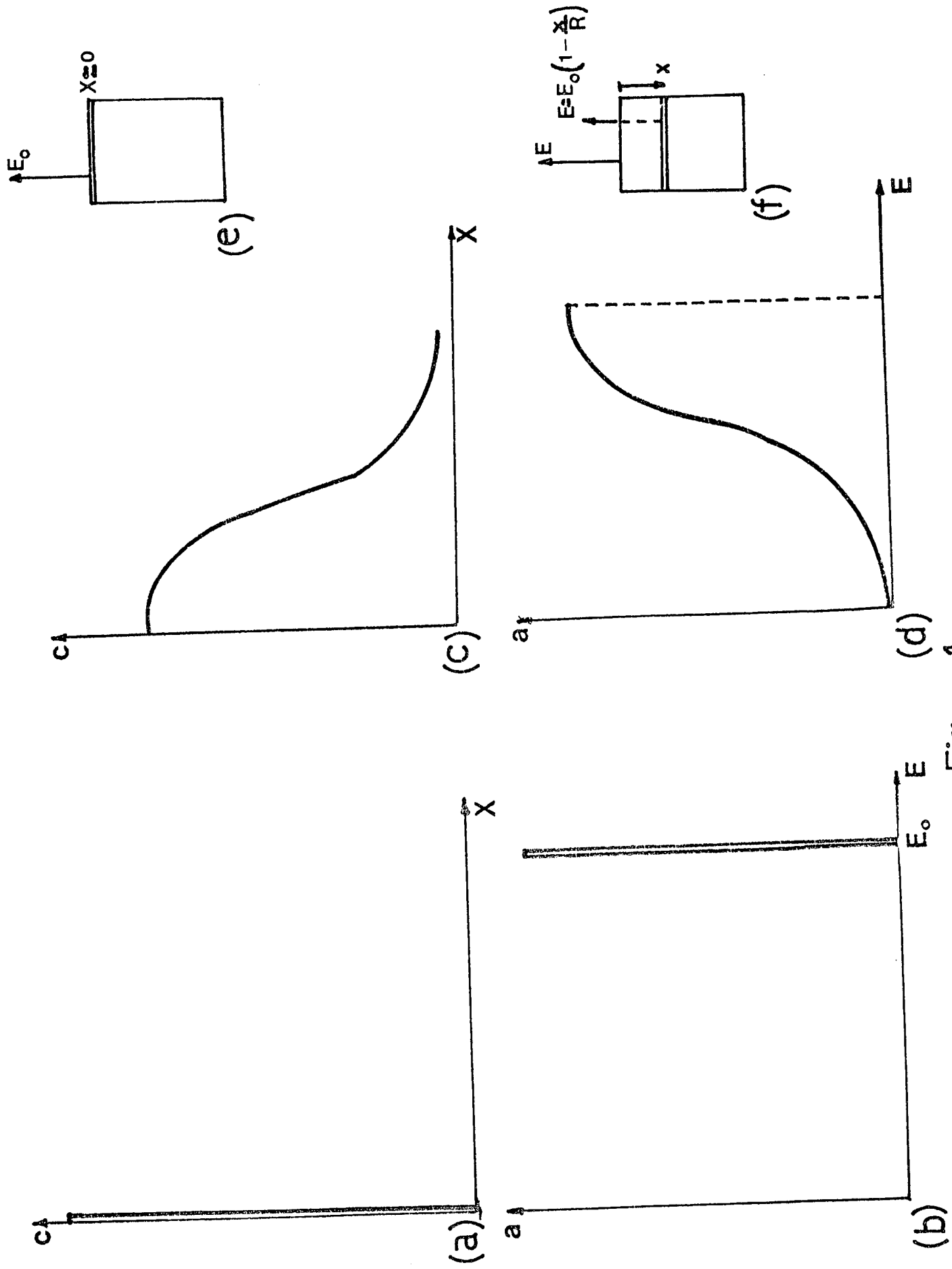


Figure 1

ESPECTROS DE ENERGIA EN UN MONOCRISTAL DE UO_2

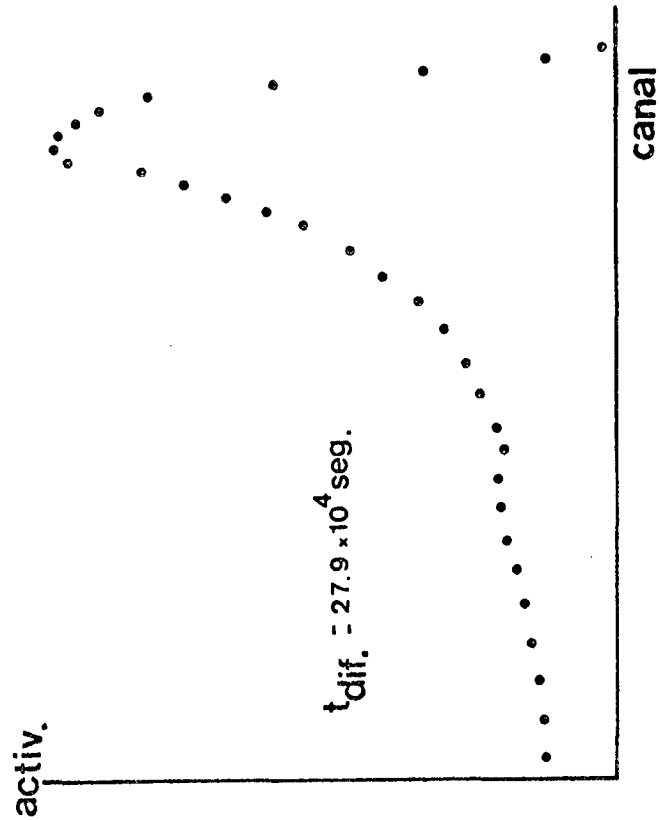
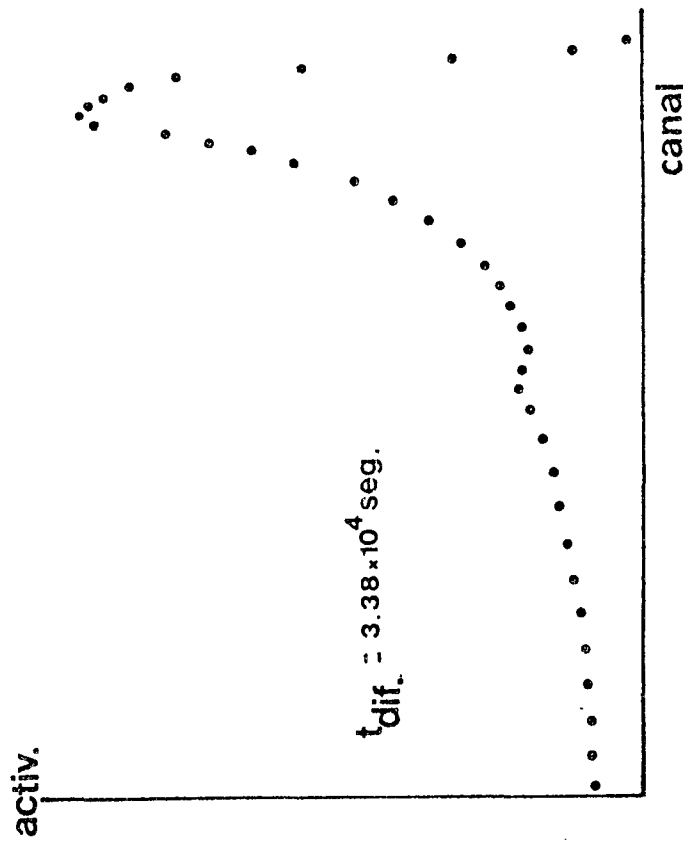
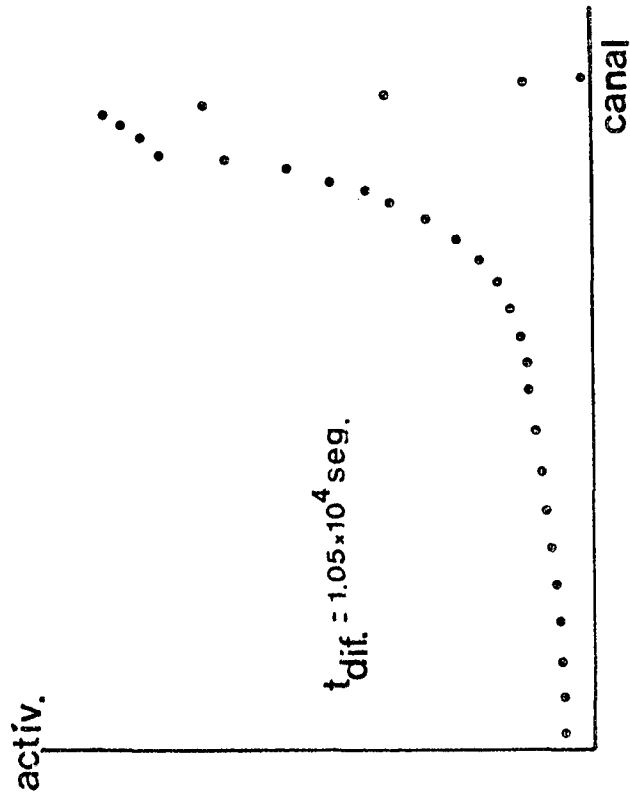
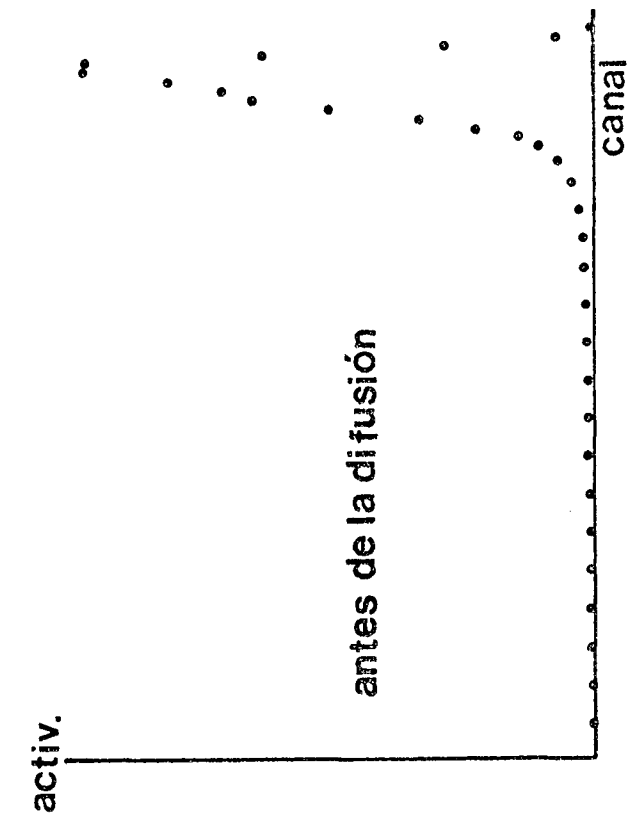


