

Facultad de Ciencias

Medida de concentraciones de boro mediante captura de neutrones y un detector CdZnTe

Measurement of boron concentrations using neutron capture and a CdZnTe detector

> Trabajo de Fin de Grado para acceder al

GRADO EN FÍSICA

Autor: Iker Urrutia Director: Jesús Manuel Vizán

Junio 2024

Resumen

El presente trabajo de fin de grado se centra en la medición de concentraciones de boro por medio de la captura de neutrones, empleando un detector CdZnTe (CZT). Se ha desarrollado e implementado una metodología de detección de ¹⁰B en materiales acuosos, utilizando una fuente de neutrones ²⁴¹Am – Be y el detector CZT. Se ha determinado que la actividad mínima detectable (AMD), debida a la activación del ¹⁰B en la configuración de medida, se corresponde con 1300 cuentas netas en 15 minutos, lo que se traduce en una concentración de boro natural de (386 ± 5) ppm. También se ha estimado el flujo neutrónico térmico en (5000 ± 3000) cm⁻² s⁻¹. Además, se ha evaluado el daño por radiación al detector CZT y se ha encontrado un desplazamiento de los picos de energía de aproximadamente 1,7 keV tras un tiempo de 28 horas de exposición. El estudio también ha abordado la influencia de la geometría experimental y los materiales de blindaje en los resultados obtenidos. Los hallazgos son relevantes para la mejora de técnicas de detección de boro en diversas aplicaciones, incluyendo la terapia de captura de neutrones por boro (BNCT) y la caracterización de suelos agrícolas.

Palabras clave: Actividad mínima detectable (AMD), concentraciones de boro, detector CZT, captura de neutrones, flujo neutrónico, daño por radiación y fuente 241 Am – Be.

Abstract

This thesis focuses on the measurement of boron concentrations by neutron capture using a CdZnTe (CZT) detector. A methodology for the detection of ¹⁰B in aqueous materials has been developed and implemented, using a neutron source ²⁴¹Am – Be and the CZT detector. The minimum detectable activity (MDA), due to the activation of the ¹⁰B in the measurement configuration, has been determined to correspond to 1300 net counts in 15 minutes, which translates to a natural boron concentration of (386±5) ppm. Moreover, the thermal neutron flux has been estimated to be (5000 ± 3000) cm⁻² s⁻¹. In addition, radiation damage to the CZT detector has been assessed, and a peak energy shift of approximately 1,7 keV has been found after 28 hours of exposure time. The study has also addressed the influence of experimental geometry and shielding materials on the results obtained. The findings are relevant for the improvement of boron detection techniques in various applications, including boron neutron capture therapy (BNCT) and characterisation of agricultural soils.

Keywords: Minimum detectable activity (MDA), boron concentrations, CZT detector, neutron capture, neutron flux, radiation damage, $^{241}Am - Be$ source.

"Nire gurasoei eta aitona-amonei, beti nirekin egoteagatik eta zaintzeagatik"



Agradecimientos

En estas líneas me gustaría expresar mi más sincero agradecimiento a todas aquellas personas que han contribuido a mi formación de manera significativa a lo largo de estos últimos cuatro años y han posibilitado la presentación de este trabajo de fin de grado.

En primer lugar, agradecer a Jesús Manuel Vizán, mi director, por hacer frente a los inconvenientes que han surgido y por haberme acompañado y guiado en el desarrollado de este trabajo tan interesante. Lo ha hecho siempre con gran interés y la mejor de las intenciones. Ha sido muy fácil trabajar con él.

En el ámbito académico, agradecer también el apoyo que nos ha brindado Pilar Iñiguez y Rosario Gómez, de la Universidad de Valladolid, y Sara Alcalde, de la Universidad de León, quienes nos han prestado los materiales necesarios para poder llevar a cabo este TFG. También agradecer a Martín López y Raquel Acero, que con una sonrisa y una conversación cinematográfica, nos ha preparado todo lo necesario para el montaje experimental, y a David Moya por asesorarnos en todo lo relacionado con la impresión 3D de las piezas. Igualmente, agradecer a Ángel Mañanes, quien fuera profesor titular y responsable del laboratorio, por haber preservado la fuente y contribuido en las vicisitudes del trabajo.

Quiero dar las gracias a mis compañeros que en algún momento me indicaron la clase a la que debía dirigirme o me hicieron darme cuenta de mis errores. A la maravillosa gente que he conocido y, en especial, a quienes habéis venido conmigo más allá de las aulas, habéis entrado a formar parte de mi vida y me habéis enseñado que en el camino también se trata de crecer como persona y disfrutar de la vida. A la gente que conocí en Belfast, con la que he tenido el privilegio de vivir experiencias inolvidables y me han enseñado el valor de atreverse. Entre todas esas personas, quiero destacar especialmente a Gorka, Juan, Carlos y Rachel que han sido pilares clave en la evolución de esta prueba de resistencia que ha supuesto el grado.

Dicen que somos de donde vamos corriendo a celebrarlo y, sin duda, ellos son mis padres, mi hermana Haizea y mis abuelos. Vuestro apoyo incondicional y cariño han sido mi mayor fortaleza. Gracias por creer en mí y por darme el impulso necesario para seguir adelante.

Índice general

1. Introducción									
	1.1.	Objetivo	1						
	1.2.	Motivación	1						
	1.3.	Fuente de neutrones	3						
	1.4.	Detector de neutrones	5						
	1.5.	Detector CZT	6						
	1.6.	Detector $NaI(Tl)$	7						
2 .	Med	lidas y resultados	9						
	2.1.	Actividad mínima detectable	10						
	2.2.	Primer montaje experimental	11						
	2.3.	Segundo montaje experimental	14						
	2.4.	Campaña de medidas largas	17						
3.	Med	Medidas flujo neutrónico							
	3.1.	Método Cd-In-Cd	19						
	3.2.	Activación y decaimiento	21						
	3.3.	Obtención del flujo neutrónico	23						
	3.4.	Variación del flujo	25						
	3.5.	Discusión	26						
4.	Daño por radiación del CZT								
	4.1.	Ajustes sistemáticos	29						
	4.2.	Estudio de las medidas tomadas	31						
	4.3.	Discusión	33						
5.	Blin	idaje de gadolinio	35						
	5.1.	Montaje experimental	35						
	5.2.	Gadolinio	37						
6.	Con	clusiones	39						
Bibliografía 41									

A. Código Python	45
B. Piezas de la impresión 3D	51

Capítulo 1 Introducción

1.1. Objetivo

En el área relativa a la instrumentación nuclear y a la investigación metodológica en física, la detección y caracterización de elementos es crucial para numerosas aplicaciones en diversas disciplinas. En este contexto, se desarrolla e implementa una metodología para la detección de concentraciones de boro (¹⁰B) en materiales, particularmente en medios acuosos. En concreto, el presente trabajo se centra en determinar la actividad mínima detectable (AMD), en la configuración a la cual se toma la medida, que se puede medir utilizando la fuente de neutrones ²⁴¹Am—Be de la Facultad de Ciencias y un detector CZT (Cadmium Zinc Telluride). Asimismo, se obtendrá el flujo térmico de neutrones, que se obtiene con la misma fuente en la posición donde se coloca el boro que proporciona esa concentración mínima.

Para la detección de neutrones térmicos a bajas energías, es posible utilizar ¹⁰B colocando las muestras junto al detector. Esto se debe a la alta sección eficaz de activación del boro [1]. No obstante, esta metodología podría ser trasladada a otros materiales de alta sección eficaz como el ⁶LiF, el gadolinio o el samario. El estudio de estos elementos alternativos puede estar motivado por su uso frecuente en industria y tecnología nuclear para la absorción de neutrones, el blindaje o la utilización como marcadores en medicina nuclear [2].

1.2. Motivación

Los neutrones son una cuestión de interés en la investigación, la industria y la medicina. Se pueden utilizar para para diversas aplicaciones como difracción de neutrones, radiografías, transmutación, dispersión incoherente, polarización del spin... que son fenómenos útiles en física y biología.

Para detectar la composición o existencia de ciertos materiales en una concentración es habitual proceder a través del análisis de activación de neutrones (o NAA). Funciona irradiando la muestra con neutrones para inducir la formación de isótopos radioactivos, cuyos productos de desintegración (principalmente rayos gamma y partículas beta) puedan ser medidos. Esta técnica es utilizada para identificar los elementos que contiene un material. Igualmente, es frecuente en áreas como la caracterización de suelos, la arqueología o la criminología [3].

Los rayos gamma que se generan a lo largo del proceso de detección de neutrones son identificados por detectores convencionales, como los que nos da la oportunidad de utilizar el grupo de investigación de Materiales Semiconductores y Nanoestructuras para la Optoelectrónica de la Universidad de Valladolid. Se trata de un detector CZT que por su pequeño tamaño puede introducirse cerca de la fuente de neutrones a través de un canal de acceso de 4,5 cm de diámetro practicado en el moderador de parafina.

Una de las principales aplicaciones del trabajo es la Terapia de Captura de Neutrones por Boro (BNCT, por sus siglas en inglés) usado en oncología, que presenta la posibilidad de destruir selectivamente células malignas mientras se preserva el tejido sano circundante [4]. Esta terapia se basa en la reacción de captura de neutrones por parte del ¹⁰B, generando partículas cargadas de alta transferencia lineal de energía (LET), como partículas alfa y núcleos residuales de ⁷Li, así como rayos gamma rápidos de 478 keV [5]. Estos últimos rayos gamma han sido obtenidos por la misma reacción en este trabajo y son objeto de estudio.

La dosis de partículas de alta LET de la reacción del BNCT es proporcional a la concentración de ¹⁰B. Como la mayor parte de la dosis se deposita en los tumores (al-rededor de 3, 5 veces más con respecto al resto del tejido sano) y como estas partículas son de corto alcance (menos de 10 μ m), este tipo de terapia es de gran interés en el ámbito médico y farmacéutico [5].

La edafología es también un área en la que es importante la determinación de boro. El Departamento de Ingeniería y Ciencias Agrarias de la Universidad de León nos ha proporcionado las concentraciones precisas de ¹⁰B para obtener la actividad mínima detectable con el detector. Este estudio es relevante debido a que la relación de contenido de este elemento afecta a los parámetros ambientales de los suelos de cultivo [6]. Esto se debe a que el boro es un micronutriente esencial para el normal desarrollo de los vegetales [7], y su concentración en la tierra afecta directamente al desarrollo de las plantas.

1.3. Fuente de neutrones

Son varias las posibilidades para obtener fuentes de neutrones radioisotópicos y están basadas principalmente en fisiones espontáneas o en reacciones nucleares. Los métodos más comunes son: fisión espontánea, fuentes de radioisótopos (α , n), fuentes de fotoneutrones y reacciones de partículas cargadas aceleradas. En nuestro caso, como se pueden obtener partículas α del decaimiento directo de varios radionucleidos, se van a utilizar junto con berilio. Esto se debe a que el berilio ostenta el mayor rendimiento para la producción de neutrones, tiene un valor Q = 5,71 MeV, al darse la reacción [8]:

$${}^4_2\alpha + {}^9_4\mathrm{Be} \rightarrow {}^{12}_6\mathrm{C} + {}^1_0\mathrm{n}$$

Para obtener una reacción óptima es necesario que el emisor alfa y el berilio estén homogéneamente mezclados en un volumen reducido. En aras de incrementar el rendimiento de neutrones sin aumentar el tamaño de la fuente, se utilizan emisores alfa como ²⁴¹Am o ²³⁸Pu, que tienen altas actividades específicas [8]. En la fuente que se ha utilizado, el emisor de partículas alfa ha sido el ²⁴¹Am, que tiene un esquema de desintegración como el que se muestra en la figura 1.1 (izquierda). El rayo gamma más significativo se da en $\gamma = 59,5$ keV (36,6%) [9], como se observa en la figura 1.1 (derecha). Los picos de menor energía de esta figura corresponden a rayos X.



Figura 1.1: Esquema de desintegración del ²⁴¹Am (izquierda) y su espectro de desintegración gamma, tomado con un detector de alta pureza (HPGe) en el laboratorio de radiactividad de la Universidad de Cantabria (derecha).

Ha sido necesario recubrir el detector con plomo para evitar que los rayos gamma que se muestran en la figura 1.1 afecten a la toma de medidas. El 241 Am decae radiactivamente al darse la reacción:

$$^{241}_{95}\mathrm{Am} \rightarrow {}^{237}_{93}\mathrm{Np} + {}^{4}_{2}\alpha$$

Con relación a los neutrones, las propiedades relativas pueden cambiar significativamente en función de su espectro de energías [8]. Es por ello que se clasifican en tres categorías principales. Se denominan neutrones térmicos aquellos que tienen una energía inferior a 0,5 eV, epitérmicos en un rango de 0,5 eV a 10 keV y rápidos a los superiores a 10 keV [10]. Para este trabajo, la activación de los materiales (boro e indio) se da en los rangos térmico y epitérmico de los neutrones. Por un lado, los neutrones térmicos son aquellos que se encuentran en equilibrio térmico con los núcleos del medio y su distribución sigue la estadística de Maxwell-Boltzmann. Por otro lado, la distribución de los epitérmicos es inversamente proporcional a su velocidad.

La fuente utilizada de ²⁴¹Am–Be de 3 Ci, que pertenece al Laboratorio de Radiactividad del Departamento de Física Moderna de la Universidad de Cantabria, proporciona una tasa nominal de emisión de neutrones de $S_n = 6, 6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ [11]. En la figura 1.2 se puede observar la fluencia de los neutrones, para diferentes energías, de una fuente de Am – Be.



Figura 1.2: Espectro de energía de los neutrones para una fuente de Am - Be [12].

En la figura 1.3 se muestra un esquema de la fuente y su emplazamiento. El Am – Be es de geometría cilíndrica, cuyo diámetro es de 22, 4 mm y altura de 48, 5 mm (incluido el blindaje de 0, 4 cm de hierro). La fuente esta introducida dentro de un paralelepípedo de parafina de 60 cm x 60 cm x 75 cm y está recubierto por tres capas de cadmio, plástico y hierro de 2 mm cada una. La fuente está colocada a 45 cm de la parte superior del contenedor de parafina y a 30 cm del resto de paredes. El detector puede ser colocado a diferentes distancias de la fuente, a través del canal de aire de 4,5 cm de diámetro que conecta el exterior con la posición de la fuente y que puede ser rellenado con parafina [1].



Figura 1.3: Esquema de la fuente de neutrones utilizada de 241 Am-Be con su cobertura y posición de la fuente.

La parafina, que es un material hidrogenoide, es un buen medio termalizador en un volumen reducido, debido a que los neutrones interaccionan con el núcleo de hidrógeno, que absorbe un neutrón y se convierte en un deuterón. Además, en este proceso de captura ${}^{1}H(n, \gamma){}^{2}H$ se emite un rayo gamma de 2, 2 MeV.

Con respecto al resto de capas protectoras, por un lado, la capa de recubrimiento de la fuente de cadmio se ha colocado por una razón de protección radiológica. Su alta sección eficaz lo provee de una gran capacidad de absorción de neutrones térmicos. Por otro lado, la capa de hierro ejerce un blindaje adicional frente a rayos gamma, da consistencia al conjunto para poder moverlo mediante una grúa y protege físicamente la estructura.

1.4. Detector de neutrones

Como es sabido, los neutrones no tienen carga eléctrica, por lo que su detección suele hacerse mediante reacciones nucleares que resulten en partículas cargadas como protones o alfas. Los neutrones interaccionan con colisiones elásticas e ineslásticas con el medio que los rodea. Estas colisiones disminuyen la energía de los mismos, lo que provoca su moderación y reacciones de absorción por parte de los núcleos del material, lo que reducirá la cantidad de neutrones presentes [13]. El tipo de detector activo necesario para los neutrones térmicos es de los llamados detectores de neutrones lentos, ya que no tratan de medir su energía cinética, sino que cuentan las detecciones que realizan. En este tipo de detectores, la sección eficaz de la reacción debe ser lo más alta posible para poder obtener un aparato eficiente y de pequeñas dimensiones. Además, el nucleón objetivo debe tener una alta abundancia isotópica o ser de fácil enriquecimiento para su fabricación. Con respecto al valor Q, este debe ser lo más alto posible para que transfiera la máxima energía a la reacción e influya directamente en la facilidad para discriminar la señal con los rayos gamma generados [8]. Existen varias opciones típicamente usadas que cumplen estos requisitos, como pueden ser las reacciones de ${}^{10}B(n, \alpha)$, ${}^{6}Li(n, \alpha)$ [1] y ${}^{3}He(n, \alpha)$.

Los principales tipos de detectores de partículas cargadas y fotones tras la reacción nuclear son los diodos semiconductores, los detectores de rayos gamma de germanio y los basados en otro tipo de elementos como el silicio, el telururo de cadmio (tal y como se emplea en este trabajo) o el yoduro de mercurio [8].

1.5. Detector CZT

Los detectores basados en telururo de cadmio (CdTe) combinan números atómicos (48 y 52) relativamente altos, lo que permite una alta eficiencia, con una banda prohibida de 1,47 eV para que sean operativos a temperaturas ambientes. Este tipo de detectores se pueden utilizar para lograr la información de las cuentas de los picos a diferentes energías y aplicarlos a diversos usos. Además, como se obtiene una alta eficiencia de los rayos gamma, se pueden diseñar de manera muy compacta y de pequeño tamaño [8], tal y como se muestra en la figura 1.4.



Figura 1.4: Imagen del detector CZT utilizado.

La implementación de bajas concentraciones de zinc en el telururo de cadmio aumenta la precisión y mejora las condiciones de trabajo de los detectores a temperatura ambiente [14]. En el caso del detector CZT ($Cd_{0,9}Z_{0,1}Te$) utilizado, que tiene una densidad de 5,78 g cm⁻³ [15] y un tamaño del cristal de 1 x 1 x 1 cm³, es capaz de detectar neutrones térmicos por medio de los gammas emitidos en la reacción de captura del ¹¹³Cd.

$$^{113}\mathrm{Cd} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \rightarrow {}^{114}\mathrm{Cd} + \gamma$$

Debido a la alta sección eficaz de este elemento, que favorece la absorción de neutrones térmicos y su consiguiente cascada de emisión de rayos gamma, es posible el uso de detectores con cadmio para la detección de neutrones. El aparato identifica los rayos gamma de 558 keV emitidos por el cadmio tras la absorción de neutrones. Estos gammas proceden del primer estado excitado del ¹¹⁴Cd, que ocurre en el 74 % de los casos [16]. Otras transiciones de menor importancia son 576 keV (4%), 651 keV (14%), 725 keV (4%) y 806 keV (5%)[15]. Todas las absorciones suceden en las primeras capas del cristal y tan solo la mitad de los rayos gamma entra en él.