Figura 2

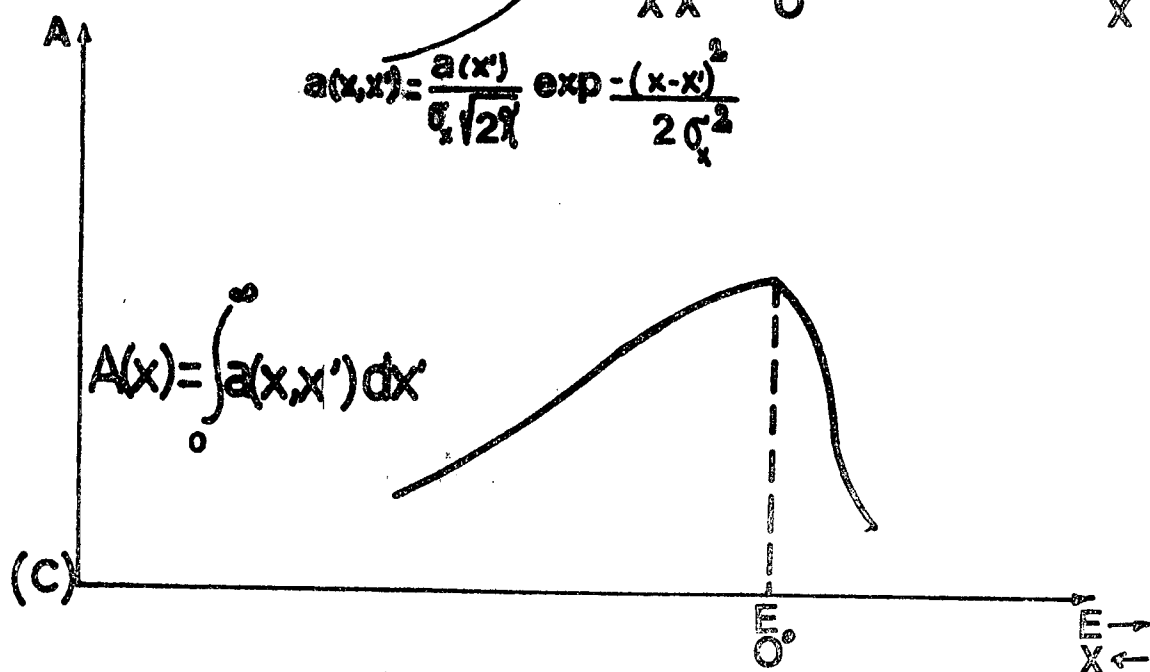
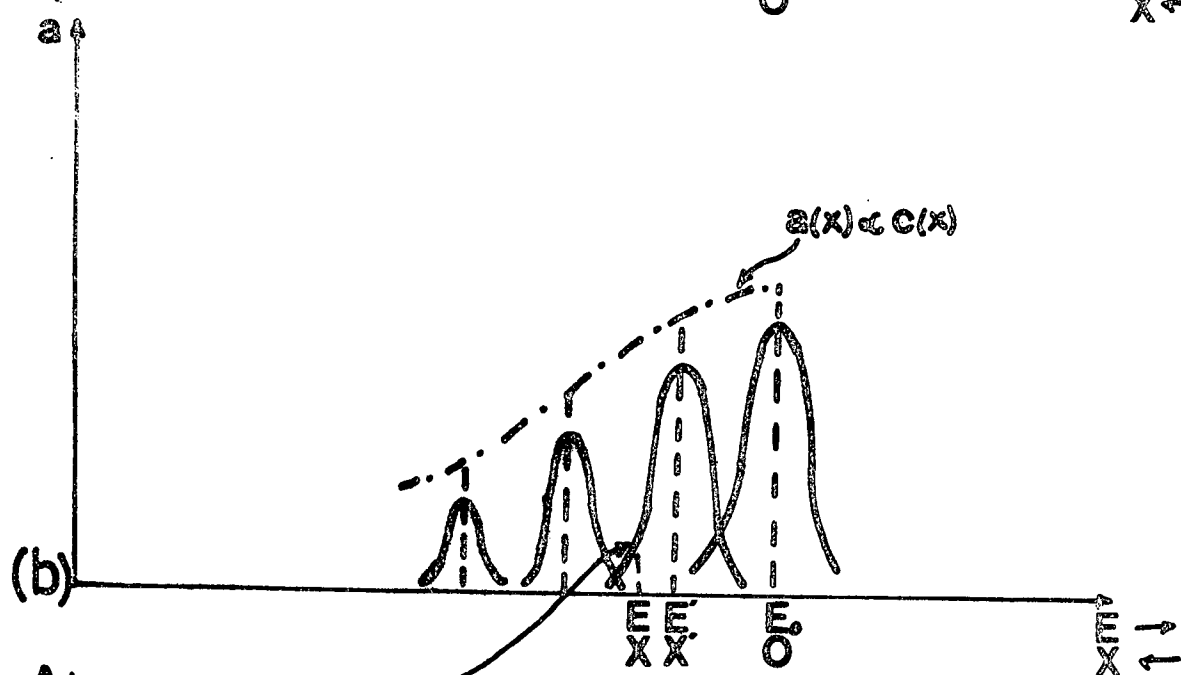
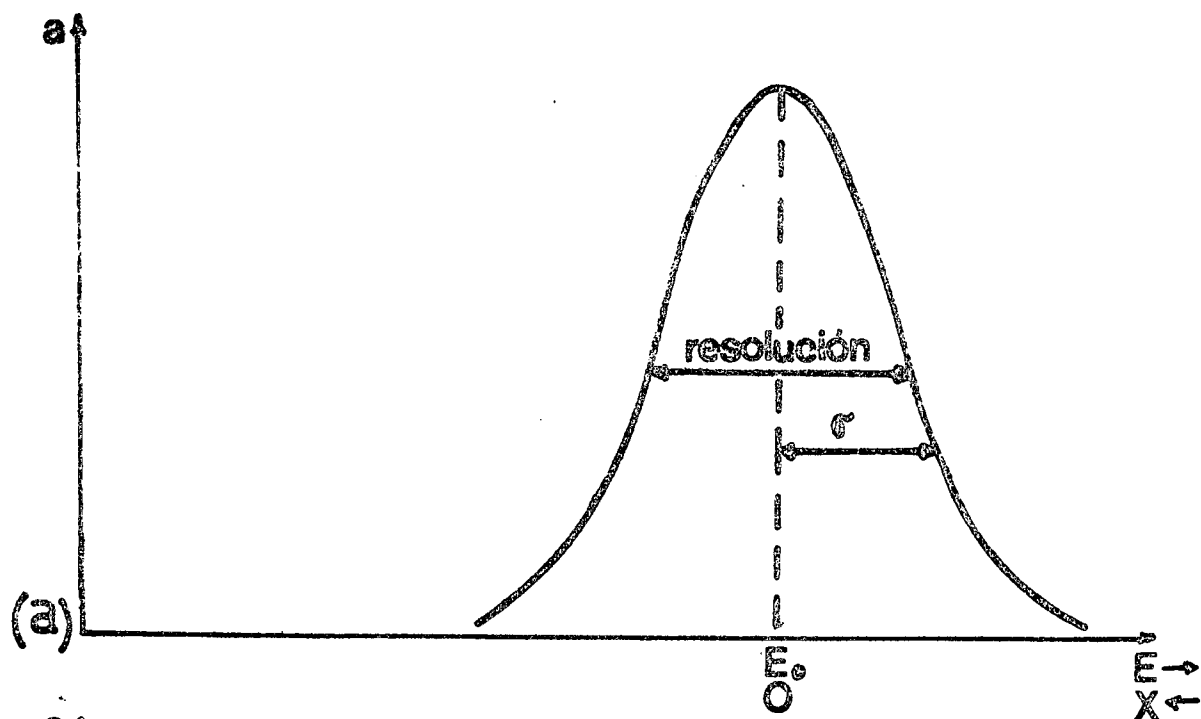
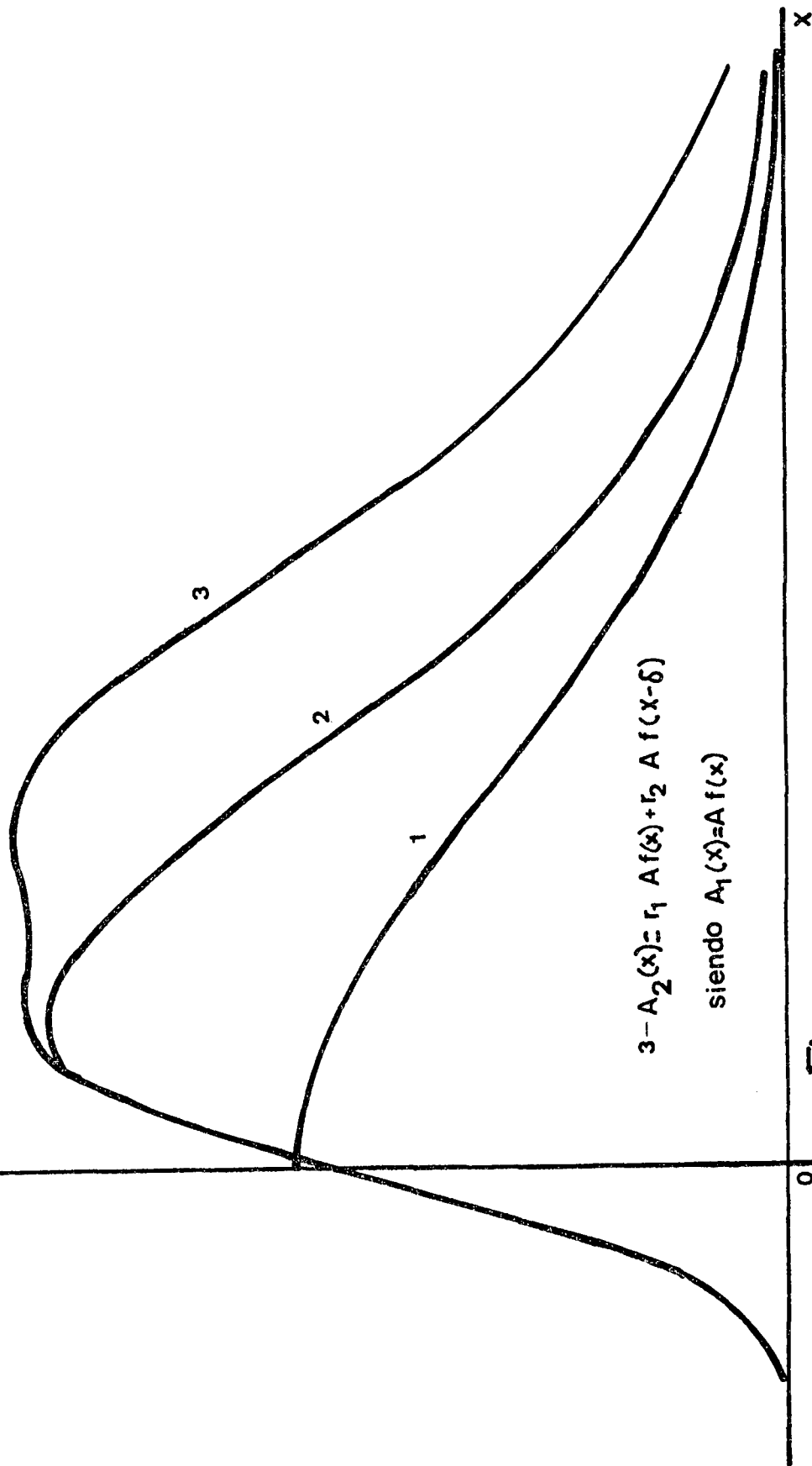


Figura 3

$$1 - c(x) = \frac{N}{\sqrt{\pi Dt}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right)$$