Una complicación para el cálculo de la eficiencia de este tipo de detectores es que no todos los fotones de 558 keV, que son absorbidos en el cristal, producen una cuenta en el fotopico. Esto se debe a que una fracción de ellos es detectada junto con otros fotones emitidos en la misma cascada, que han sido dispersados por efecto Compton o completamente absorbidos en el detector. Estas contribuciones en la cuenta de los eventos darán como resultado una suma de picos y un espectro más continuo por encima de los 558 keV. Ello da lugar a una pérdida de cuentas en los canales asociados a esta energía [15].

Sin embargo, los detectores CZT presentan ventajas significativas sobre otros detectores por su pequeño tamaño. En consecuencia, pueden colocarse cerca de la muestra irradiada, tienen mejor resolución que los detectores centelleadores y pueden funcionar a temperatura ambiente (al contrario que, por ejemplo, los detectores de germanio de alta pureza).

1.6. Detector NaI(Tl)

Para algunas medidas complementarias del trabajo se ha utilizado un detector gamma de centelleo de yoduro de sodio o NaI(Tl), como el que se muestra en la figura 1.5. Este tipo de detector tiene un número atómico alto (Z = 53), lo que asegura que el proceso de absorción fotoeléctrica sea relevante. Entre los detectores centelleadores, como por ejemplo, los de yoduro de cesio (CsI) o germanato de bismuto (BGO), el NaI(Tl) presenta ventajas por su alta luminosidad y menor tiempo de decaimiento, lo que permite una detección rápida y eficiente de los eventos gamma [8].

En comparación con el detector CZT, los detectores de NaI(Tl) presentan una resolución energética menor, una eficiencia de detección mayor, un tamaño mayor (menor portabilidad y menor uso en espacios reducidos) y una peor respuesta a los cambios de temperatura.



Figura 1.5: Imagen del detector NaI(Tl) utilizado, cuyo cristal es de 3" de diámetro y $3^{\prime\prime}$ de alto.

Capítulo 2 Medidas y resultados

En este capítulo se desarrollan los montajes y métodos utilizados para la detección de diferentes concentraciones de ¹⁰B disuelto en agua con el detector CZT. El boro natural esta compuesto fundamentalmente por ¹⁰B (19,9%), cuya sección eficaz es alta y se utiliza para la activación en este trabajo, y por ¹¹B (80,1%). Las concentraciones de los botes, que se especifican en la tabla 2.1 son disoluciones de ácido bórico (H₃BO₃) en 40 ml de H₂O preparados por la Universidad de León. Para cada una de las concentraciones se han utilizado dos botes idénticos para poder hacer comparaciones a las mismas concentraciones.

Id	$\rm m_{\rm H_{3}BO_{3}}/g$	$\begin{array}{c} {\rm concentración} \\ {\rm (H_3BO_3)} \ /g \ l^{-1} \end{array}$	$\begin{array}{c} {\rm concentración} \\ {\rm (B)} \ /{\rm g} \ {\rm l}^{-1} \end{array}$	concentración (B) / ppm
Vacío	0	0	0	0
H2O	0	0	0	0
$0,\!25$	$0,\!25$	6,25	1,10	1100
0,1	0,1	2,5	0,44	440
$0,\!01$	0,01	0,25	0,04	44
$0,\!001$	0,001	0,025	0,004	4

Tabla 2.1: Disoluciones de H_3BO_3 en botes de 40 ml.

En la tabla 2.1 se muestra la concentración de los botes, tanto de la molécula completa de H_3BO_3 como solo de B. Esta relación entre ambas concentraciones viene descrita por la ecuación (2.1).

$$C_{\rm B} = \frac{C_{\rm H_3BO_3} P_{\rm B}}{P_{\rm H_3BO_3}} \tag{2.1}$$

Donde $C_{\rm B}$ es la concentración de boro, $C_{\rm H_3BO_3}$ la concentración del ácido bórico, $P_{\rm B} = 10,81~{\rm g~mol^{-1}}$ el peso atómico del boro y $P_{\rm H_3BO_3} = 61,81~{\rm g~mol^{-1}}$ el peso molecular del ácido bórico.

2.1. Actividad mínima detectable

En aras de fijar un límite de detección inferior con el sistema de obtención de cuentas, se ha de fijar la actividad mínima detectable (AMD). De este modo, se monitoriza la posible presencia de radioactividad en una muestra mediante la introducción de un método que fija una respuesta afirmativa o negativa [17].

Para obtener dicha respuesta, es necesario comparar las cuentas netas obtenidas experimentalmente con un valor crítico (L_c) . Si las cuentas netas son inferiores, se determinará que la muestra no tiene actividad; por el contrario, si son superiores, se asume que sí la tiene. El valor crítico, por la naturaleza de las fluctuaciones estadísticas de la radiactividad, ha de enmarcarse en un rango en el que sea lo suficientemente grande como para minimizar los posibles falsos positivos, y lo suficientemente pequeño como para minimizar los falsos negativos. Por lo general, este nivel de confianza se establece en un 95 %, lo que significa que existe esa de probabilidad de que una medida aleatoria de una muestra esté fuera de ese intervalo [8].



Figura 2.1: Distribuciones esperadas de las cuentas netas para los casos en los que existe y no existe actividad en las muestras.

Por un lado, en el caso de que no haya actividad real, las cuentas totales (N_T) y de fondo (N_B) coinciden, por lo que las cuentas netas serán nulas $(N_S = 0)$. La distribución esperada de N_S es la que se muestra en la figura 2.1. De igual modo y bajo estas condiciones, $\sigma_{N_T} = \sigma_{N_B}$ y, en consecuencia, la desviación estándar de las cuentas netas es $\sigma_{N_S} = \sqrt{2}\sigma_{N_B}$. Fijar el nivel de confianza en un 95% corresponde en una distribución gaussiana a 1,645 σ . De esta manera, se fija el valor crítico en:

$$L_C = 1,645 \ \sigma_{N_S} = 2,326 \ \sigma_{N_B} \tag{2.2}$$

Ello supone establecer los falsos positivos en menos del 5 % de los casos.

Por otro lado, cuando sí hay actividad real, como se muestra en la figura 2.1, queremos fijar la probabilidad de falsos negativos (resultado de que no haya actividad) en un 5% como en el caso anterior. Si establecemos N_D como el mínimo valor de N_S que cumple el criterio y determina que existe actividad real, N_D representará un valor numérico que corresponde con la AMD. En consecuencia, para garantizar el nivel de confianza en el 95%, debe cumplirse:

$$N_D = L_C + 1,645 \,\sigma_{N_D} \tag{2.3}$$

Una derivación rigurosa del ancho de la función de la distribución neta de N_S cuando las desviaciones estándar de N_B y N_D no son idénticas, es $\sigma_{N_D} = \sqrt{2N_B + N_D}$. Desarrollándolo bajo condiciones $N_D \ll N_B$:

$$\sigma_{N_D} = \sqrt{2}\sigma_{N_B} + 1,645 \tag{2.4}$$

Finalmente, de las ecuaciones (2.3), (2.4) y del criterio establecido en la ecuación (2.2) se extrae la ecuación de Currie [17]:

$$N_D = 4,653 \ \sigma_{N_B} + 2,706 \tag{2.5}$$

De esta manera, N_D es interpretado ahora como el mínimo número de cuentas necesarias de la fuente para asegurarse que el nivel de falsos positivos se mantiene por debajo del 5%. De manera general, para determinar la AMD se aplica la ecuación 2.6, que en el caso concreto de este trabajo no manifiesta la actividad intrínseca del boro, porque no la tiene, sino la actividad que ha sido generada en la muestra al activar el ¹⁰B.

$$AMD = \frac{N_D}{P_{\gamma}\varepsilon T}$$
(2.6)

donde P_{γ} , en espectrometría gamma, es la fracción de que se dé una transición concreta de un determinado pico, ε la eficiencia absoluta de detección para dicho pico y T el periodo de tiempo en el que se ha realizado la medida.

Sin embargo, en el montaje experimental concreto desarrollado, la actividad mínima detectable se ve alterada por la alta convolución de la configuración. Ejemplo de esto son los parámetros relacionados con la geometría del experimento, la propagación de los neutrones o la eficiencia del detector. Por ello, el procedimiento más riguroso para estimar la eficiencia del detector es realizar una simulación concreta del montaje, teniendo en cuenta la extensa geometría de la fuente, la interacción del detector y el transporte y captura de los neutrones.

2.2. Primer montaje experimental

El primer montaje experimental, como se observa en la figura 2.2, consta de izquierda (la zona más cercana a la fuente cuando se introduce por el orificio de entrada) a derecha de: cilindro de plomo de 0,5 cm de alto, cilindro de parafina de 2 cm de alto, recubrimiento de plomo de la muestra de 5,5 cm de alto y recubrimiento de plomo para el detector de 8 cm de alto. Por ello, en nuestro montaje experimental, la fuente se encuentra a 2,5 cm del inicio de la muestra y a 8 cm del inicio del detector.



Figura 2.2: Montaje experimental de parafina y plomo donde van alojados la muestra y el detector CZT.

La primera plancha de plomo de 0,5 cm se ha colocado para atenuar los rayos gamma directos de baja energía del americio que provienen de la fuente. Partiendo de la fracción de intensidades emitida y recibida, la ley de Beer–Lambert [18] establece:

$$I = I_0 e^{-\mu\xi} \tag{2.7}$$

donde I es la intensidad final, $I_0 \approx 10^9$ la intensidad inicial de la fuente, ξ el espesor y μ el coeficiente de atenuación másico, que para un rayo gamma de $E \approx 59$ keV en plomo corresponde a $\mu = 5,021 \text{ cm}^2/\text{g}$ [19]. Se estima que la primera plancha de plomo para la energía de la gamma principal atenúa el 99,96% de los fotones.

Se ha utilizado plomo como material amortiguador para que las medidas no sean distorsionadas por los rayos gamma de bajas energías provenientes del exterior, que hayan sido reflejados en otro lugar de la fuente o que provengan de la activación de la parafina. El plomo es un amortiguador mayoritariamente usado por su alta densidad $\rho_{Pb} = 11,34 \text{ g/cm}^3 \text{ y}$ su alto número atómico Z = 82. También se ha fijado el límite mínimo de detección en 165 keV para que las cuentas por debajo de este límite no afecten a la toma de medidas. Ambas medidas son imprescindibles para poder medir un espectro limpio por encima del límite mínimo de detección.

El tiempo muerto del detector es aquel intervalo de tiempo en el que no se registran eventos, ya sea por el proceso de detección de las partículas o por las limitaciones asociadas a la electrónica del aparato. En el caso concreto del CZT utilizado, el tiempo muerto es del orden del 3%. Esto se da para esta configuración del montaje experimental, en el cual las distancias y espesores son los especificados para la plancha de plomo inicial, el recubrimiento y el bloque de parafina.

La calibración del detector se ha llevado a cabo en un tiempo de 200 s con una muestra de $^{207}_{83}$ Bi mediante los tres picos: rayo X del $K_{\alpha 1}$ de 75 keV (35,8%), rayo γ de desintegración β^+ de 570 keV (97,7%) y rayo γ de desintegración β^+ de 1064 keV (74,5%). Esta desintegración decae al $^{207}_{82}$ Pb.

Se han reutilizado las sondas de plástico que se emplean con fines académicos, en los que reciben pequeñas irradiaciones, para obtener los primeros resultados. En la figura 2.3 se expone un ejemplo de una muestra sin concentración de boro, en la que se aprecian claramente los picos de 511 keV de aniquilación y 558 keV del rayo gamma principal de la captura neutrónica del ¹¹³Cd del detector CZT.



Figura 2.3: Ejemplo del espectro obtenido. En concreto, se trata de una muestra de agua medida durante 300 s.

En la figura 2.3 parece observarse un pequeño pico alrededor de los 478 keV, si bien solo debería observarse el fondo al no haber concentración de boro en la muestra. Esto hace pensar que hay presencia de boro en el detector o en sus inmediaciones. Existe evidencia científica que demuestra que se ha encontrado boro en la electrónica de los circuitos impresos internos. El boro atenúa la señal real en detectores de neutrones térmicos [20] y podría estar generando la fluctuación de las cuentas sobre el fondo. De confirmarse, este fondo sería irreducible por estar directamente relacionado con el aparato de medidas.

Otra posibilidad, aparte de la de presencia de boro en el detector, es que las contribuciones de rayos gamma del cadmio, $0,34\,\%$ de probabilidad en 477,6 keV, esté afectando a las medidas.

Para ver si la contribución de los picos se corresponde solo al cadmio, se ha cotejado la fracción experimental de las cuentas del pico de este elemento entre las del pico del boro, con la que se obtiene de las tablas de abundancias verdaderas de fotones emitidos por el ¹¹⁴Cd. Las tablas de abundancias [16, 21] dan una relación entre ambos picos de 160. Se ha calculado la misma fracción de las áreas de los picos experimentales y se ha obtenido un valor de 21, por lo que el pico del boro experimental es 7,62 veces más prominente de lo esperado, y compatible con la presencia de boro en el detector.

Se puede atacar el problema del cadmio, dentro de las posibilidades que deja el montaje experimental, siguiendo el procedimiento del capítulo 5. Aunque esta no es la única opción, podría estar producido por otro compuesto que dé una contribución en ese rango de energías, o incluso que proceda de los propios botes.

Los resultados obtenidos en este primer montaje parecen no ser concluyentes y presentan problemas de compatibilidad. En primer lugar, las cuentas netas del pico del boro no parecen escalar bien entre las medidas tomadas en periodos de tiempo diferentes. Además, parece que el pico debido al boro es mayor cuando las medidas se hacen con un bote vacío que sin bote. No se observa una relación clara entre las cuentas y la concentración. Por último, las medidas realizadas a diferentes botes, con la misma concentración y el mismo periodo de tiempo, dan resultados diferentes. Esta última consideración podría estar relacionada con el método que emplea el programa utilizado para la substracción del fondo con respecto al pico.

2.3. Segundo montaje experimental

Tras los resultados aparentemente inconclusos del primer montaje y en base a que no se da una clara tendencia entre concentración y cuentas netas, se decide realizar un segundo montaje para reforzar la consistencia de la sonda y la reproducibilidad de los resultados. Para ello, se fabrican dos nuevas sondas, que van ajustadas una dentro de la otra y crean una configuración del material más precisa, agilizan el proceso de cambio de muestras y aguantan sin problema el montaje de la figura 2.2 que, por la presencia del plomo, tiene un peso considerable. Se llevan a cabo medidas más largas de 15 minutos, en los que se observan el tipo de espectros y picos que se muestran en la figura 2.4.

Los picos más relevantes que se observan en el espectro son: 478 keV el pico generado por el boro, 511 keV la aniquilación y 558 keV el rayo gamma del detector CZT, que han sido mencionados en la sección 2.2. Además, otros picos menos relevantes son:



Figura 2.4: Ejemplo del espectro obtenido. En concreto, se trata de la primera muestra de 0, 1 g de H_3BO_3 medida durante 900 s.

651 keV, 725 keV y 806 keV rayos gamma secundarios del CZT, 1208 keV (pico suma del 558 keV y 650 keV), 1253 keV (pico suma del 558 keV y 725 keV) y 2200 keV captura neutrónica del hidrógeno de la parafina. La intensidad de los picos gamma en el espectro es proporcional al número de átomos presentes y a la sección eficaz de la interacción. Además, depende de la probabilidad de que, tras la captura de un neutrón, el núcleo emita inmediatamente ese fotón gamma específico.

Los resultados obtenidos de las cuentas totales de boro y cadmio menos la substracción del fondo, para cada concentración de boro en los botes, se ha representado en las figuras 2.5 y 2.6. Cada tipo de punto representa una medida diferente en la que cada una de las muestras A y B se han obtenido dos veces. Es relevante remarcar que la medida 3, representada con un cuadrado rojo en las figuras 2.5 y 2.6, se ha obtenido por un procedimiento más largo que se detalla en la sección 2.4.

Se ha asumido, en primera aproximación, que se da un comportamiento lineal entre la concentración de boro y la señal neta. Se han realizado los ajustes a cada una de las medidas y se ha obtenido que el parámetro de bondad del ajuste de correlación lineal es: $R_{1A} = 0,9885, R_{1B} = 0,9990, R_{2A} = 0,9997, R_{2B} = 0,9993$. Tras comprobarse compatibles cada uno de los ajustes realizados a cada una de las medidas de las figuras 2.5 y 2.6, se ha realizado el ajuste lineal a todos los puntos experimentales de las cuentas del boro, obteniéndose la recta: $C_B = (14000 \pm 1000)m_B + (70 \pm 130)$. También, como se ha establecido en la ecuación (2.5), se ha obtenido la primera estimación del mínimo número de cuentas con medidas de 15 minutos en $N_D = 1300$ y $\sigma_{N_D} = 400$. Con el ajuste realizado y la propagación del error de la pendiente, este número de cuentas



Figura 2.5: Cuentas netas del pico de boro para medidas de 15 minutos, frente a la masa de boro en la concentración de la muestra.



Figura 2.6: Cuentas netas del pico de cadmio para medidas de 15 minutos, frente a la masa de boro en la concentración de la muestra.

corresponde con una masa de boro en las muestras de $m_B = (87, 8 \pm 1, 2)$ mg o, lo que es lo mismo, una concentración de boro:

$$C_{\rm B} = (386 \pm 5) \text{ ppm}$$

En el caso del cadmio, se observa en la figura 2.6 cómo las cuentas, C_{Cd} , disminuyen a medida que aumenta la masa del boro. Esto se debe a que las cuentas de este pico, provenientes del detector, disminuyen al ser amortiguado el flujo neutrónico por el boro de la muestra. Se verifica que en un comportamiento lineal, a mayor concentración de boro, este amortigua más y el detector recibe menos cuentas.

2.4. Campaña de medidas largas

Con la intención de reducir la incertidumbre estadística asociada a las cuentas -y siempre valorando el compromiso entre el daño que se genera en el detector, la precisión de las medidas y un tiempo razonable para llevar a cabo las mismas- se determina realizar una campaña de medidas de mayor duración.