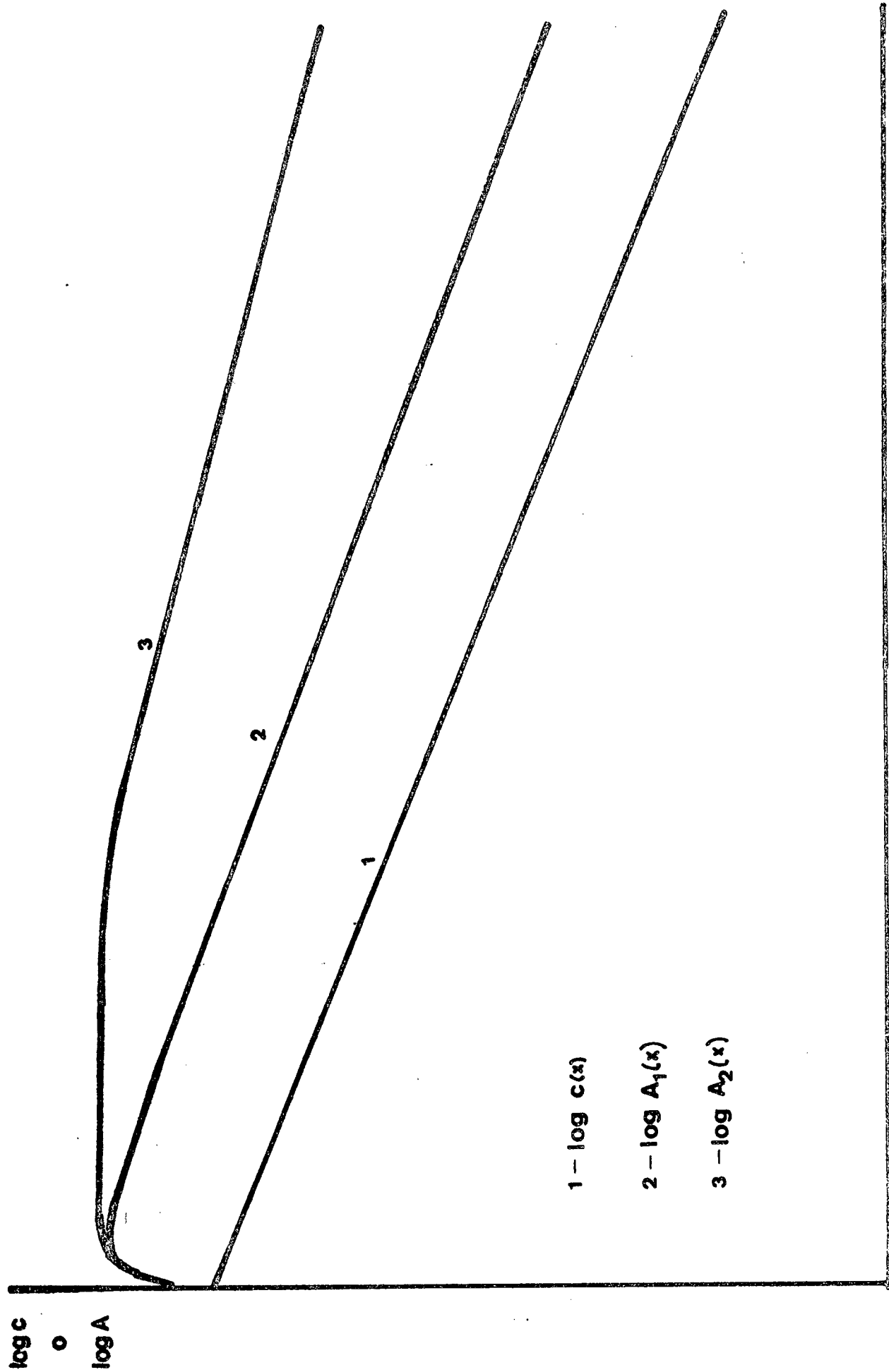
$$2 - A_1(x) = \frac{A}{\sqrt{\pi(4Dt + 2\sigma_x^2)}} \exp\left(-\frac{x^2}{2(2Dt + \sigma_x^2)}\right) \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x\sqrt{Dt}}{\sqrt{2Dt + \sigma_x^2} \cdot \sigma_x}\right) \right]$$