Se estima que un incremento razonable en el tiempo de medida es pasar de 15 a 150 minutos con el fin de reducir la incertidumbre de las cuentas debido a la naturaleza estadística del proceso. La distribución de Poisson, que es el modelo matemático que rige los experimentos de conteo que involucran el decaimiento radioactivo de las partículas, viene descrito por la ecuación (2.8):

$$P(x) = \frac{(\bar{x})^x e^{-\bar{x}}}{x!}$$
(2.8)

cuya desviación típica es la raíz cuadrada del valor medio:

$$\sigma = \sqrt{\bar{x}} \tag{2.9}$$

Por ello, el número total de cuentas obtenidas (x) determina completamente el error fraccional asociado a la medida [8]. En nuestro caso, al aumentar las cuentas un factor 10, la incertidumbre se reducirá en $1/\sqrt{10}$.

Mantener tiempos de medida similares para la obtención de la señal y el fondo resulta óptimo para minimizar el error estadístico asociado, como muestra la ecuación (2.10) [8].

$$\left. \frac{T_{S+B}}{T_B} \right|_{\text{opt}} = \sqrt{\frac{S+B}{B}} \tag{2.10}$$

donde S y B representan las cuentas netas y del fondo, respectivamente, y T el tiempo de medida. Esto se debe a que las cuentas siguen una distribución de Poisson, donde el error es proporcional a la raíz cuadrada del número de eventos. Igualando los tiempos de medida, se asegura que los errores estadísticos se propaguen de manera equilibrada y predecible.

El resultado obtenido de las cuentas totales de boro y cadmio, menos la substracción del fondo para una concentración de boro de $0,001~{\rm g}$ que se ha obtenido en un

tiempo de 150 minutos, se ha representado en las figuras 2.5 y 2.6. Se han ajustado los resultados, escalándolo debidamente, para compararlos con los resultados previos del segundo montaje experimental.

Se han realizado medidas sistemáticas, tanto de señal como de fondo, de 150 minutos y los resultados son lo que se muestran en la figura 2.7. Al escalar y comparar los resultados con los previamente obtenidos, se observa claramente como se obtiene un fallo de reproducibilidad en los nuevos resultados de la medida 4 (rombos verdes). Estos últimos no muestran la misma tendencia que las medidas anteriores por la falta de precisión mecánica a la hora de colocar las muestras y tomar resultados. La variación de la distancia entre la muestra y la fuente también es un factor relevante en los resultados obtenidos. Esto ha motivado que en capítulo 3 se estudie la implicación de la variación de la distancia en el flujo neutrónico.



Figura 2.7: Cuentas netas del pico de boro para medidas de 150 minutos, frente a la masa de boro en la concentración de la muestra.

En aras de salir de dudas ante los resultados obtenidos, el siguiente paso habría sido tomar más medidas que avalasen o rechazasen estos últimos resultados. Sin embargo, se detiene el procedimiento de obtención de resultados en la campaña de medidas largas por el posible daño por radiación del detector y las implicaciones que ello tiene en los resultados inconclusos obtenidos. Este fenómeno se estudia detalladamente en el capítulo 4.

Capítulo 3 Medidas flujo neutrónico

El objetivo de este capítulo no es otro que el de estimar el flujo de neutrones térmicos en la posición de entrada de la muestra que irradia la fuente y que activa el material que se coloca en su interior. Los neutrones térmicos son aquellos que se encuentran en el rango de energías comparables a la constante de Boltzmann por la temperatura ambiente: $k_BT \approx 25$ meV.

3.1. Método Cd-In-Cd

La estimación del flujo se va a llevar a cabo por la activación de láminas de indio, por efecto de la absorción de neutrones, con el método de Cd-In-Cd. Este método es comúnmente utilizado porque es capaz de discriminar los neutrones térmicos y epitérmicos por la absorción de los de menor energía mediante el cadmio. Este elemento se comporta adecuadamente para esta práctica debido a que para neutrones de menos de 0,4 eV posee una alta sección eficaz y, por el contrario, cuando la energía aumenta, la sección eficaz decrece abruptamente [8]. Es por ello por lo que las láminas de cadmio de alrededor de 0,5 mm actuan como filtros selectivos adecuados ya que detienen los neutrones térmicos y dejan pasar los epitérmicos. Este efecto está patente en la figura 3.1, en la que se observa la variación de la sección eficaz en función de la energía de los neutrones térmicos para el caso del indio natural e indio 115.

Si se coloca un material para la activación de neutrones entre dos láminas de cadmio, esta no se activará con los neutrones térmicos. Por ello, si se calcula la diferencia con respecto a una lámina que no ha sido recubierta con cadmio, y por lo tanto activada con los neutrones de todo el rango de energías, se determinará la contribución térmica a la activación.

Los materiales que se usan para este proceso son típicamente denominados detectores de activación y deben cumplir unas propiedades nucleares y físicas para que sean válidos para su utilización [8]:



Figura 3.1: Sección eficaz de absorción de neutrones en función de la energía para indio natural (verde) y 115 In (azul) [22].

- Sección eficaz. El material debe responder con la mayor sección eficaz posible a las energías de los neutrones que se desean medir. Reacciones de captura de radiación o (n, γ) son los más utilizados para neutrones térmicos.
- Tiempo de decaimiento. El periodo necesario para que el elemento activado decaiga no debe ser ni muy largo ni muy corto para que las medidas se puedan realizar en un tiempo razonable. Normalmente, se suelen utilizar tiempos de pocas horas.
- Pureza del material. Es conveniente que para evitar interferencias de activación de otros materiales, la concentración del material sea alta y no tenga impurezas.

Uno de los detectores de activación más utilizados y que cumple con los requisitos anteriores es el indio. Los isótopos de indio más comunes en la naturaleza son el ¹¹⁵In, con una abundancia isotópica de G = 95, 67%, y el ¹¹³In, con G = 4, 33% [23]. Cuando se activa el ¹¹⁵In con una fuente de neutrones, se pueden dar tres productos diferentes. En primer lugar, ¹¹⁶In que, al tener un periodo de semidesintegración de tan solo 14 segundos, se puede despreciar. En segundo lugar, ^{116m2}In, un isotopo metaestable del ¹¹⁶In, que decae en ^{116m1}In en tan solo 2 segundos. Por último, ^{116m1}In que tiene un periodo de semidesintegración de $T_{1/2} = 54$ minutos. Se considera que es un tiempo razonable para poder obtener las medidas necesarias. Por todo ello, el isotópo dominante que se va a generar tras la activación es el ^{116m1}In.

La sección eficaz de este isótopo viene dada por las contribuciones de la desintegración al $^{116m^2}$ In, que es de 87,3 b y de la desintegración al $^{116m^1}$ In, que es de 75 b. Por ello, la sección eficaz de activación total es la suma de ambas $\sigma = 162,3$ b en el rango térmico [23]. La reacción que se da viene descrita por:

115
In(n, γ) 116m1 In

El ^{116m1}In continúa en un proceso de desintegración β emitiendo también rayos gamma por la pérdida de energía al pasar de un estado excitado al fundamental del ¹¹⁶Sn [24].

$${}^{116m1}\text{In} \rightarrow {}^{116}\text{Sn}^* + e^- + \bar{\nu_e}$$

3.2. Activación y decaimiento

Cuando se activa una lámina de un material (en nuestro caso indio) con neutrones, su actividad (λN) aumenta acercándose asintóticamente a la actividad de saturación. Este escenario está descrito por la ecuación diferencial:

$$\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t_a} = -\lambda N + R$$

donde N es el número de núcleos, t_a el tiempo de activación, $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ y R es la tasa de absorción que se asume constante. Al resolverla con las condiciones iniciales N = 0 en t = 0,

$$N = \frac{R}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_a})$$

Sin embargo, cuando la lámina se saca de la fuente, la actividad disminuye de la forma:

$$\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t_e} = -\lambda N$$

donde t_e es el tiempo de espera. Al resolverla,

$$N = N_0 \ e^{-\lambda t_e}$$

donde N_0 es la actividad de saturación. En el periodo de pérdida de actividad de la fuente, se realizan las medidas que se requieran. Por ello, el número de átomos entre t_e y $t_e + t_c$, donde t_c es el tiempo de cuenta, vendrá descrito por

$$N_{des}(t_e, t_c) = \int_{t_e}^{t_e + t_c} A(t) \, dt$$

Al resolver la integral, resulta ser:

$$N_{des}(t_e, t_c) = \frac{R}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_a})(1 - e^{-\lambda t_c})e^{-\lambda t_e}$$

En la figura 3.2 se muestra el proceso de activación, decaimiento y periodo de obtención de resultados de la muestra.



Figura 3.2: Esquema de activación y proceso del periodo de decaimiento.

Además, como

$$C_{net}(t_e, t_c) = \varepsilon N_{des}(t_e, t_c)$$

donde C_{net} son las cuentas netas obtenidas en el periodo de medida y ε la eficiencia global de detección, se puede despejar:

$$R = \frac{\lambda}{\varepsilon} \frac{C_{net}}{(1 - e^{-\lambda t_a})(1 - e^{-\lambda t_c})e^{-\lambda t_e}}$$
(3.1)

La eficiencia global de detección (ε) se ha obtenido en base a la ecuación 3.2:

$$\varepsilon = \sum_{i=1}^{n} P_{\gamma} f \varepsilon_{int. \ tot.} \tag{3.2}$$

donde la eficiencia intrínseca de pico es $\varepsilon_{int. pic.}$, la probabilidad de que se dé una gamma de desintegración P_{γ} y f = 0, 18 el factor geométrico del montaje experimental para cada pico. Los datos utilizados, de valores nominales en los que no hay deterioro del detector, se recogen en la tabla 3.1.