$$3 - A_2(x) = r_1 A f(x) + r_2 A f(x - \delta)$$

siendo $A_1(x) = A f(x)$

Figura 4



x^2

Figura 5

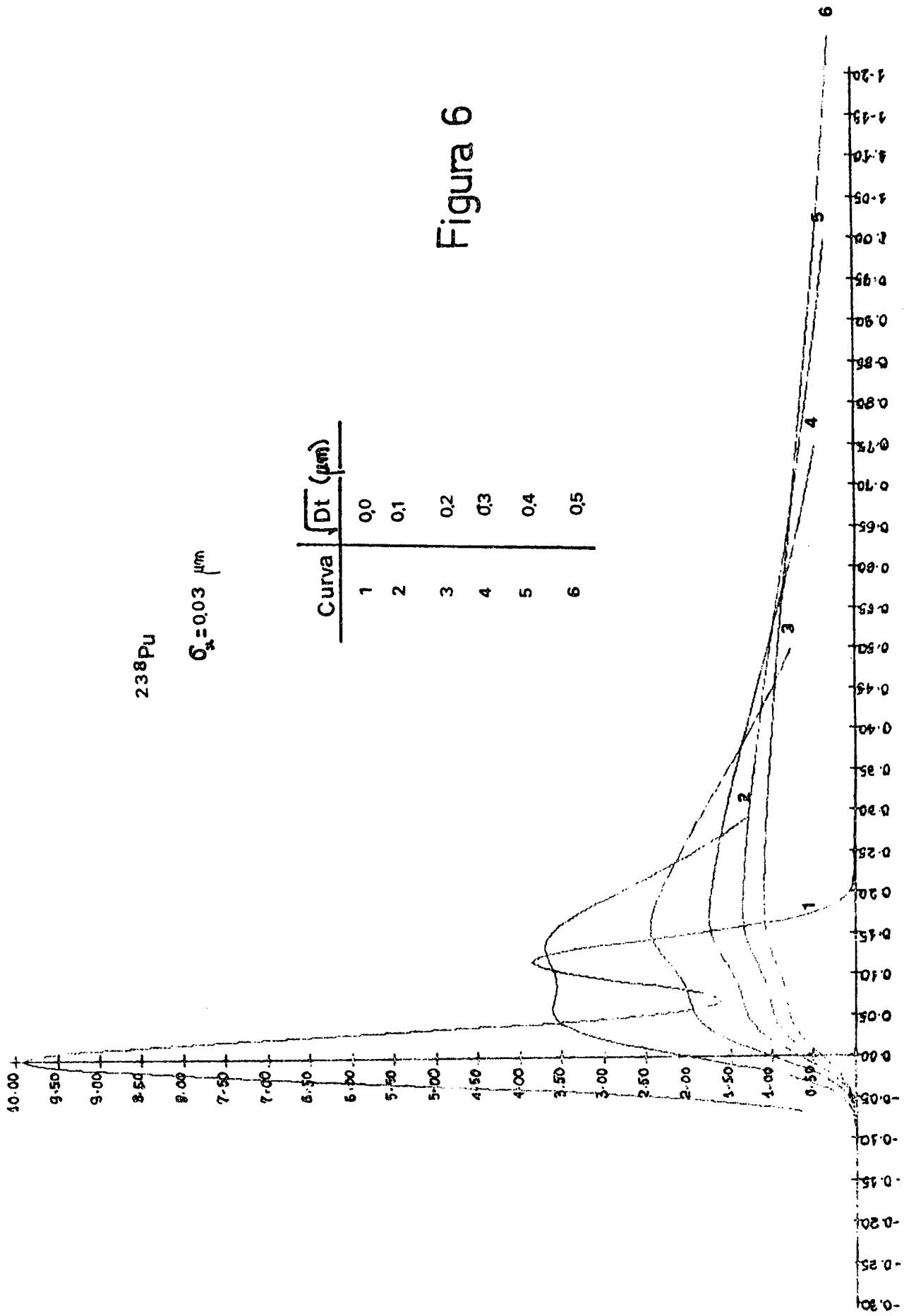


Figura 6

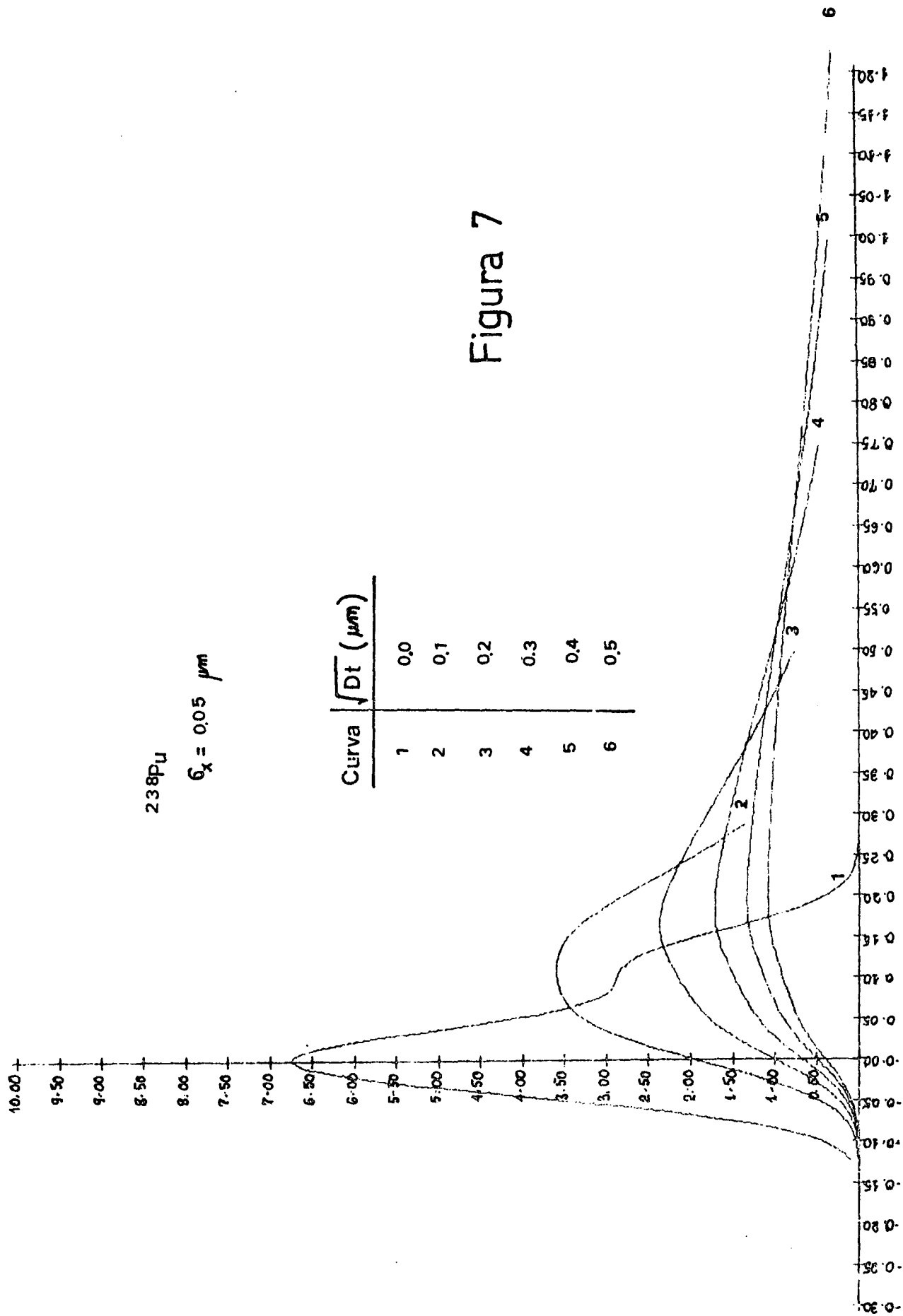