Por el método del Cd-In-Cd se va a poder estimar la tasa de absorción de neutrones térmicos, que es específicamente la tasa de creación del 116m1 In:

$$R^{th} = R - R^{epi} \tag{3.3}$$

donde R^{epi} es la tasa de absorción de los neutrones epitérmicos. Partiendo de la tasa de absorción, se puede calcular el flujo (ϕ) teniendo en cuenta:

$$R = \phi(x)SP = \phi(x)N\sigma$$

donde S es la superficie de absorción, P la probabilidad de que un neutrón que llegue a la lámina sea absorbido y σ la sección eficaz microscópica de absorción.

Tabla 3.1: Datos de la eficiencia intríseca de pico, probabilidad de que se de una gamma de desintegración y eficiencia absoluta de pico para cada una de las energías de los picos estudiados [25].

\mathbf{E}/\mathbf{keV}	$arepsilon_{ ext{int. pic.}}$	\mathbf{P}_{γ}	ε
138	0,91	0,033	0,0054
417	$0,\!64$	0,289	0,0333
819	$0,\!48$	$0,\!115$	0,0099
1097	$0,\!43$	0,532	0,0412
1293	$0,\!41$	0,844	0,0623
1507	$0,\!39$	$0,\!100$	0,0070
2112	$0,\!34$	$0,\!155$	0,0095

Despejando el flujo

$$\phi = \frac{R}{\sigma N} = \frac{R}{\sigma} \frac{M_{In}}{m N_A G} \tag{3.4}$$

donde $M_{In} = 114,904$ u es la masa isotópica del indio, $m = 0,55 \pm 0,01$ g la masa de la lámina de indio utilizada, N_A el número de Avogadro y G = 95,67% es la abundancia isotópica del ¹¹⁵In.

3.3. Obtención del flujo neutrónico

Se ha realizado la activación con el indio y posteriormente con el cadmio-indiocadmio para obtener las medidas de las cuentas con un detector gamma de centelleo, que cuenta con un cristal de NaI(Tl) de 3" por 3" del laboratorio de radiactividad de la Universidad de Cantabria. Estos permiten discriminar las diferentes energías de los rayos que inciden sobre ellos y comparar los resultados de ambos detectores para contrastar las medidas. Los dos detectores se han colocado a una distancia de 3 cm de la fuente para establecer una geometría fija y estar lo suficientemente alejados para evitar picos suma. En la figura 3.3 se muestra el soporte utilizado para mantener esa distancia donde se coloca la lámina de indio (izquierda) y las láminas de cadmio para el método del cadmio-inido-cadmio (derecha).

En el caso del detector gamma de centelleo, un fotomultiplicador acoplado al cristal transforma la luz de centelleo en fotoelectrones y amplifica la señal electrónica. Los pulsos eléctricos son almacenados por el analizador multicanal en función de la energía depositada por los fotones gamma. En la figura 3.4 se muestra un ejemplo del espectro obtenido con el detector de NaI(Tl) en un tiempo de 100 minutos.



Figura 3.3: Soporte para mantener la lámina a 3 cm de distancia de la fuente (izquierda). Láminas de cadmio entre las cuales se coloca la lámina de indio para el método Cd-In-Cd (derecha).



Figura 3.4: Espectro obtenido con el detector de NaI(Tl) cuando en su interior solo se encuentra la lámina de indio en un tiempo de 100 minutos.

El tiempo de activación de las láminas ha sido de alrededor de cuatro horas y media y en los diez primeros minutos del decaimiento, no se han introducido las láminas en los detectores para evitar las posibles desintegraciones de otros isótopos del indio. En la activación, las láminas de indio, de 1" de diámetro, se han colocado sobre el bote de la muestra y, con respecto a la figura 2.2, se ha retirado el detector CZT.

Para el cálculo de los resultados se han utilizado los datos de la eficiencia intrínseca total y la fracción de veces que se da el rayo gamma por cada desintegración del 116m1 In [25]. Tras obtener los resultados de las desintegraciones de los neutrónes térmicos, se

24

han aplicado las ecuaciones (3.1), (3.3) y (3.4) obtenidas para lograr los resultados que se muestran en la figura 3.5. En la figura se ha representado el flujo de neutrones obtenido para las energías de los picos. Además, cada tipo de punto de la figura representa las cinco medidas experimentales obtenidas.



Figura 3.5: Flujo térmico de la fuente de neutrones para cada energía del pico detectado. La incertidumbre solo tiene en cuenta el error estadístico.

En la figura 3.5, se ha incluido la incertidumbre estadística. Sin embargo, la relacionada con la eficiencia nominal del detector y con el procedimiento de substracción del fondo de señal ha sido estimada por el software de medidas *PSpect* empleado. Por último, como se puede obervar, el flujo neutrónico de la fuente se puede estimar en:

 $\phi^{th} = 5000 \pm 3000 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

3.4. Variación del flujo

Según la teoría de difusión de neutrones, tal y como se muestra en la ecuación 3.5, el flujo neutrónico varía en función de la distancia a la que se encuentra el punto de medida desde la fuente.

$$r^2 \phi^{th} = A e^{-r/L_T} \tag{3.5}$$

donde r es la distancia des de la fuente (para r suficientemente grandes), A una constante que depende de las condiciones específicas del sistema (intensidad de la fuente y propiedades del medio en el que se difunden los neutrones) y L_T la longitud de difusión de los neutrones térmicos [8].

A partir de las medidas tomadas a 12 láminas de In, similares a la anterior y colocadas a diferentes distancias en una sonda de parafina, se ha comprobado experimentalmente la relación de la ecuación (3.5) y los resultados obtenidos son los que se muestran en la figura 3.6.



Figura 3.6: Flujo térmico de la fuente de neutrones en función de la distancia.

La máxima variación del flujo se da a una distancia de 20 a 40 cm de la fuente. Sin embargo, el detector está colocado a una distancia entre 8 y 9 cm y la fracción del flujo entre ambas distancias, obtenido con la ecuación (3.5), es: $\phi(8 \text{ cm})/\phi(9 \text{ cm}) = 1, 17$. Esto implica que la variación de la distancia a la que se coloca el detector, cada vez que se realiza una medida, es relevante y una gran fuente de error en los resultados.

3.5. Discusión

La discrepancia de las medidas de la figura 3.5 es un indicador para dar una incertidumbre razonable del flujo térmico. Los resultados son más dispersos de lo que cabía esperar, pero ello puede estar producido por la falta de consideración de algún modo relevante de activación y que este sea de vida media más baja que el principal. Se han tenido en cuenta todos los modos de activación significativos del ^{116m1}In que figuran en la literatura. Aún más, los que cuentan con tiempos de semidesintegración más altos o

bajos, que los utilizados, y una pequeña sección eficaz no pueden cuantificar la discrepancia de las medidas.

Aunque estas consideraciones no afecten a la discrepancia entre picos, la dispersión de los resultados podría estar producido porque hubo algún cambio en la geometría entre la toma de medidas. Incluso, por suposiciones como que la parafina no absorbe los neutrones hasta que son termalizados o que la sección eficaz del indio y de la parafina son constantes en el rango térmico cuando, en verdad, pueden presentar variaciones. Así mismo en el caso de los dos primero picos, como se ve en la figura 3.4, las cuentas se encuentran solapadas, lo que repercute en el proceso de obtención de las cuentas netas y añade una incertidumbre adicional.

No obstante, el flujo obtenido es incompatible entre los picos. Este resultado trata de dar un orden de magnitud del flujo de la fuente sin ser extremadamente exacto. Si se quisiera obtener un resultado más preciso de la fuente, haría falta realizar una calibración detallada del detector en centros especializados como el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT). Es habitual que los detectores pierdan precisión en la calibración por el declive del cristal y su uso frecuente. Sin embargo, la tendencia para cada pico entre los diferentes detectores parece coincidir y ser similar para cada energía.

Cabe destacar que el flujo decrece con la distancia a la que se encuentra de la fuente, como se muestra en la figura 3.6, por lo que esta es una consideración relevante. Las pequeñas variaciones en la distancia a la que se toma el flujo neutrónico cambian las cuentas de detección. Este factor es especialmente importante en las distancias a las cuales el montaje experimental obtiene las medidas, alrededor de los 8 cm. A esta distancia, la variación del flujo neutrónico es del orden de un 20 %. Aun así, esta incertidumbre no justifica la dispersión de los valores experimentales de la campaña de medidas largas de la figura 2.7.

Las medidas 3, 4 y 5 de la figura 3.5, que han sido tomadas sin manipular en montaje experimental, presentan unos resultados mucho más similares que el resto. Esto se debe a que la lámina siempre se ha irradiado en la misma posición y que no han existido variaciones, ni tan siquiera pequeñas, en la colocación del montaje.

Existen otros factores de corrección que pueden ser relevantes y tomados en cuenta a la hora de realizar las medidas. Por lo general, estas consecuencias son mitigadas por el bajo grosor de las láminas, pero siempre pueden afectar. Por ejemplo, podrían ser considerados los efectos producidos por la lámina que está siendo medida. Además, en un medio difusor, el flujo de neutrones en las inmediaciones de la lámina se verá reducido si algunos neutrones son extraídos al pasar por la lámina. También, la fluencia efectiva en el centro de la lámina será afectada y atenuada por el efecto protector del material que rodea el interior [8]. La obtención del flujo en este trabajo es relevante porque afecta directamente a la tasa de eventos de detección, a la estimación de la precisión de los métodos utilizados y a la comparación de los resultados obtenidos con los publicados con otras fuentes de emisiones similares.