Figura 7

^{238}Pu

$\sigma_x = 0.07 \mu\text{m}$

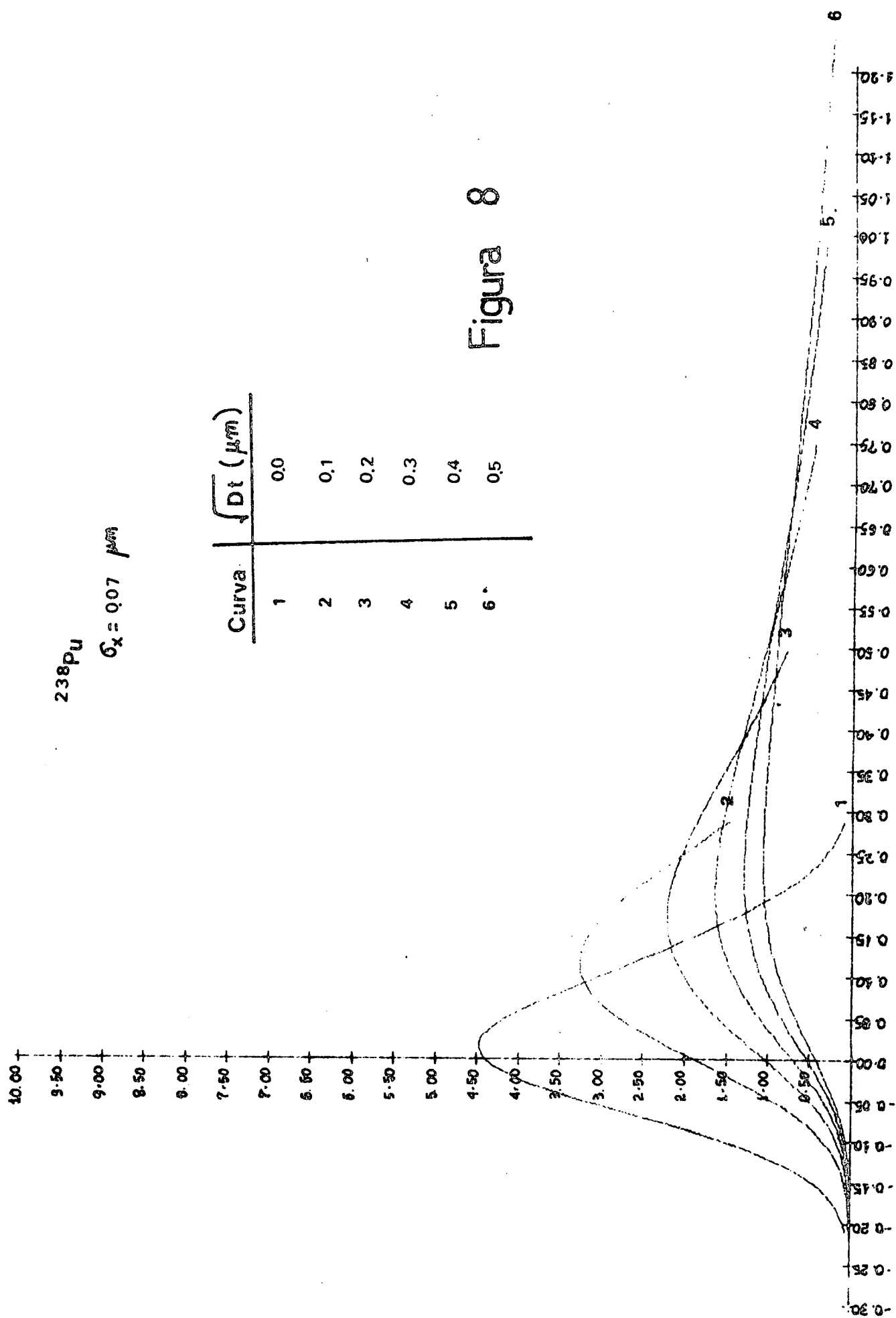


Figura 8

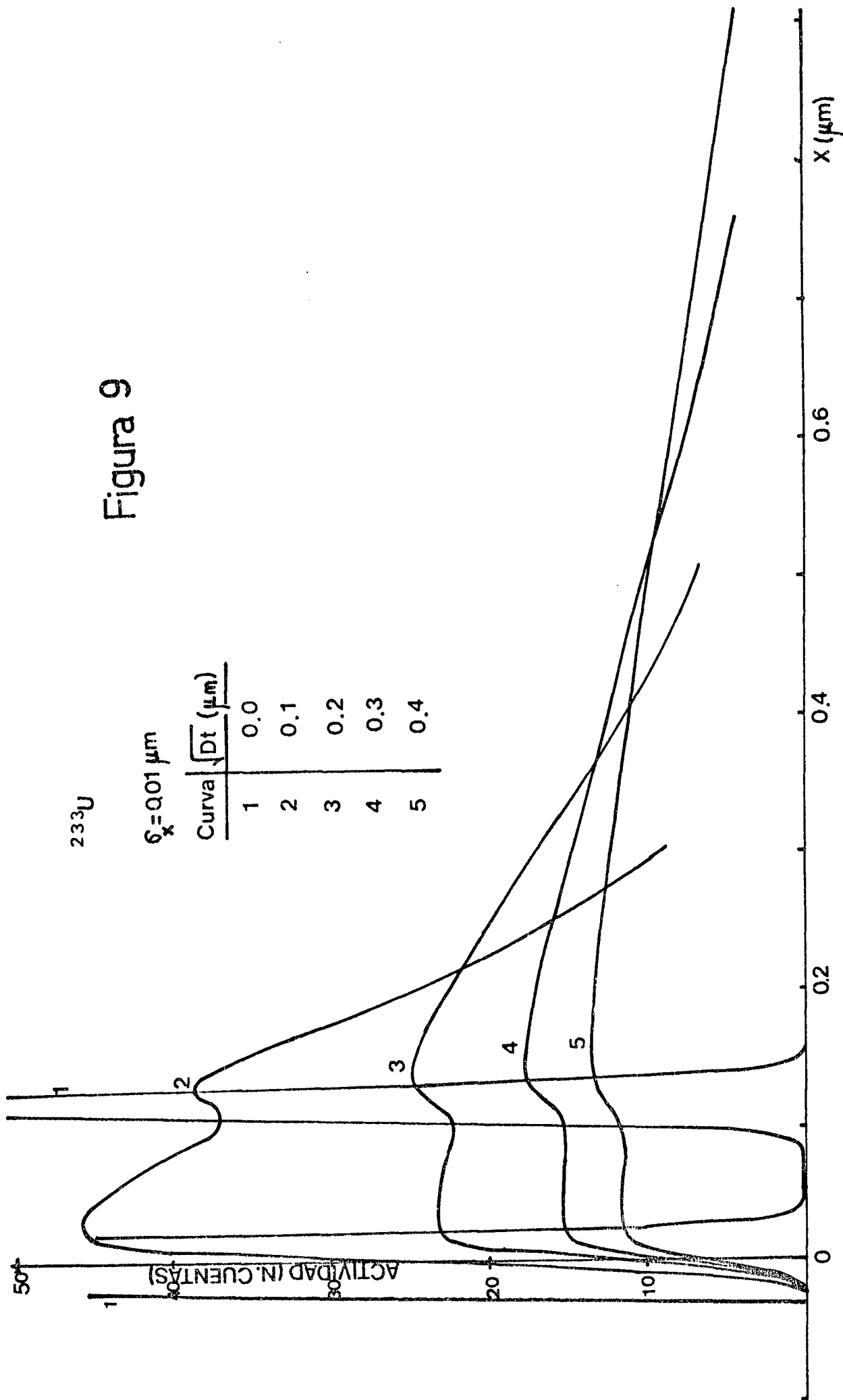
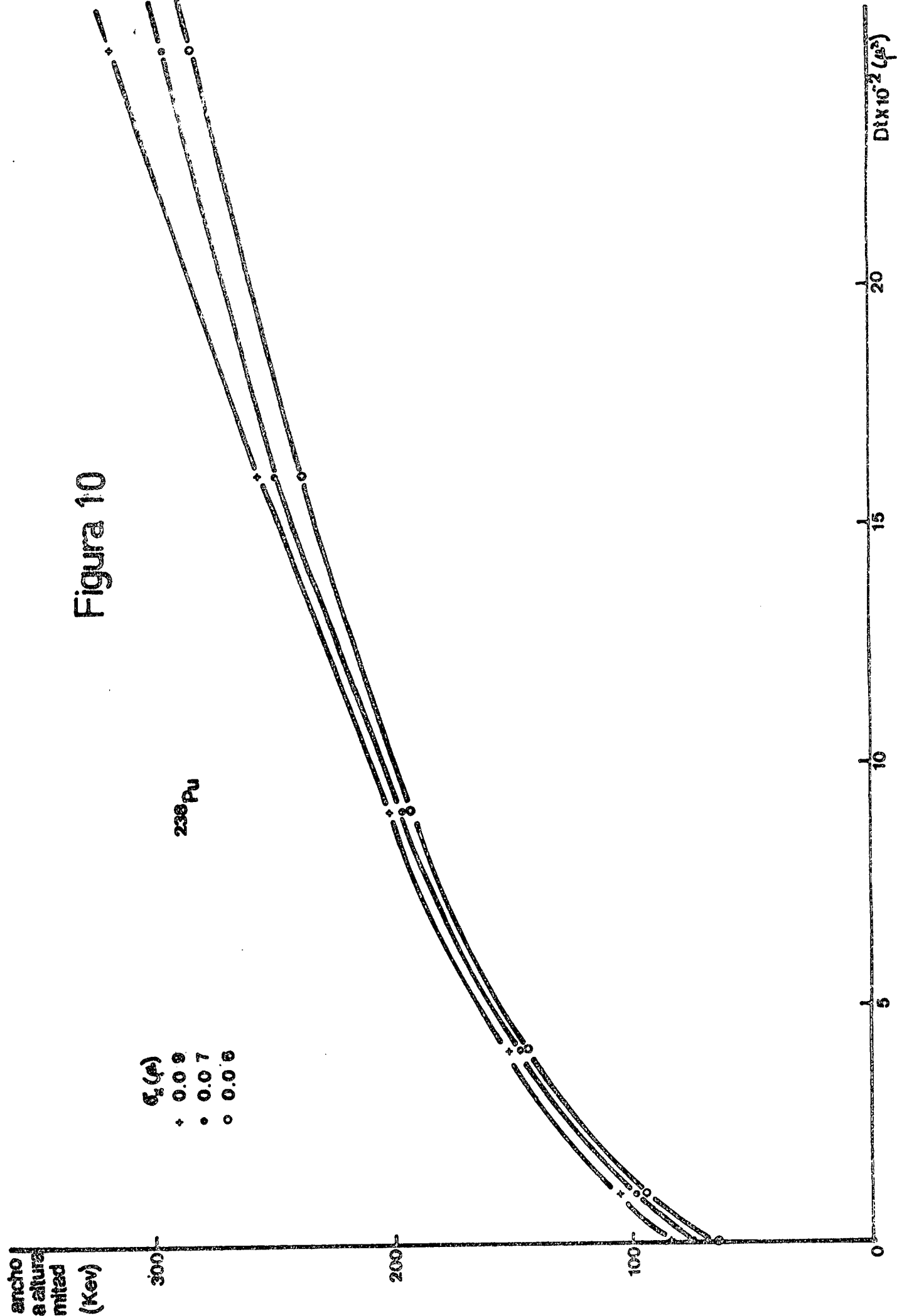


Figura 9



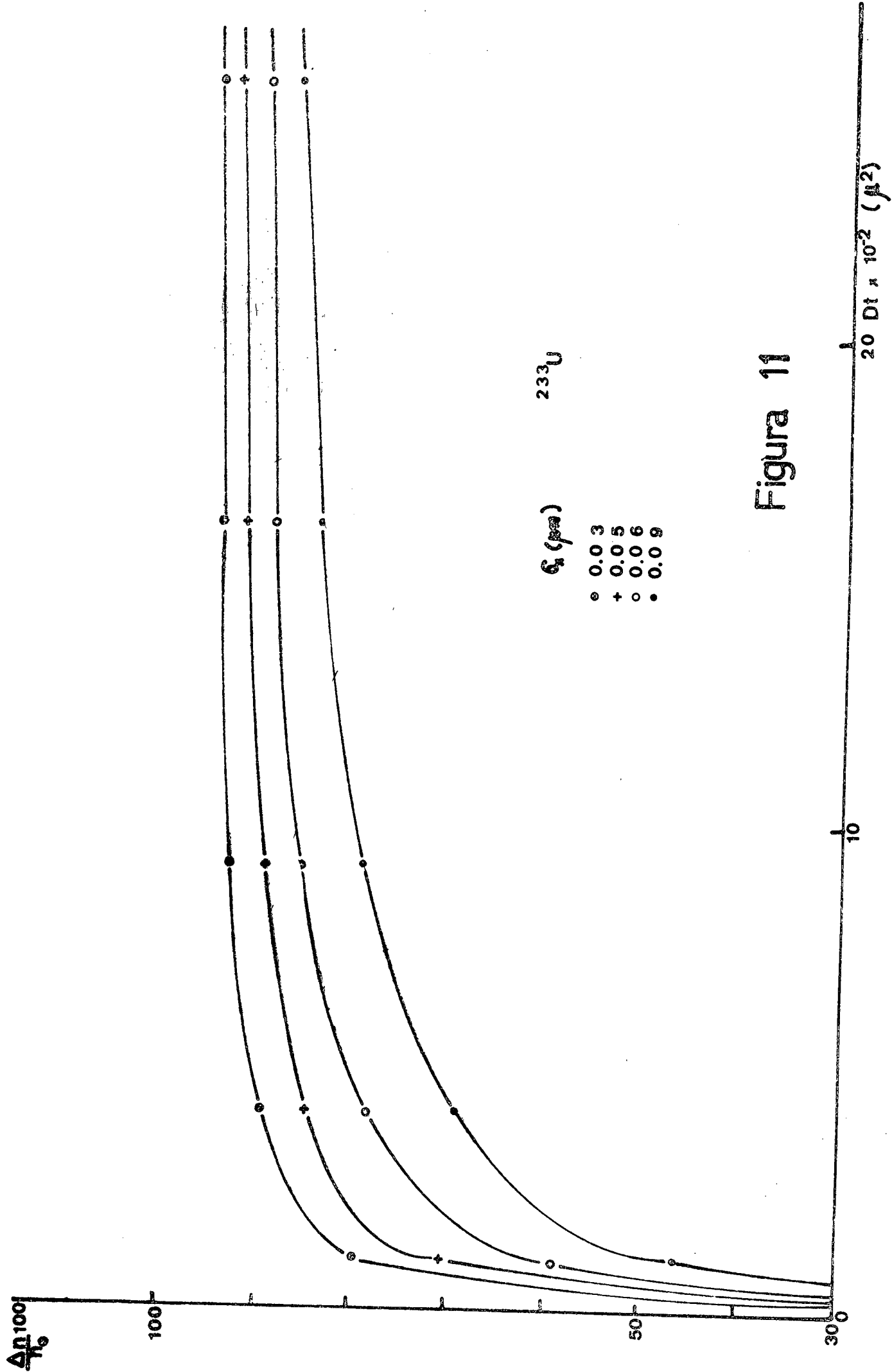
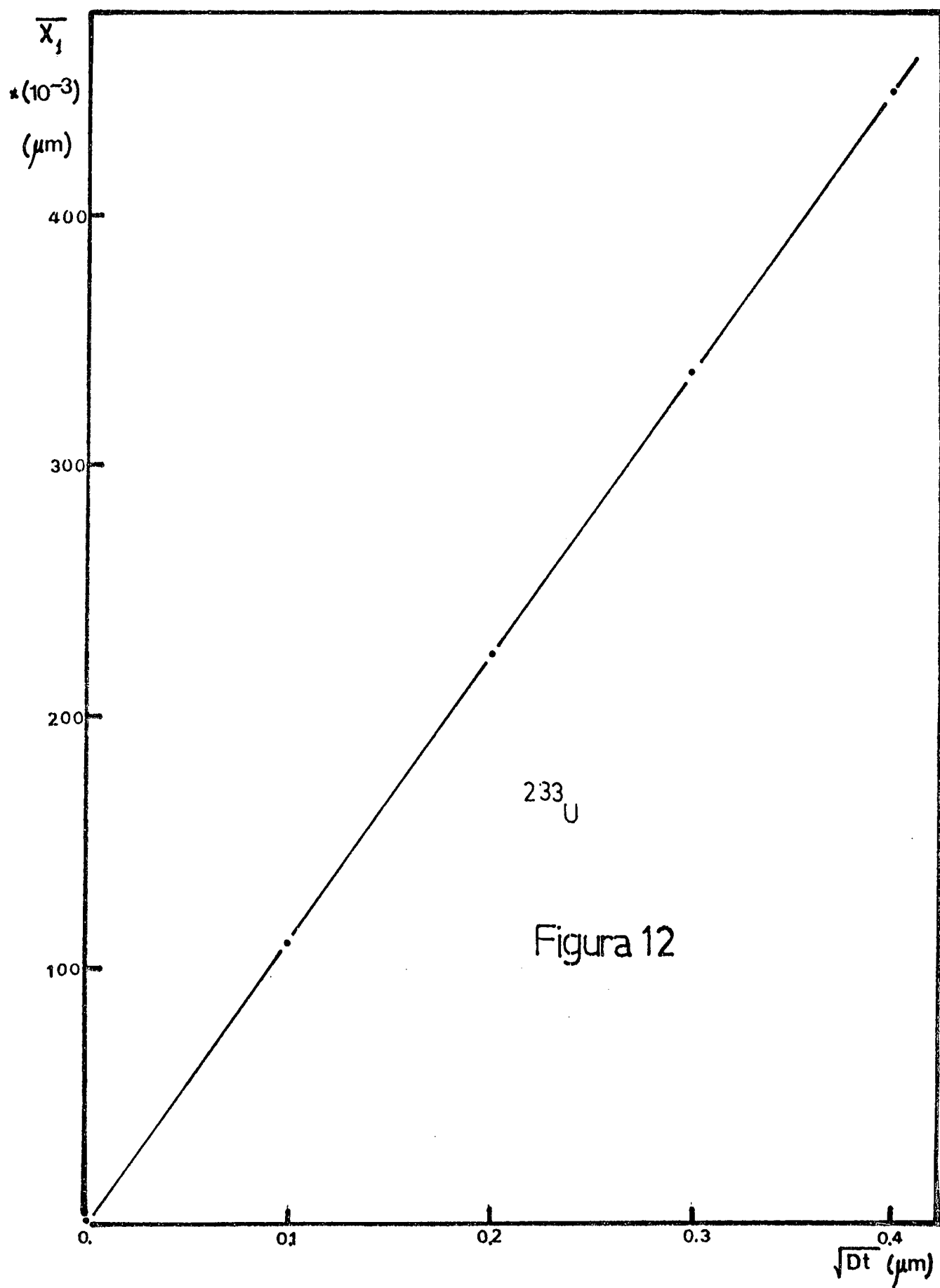