Asimismo, la variación del flujo de neutrones en función de la distancia da una referencia para estimar el impacto que puede tener cambiar la geometría dentro del bloque de parafina cuando se hacen las medidas. Aunque estos cambios sean importantes para la incertidumbre del flujo, no lo son para las discrepancias entre los picos. En este caso, no se cuenta con una calibración lo suficientemente precisa como para dar resolución a la complejidad del espectro. Adicionalmente, aislar la contribución neta debida a cada fotopico presenta una gran complejidad y no es fácil de atribuir una incertidumbre.

Capítulo 4 Daño por radiación del CZT

Los recientes avances en la creación de cristales basados en telururo de cadmio [26] para la detección de rayos $X \ge \gamma$ a temperaturas no criogénicas [27] han aumentado sustancialmente el interés por la investigación del envejecimiento de este tipo de detectores a lo largo de su vida útil. Es por ello por lo que en general como objetivo de estudio, y en particular para este trabajo, es necesaria la investigación del cambio de las propiedades y la detección del CZT utilizado a lo largo del proceso de la toma de medidas.

4.1. Ajustes sistemáticos

El ajuste de los picos estudiados -boro (478 keV), aniquilación (511 keV) y cadmio (558 keV)- se ha realizado mediante funciones gaussianas a cada uno de los espectros obtenidos a diferentes concentraciones de boro. En el apéndice A se muestra un ejemplo de los códigos de Python empleados. En la figura 4.1 se puede observar un espectro de ejemplo, con sus respectivos ajustes a la suma de dos gaussianas de los picos de boro, aniquilación y cadmio.

El ajuste ideal al pico de un rayo gamma es una función compleja dependiente del detector, por lo que se suele ajustar a funciones gaussianas. Sin embargo, se han realizado los ajustes a la suma de dos gaussianas para tener en cuenta la posibilidad de que haya dos contribuciones de rayos gamma en la zona del fotopico. Esto está dado por la resolución del detector, que ronda un 2% y que corresponde a 10 keV en torno a la región de interés de 478 keV. Al hacer los ajustes a una y a la suma de dos gaussianas, se ha comprobado que la bondad del ajuste, en el caso de la suma, se adecua más fielmente a los datos experimentales.

Para cada uno de los ajustes se ha calculado la amplitud, la energía media a la que se da el pico, la desviación estándar y la bondad del ajuste a través del parámetro $\chi^2/ndof$. Este último es una medida que se utiliza para evaluar la calidad de los ajustes en un



Figura 4.1: Ejemplo del espectro de las cuentas para cada energía en el rango de los picos estudiados junto con los ajustes.

análisis de datos para curvas o regresiones. Este valor de la bondad oscila a lo largo de todos los ajustes en $\chi^2/ndof = [0, 9737; 9, 1706]$.

Asimismo, se ha realizado una calibración tras la toma de todas las medidas, correspondientes a las secciones 2.3 y 2.4, y se ha representado en la figura 4.2 (izquierda) el espectro de la primera calibración anterior a todas las medidas y tras ellas.



Figura 4.2: Comparación de los espectros de la calibración antes y después de la toma de las medidas (izquierda). Ejemplo del espectro de calibración de los principales picos del $^{207}_{83}$ Bi ajustados a la suma de dos funciones gaussianas (derecha).

La energía del espectro de la calibración final parece estar ligeramente trasladada hacia la izquierda con respecto a la inicial, por lo que se han ajustado estos picos a la suma de dos gaussianas tal y como se muestra en la figura 4.2 (derecha).

Los resultados obtenidos de los ajustes de ambos espectros de la calibración muestran que la energía media de cada uno de los picos, tras la toma de medidas, ha disminuido en promedio $2, 1 \pm 0, 4$ keV.

Esta traslación de la energía media se puede observar más claramente en la figura 4.3, donde se han representado las calibraciones iniciales y finales con sus respectivos ajustes del pico de 570 keV del ²⁰⁷Bi.



Figura 4.3: Comparación del pico de 570 keV de los espectros de calibración antes y después de la toma de las medidas con sus respectivos ajustes.

4.2. Estudio de las medidas tomadas

A partir de todos los datos obtenidos a lo largo de las campañas y con la intención de evaluar la estabilidad de las medidas, se ha representado en la figura 4.4 (a) la energía media para cada pico de boro, aniquilación y cadmio, frente al tiempo acumulado en el que se han realizado las medidas. El tiempo acumulado no representa el periodo total en el que el detector ha estado colocado en el emplazamiento de medida, sino el tiempo en que el detector ha estado obteniendo datos.

No obstante, para poder observar más precisamente la tendencia de la energía media a lo largo del tiempo acumulado, se han representado individualmente en las figuras 4.4 (b),

31



Figura 4.4: Energía media de los picos frente al tiempo acumulado. La raya horizontal representa la energía nominal del pico.

(c) y (d) los datos relativos a cada uno de los picos. En estas figuras se puede observar cómo la energía media del pico, a lo largo de las medidas que se hacen en el experimento, va disminuyendo, lo que infiere un corrimiento en el pico de detección hacia energías menores. Se ha determinado que la pendiente del ajuste a los datos experimentales del boro es de $m = -(14 \pm 3) \cdot 10^{-6} \text{ keV/s y}$ que el resto son compatibles. Se deduce que en el tiempo acumulado, la variación de la energía que corresponde a la pendiente es de $1, 4 \pm 0, 3 \text{ keV}$.

4.3. Discusión

El análisis estadístico de los datos parece indicar una ligera tendencia en la variación de la energía media. A lo largo del tiempo acumulado para cada uno de los picos estudiados, el valor promedio de la energía se ha trasladado hacia energías menores, partiendo de su valor inicial esperado, tal y como se muestra en la figura 4.4. Esto sugiere un cambio en la estabilidad del detector CZT y un bajo envejecimiento en el periodo en el que se realiza el estudio.

En el tiempo total acumulado, los resultados obtenidos de la variación de la energía media de los picos obtenidos por el ajuste de las gaussianas a los picos de calibración $(2, 1\pm 0, 4 \text{ keV})$ es compatible con la pendiente del ajuste realizado a los picos de estudio, y en particular al del boro $(1, 4\pm 0, 3 \text{ keV})$. Se han ajustado los datos experimentales a una recta para cuantificar aproximadamente el desplazamiento de las energías de los picos, aunque no exista una base teórica firme para ello.

Los resultados obtenidos son concordantes con estudios previos, que han constatado que los defectos del detector se dan desde el mismo instante en el que existe una fluencia de neutrones. Además, el deterioro de los detectores se incrementa tanto con el flujo como con el tiempo de exposición, e incluso dejan de funcionar por completo al someterlos a irradiaciones de neutrones del orden de 10^{10} cm⁻² [28].

Existen además otros fenómenos que influyen en la estimación del daño del detector, que no han sido directamente observados como la eficiencia de detección, la linealidad o el ruido de fondo. Cualquiera de estos aspectos podría verse afectado a largo plazo bajo diferentes condiciones operativas.

Capítulo 5 Blindaje de gadolinio

En este capítulo se ha querido observar la posible reducción de la contribución del fondo, en la región del pico del boro (478 keV), proveniente de la reacción de captura del ¹¹³Cd. Con la intención de estudiar este efecto, se ha trazado un plan de medidas breves, para minimizar el potencial daño por radiación del detector, y estimar el impacto en la reducción del fondo. Ello consiste en blindar el detector de los neutrones térmicos con gadolinio, y evaluar la eficacia del blindaje analizando la reducción de la intensidad del pico principal del cadmio.

5.1. Montaje experimental

Para crear un montaje experimental capaz de albergar sales de gadolinio alrededor del detector, ha sido necesario diseñar varias piezas nuevas, como las que se muestran en la figura 5.1 (el soporte principal) y el resto en el apéndice B. Utilizando el programa *Inventor* de *Autodesk*, se han realizado los diseños de las piezas, que luego han sido preparadas y procesadas para la impresión con el software *Bambu Studio*.

Las piezas han sido construidas en la impresora 3D Bambu Lab PS1 del Servicio de Fabricación Aditiva del Instituto de Física de Cantabria (IFCA). La máquina está equipada con una boquilla de 0, 2 mm y se ha utilizado el material Bambu PLA Basic de color negro. El resultado final de las piezas es el que se muestra en la figura 5.2 y el blindaje de plomo utilizado para esta configuración experimental con el gadolinio es el de la figura 5.3.



Figura 5.1: Diseño de la pieza principal del montaje, con las cotas, donde se coloca el detector.



Figura 5.2: Imagen de las piezas reales impresas. A la izquierda, se muestra el soporte principal del detector y a la derecha, varias placas adicionales del montaje.



Figura 5.3: Modificación del blindaje de plomo que se ha empleado para el detector CZT cuando está rodeado de gadolinio.

5.2. Gadolinio

La molécula en cuestión que se pretende utilizar para el blindaje es el tricloruro de gadolinio o Cl_3Gd . Este nucleido estable presenta la mayor sección eficaz de captura de neutrones térmicos y tiene importantes aplicaciones en el sector médico y nuclear. Por ello, el gadolinio resulta óptimo para un blindaje de neutrones en pocos milímetros y que atenúe las contribuciones del cadmio en el pico del boro y en su propio pico (ambos se observan en la figura 2.3).