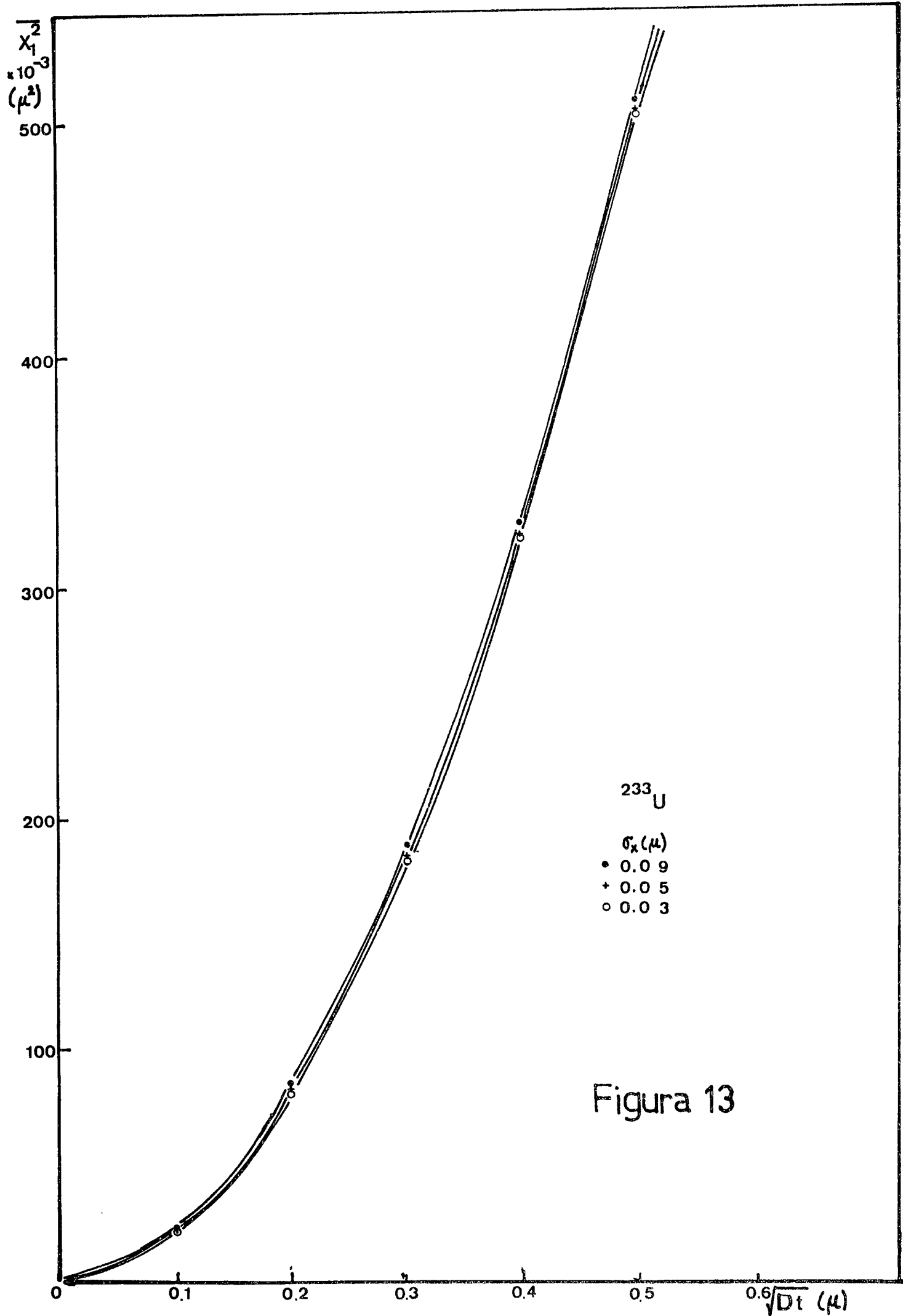
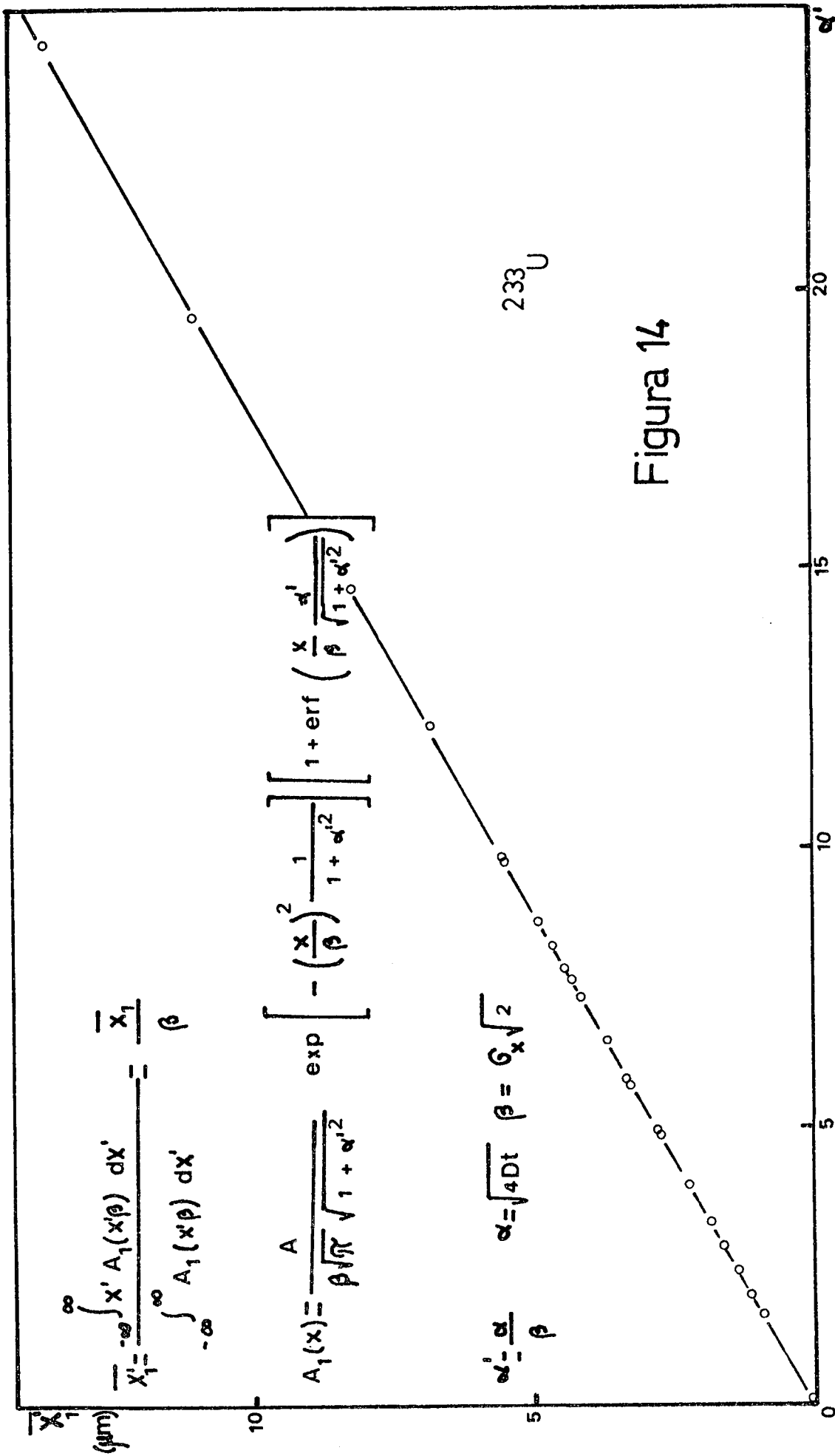


Figura 11







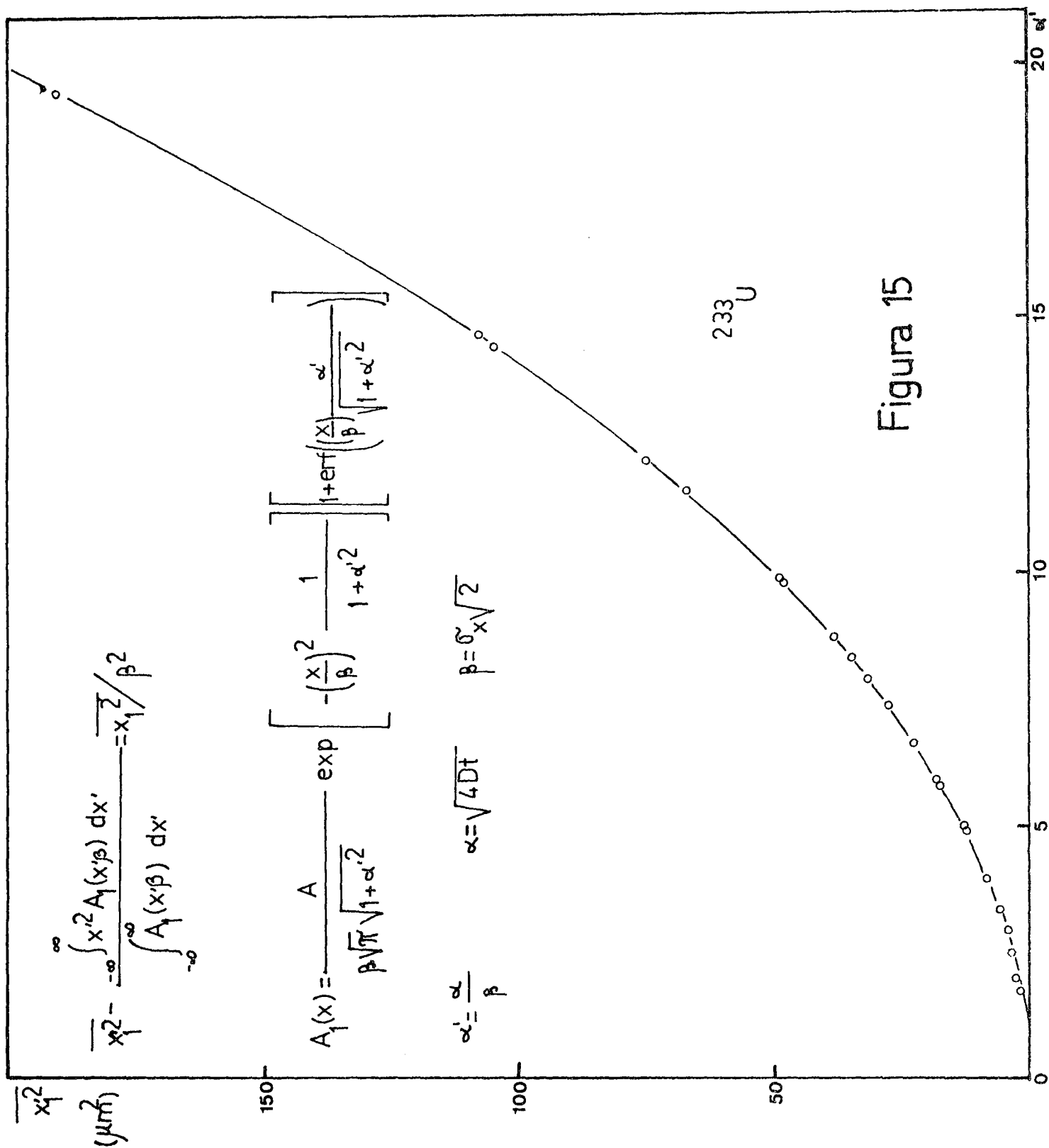


Figura 15