El departamento de química analítica de la Universidad de Valladolid contribuye a nuestro proyecto cediéndonos 10 g de Cl₃Gd en polvo, por lo que el montaje ha sido diseñado asumiendo una densidad del compuesto de $\rho_{\rm Cl_3Gd} = 4,52$ g cm⁻³. Esta cantidad es suficiente para cubrir una altura del volumen para el blindaje suficiente para cubrir, al menos parcialmente, la zona del cristal del detector CZT.

Este estudio se lleva a cabo en la fase final de la elaboración del TFG. La viabilidad del nuevo montaje experimental se pone a prueba utilizando sal común en el lugar del blindaje neutrónico en varias medidas breves con diferentes concentraciones de boro. Además, se prepara un protocolo para manipular de manera segura el compuesto de gadolinio, ya que presenta una toxicidad moderada por ser causante de irritación cutánea, ocular y respiratoria, y es por ello por lo que su manejo ha de hacerse bajo condiciones controladas y utilizando el equipo de protección personal requerido [29]. El envío del tricloruro de gadolinio se realiza al finalizar la preparación para las medidas y no llega a tiempo para que las mismas se llevan a cabo y sean analizadas y discutidas en esta memoria.

Este estudio constituirá una de las principales extensiones de este TFG, ya que se centrará en la implementación y evaluación del montaje experimental con gadolinio y brindará un resultado más preciso acerca de la reducción de la contribución del fondo en la región del pico del boro.

Capítulo 6 Conclusiones

El objetivo de este trabajo ha sido obtener la concentración mínima detectable de 10 B en medios acuosos. Para ello se ha diseñado el montaje experimental necesario y se ha establecido la metodología a desarrollar para trabajar con un detector CZT y una fuente de neutrones 241 Am – Be de la Facultad de Ciencias de la Universidad de Cantabria.

Con el montaje desarrollado, el resultado obtenido de la concentración mínima detectable ha sido de (386 ± 5) ppm. El trabajo ha permitido comprobar las dificultades para llevar a cabo investigaciones experimentales en el ámbito de la instrumentación nuclear. Además, se ha estimado el flujo térmico incidente sobre las muestras por medio de un método basado en la activación de láminas delgadas de indio en $\phi^{th} = (5000 \pm 3000) \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Asimismo, se ha observado el posible daño en el detector CZT y se ha encontrado un desplazamiento de los picos de energía de aproximadamente 1,7 keV tras un tiempo de 28 horas de exposición. Uno de los factores que limita la sensibilidad del boro es el fondo producido por la activación del cadmio del propio detector CdZnTe. Se ha diseñado una mejora del montaje experimental para rodear el detector con un blindaje fuertemente absorbente de neutrones, como es el gadolinio.

Aún más, se han obtenido conclusiones relevantes para el diseño de experimentos que buscan determinar concentraciones de boro u otros materiales con esta metodología. En primer lugar, las variaciones en la geometría de los elementos del montaje experimental provocan importantes cambios en los resultados, debido a la fuerte variación del flujo por la distancia entre la muestra y el detector. La presencia del elemento que se pretende medir, en nuestro caso el boro, en la electrónica de los circuitos integrados, en el cristal del detector o en los botes de las muestras puede constituir un fondo irreducible en la región de señal del fotopico de 478 keV debido al ¹⁰B. Se han percibido indicios de boro u otro material, que contribuyen a esta región de energía mediante el estudio de las intensidades relativas de los diferentes fotopicos. Por último, una limitación de este tipo de técnicas es el daño por radiación que se produce en el detector al degradarse las propiedades de los cristales.

En términos generales, se ha comprobado que el detector CZT es capaz de medir neutrones térmicos y epitérmicos por la reacción del 113 Cd del cristal semiconductor. También se ha establecido la metodología para medir el flujo incidente en la muestra de boro, mediante el análisis del espectro gamma resultante de la activación de láminas delgadas de indio con el detector NaI(Tl).

Además, se han obtenido conclusiones acerca de los materiales que han de emplearse para el blindaje del montaje experimental. El plomo se comporta como un atenuador eficaz de rayos X y γ procedentes del 241 Am, así como de la radiación gamma debido al proceso de activación de la parafina. Este material es un buen moderador de neutrones y cumple su función para la protección radiológica.

Este trabajo, que fija una metodología y montaje experimental concreto, abre la posibilidad de seguir investigando y mejorando las medidas en las áreas relativas a la actividad mínima detectable, el flujo de neutrones, el daño por radiación de los detectores y la disminución del fondo generado por el cadmio, utilizando un blindaje de gadolinio. En aras de mejorar los resultados, se podría utilizar un sistema de automatización para la colocación precisa de las muestras, una calibración exacta de los equipos utilizados para estimar el flujo térmico sobre las muestras en centros especializados y un estudio en profundidad, realizado por simulaciones, de los factores de la geometría y absorción de neutrones de los materiales. Aun así, el conocimiento adquirido en este trabajo es crucial para desempeñar e implementar las futuras mejoras y funcionalidades de la investigación.

Bibliografía

- M. Voytchev, M. P. Iñiguez, R. Méndez, A. Mañanes, L. R. Rodríguez, and R. Barquero. Neutron detection with a silicon PIN photodiode and 6LiF converter. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 512(3):546–552, 2003.
- [2] J. Dumazert, R. Coulon, Q. Lecomte, G. H. V. Bertrand, and M. Hamel. Gadolinium for neutron detection in current nuclear instrumentation research: A review. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 882:53–68, 2018.
- [3] M. A. Ali. A brief overview of neutron activation analyses methodology and applications. U.S. Department of Energy Office of Scientific and Technical Information, pages 71–84, 2000.
- [4] A. H. Soloway, R. F. Barth, R. A. Gahbauer, T. E. Blue, and J. H. Goodman. The rationale and requirements for the development of boron neutron capture therapy of brain tumors. J. Neurooncol., 33(1-2):9–18, 1997.
- [5] H. Moktan, C. L. Lee, and S. H. Cho. Prompt gamma ray detection and imaging for boron neutron capture therapy using CdTe detector and novel detector shield - monte carlo study. *Med. Phys.*, 50(3):1736–1745, 2023.
- [6] A. Jesús Doncel Unanua, J. Íñiguez Herrero, and R.M. Val Legaz. Relación del contenido de boro soluble con distintos parámetros edáficos y ambientales en suelos de navarra. Munibe Ciencias Naturales. Natur zientziak, ISSN-e 0214-7688, (48):21–38, 1996.
- U. C. Gupta. Boron nutrition of crops. In Advances in Agronomy, pages 273–307. Elsevier, 1980.
- [8] G. F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, Nashville, TN, Estados Unidos de América, 5 edition, 2021.
- [9] M. R. Winberg and R. S. Garcia. National low-level waste management program radionuclide report series. U.S. Department of Energy Office of Scientific and Technical Information, 14, 1995.
- [10] J. M. Costa. Diccionario De Química Física. Ediciones Díaz de Santos, 1 edition, 2005.

- [11] D. Rábago, A. Mañanes, and D. Lima. Caracterización de materiales para el blindaje frente a neutrones. *Revista Nuclear España*, 385(6):49–53, 2017.
- [12] L. Abdolahi Shiramin and S. Farhad Masoudi. Investigation the effects of neutron source number and arrangement in landmines detection by thermal neutron capture gamma ray analysis. World J. Nucl. Sci. Technol., 02(02):54–57, 2012.
- [13] K. H. Beckurts and K. Wirtz. Neutron Physics. Springer, Berlín, Alemania, 2013.
- [14] M. Chu, S. Terterian, and D. Ting. Role of zinc in CdZnTe radiation detectors. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 51(5):2405–2411, 2004.
- [15] A. Martín-Martín, M. P. Iñiguez, P. N. Luke, R. Barquero, A. Lorente, J. Morchón, E. Gallego, G. Quincoces, and J. M. Martí-Climent. Evaluation of CdZnTe as neutron detector around medical accelerators. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 133(4):193– 199, 2009.
- [16] A. Mheemeed, K. Schreckenbach, G. Barreau, H. R. Faust, H. G. Börner, R. Brissot, P. Hungerford, H. H. Schmidt, H. J. Scheerer, T. Von Egidy, K. Heyde, J. L. Wood, P. Van Isacker, M. Waroquier, G. Wenes, and M. L. Stelts. The level structure of 114cd from (n, γ) and (d, p) studies. *Nucl. Phys. A*, 412(1):113–140, 1984.
- [17] L. A. Currie. Limits for qualitative detection and quantitative determination. application to radiochemistry. *Anal. Chem.*, 40(3):586–593, 1968.
- [18] P. Bouguer. Essai d'optique sur la gradation de la lumière. j. Röntgen Soc., 18(71):93–93, 1922.
- [19] S. Seltzer. Tables of x-ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients, NIST standard reference database 126, 1995.
- [20] S. P. Platt, S. August, M. MacLeod, M. J. Anderson, D. Cheneler, and S. D. Monk. Thermal neutron absorption in printed circuit boards. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 68(4):463–469, 2021.
- [21] R. K. Smither. Capture-gamma-ray spectrum ofcd113(n, γ)Cd114and the associated energy levels incd114. *Phys. Rev.*, 124(1):183–192, 1961.
- [22] Cross Sections Evaluation Working Group. Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data Files ENDF/B-VI, ENDF/B-VII and ENDF/B-VIII, 2018.
- [23] International Atomic Energy Agency. Handbook on Nuclear Activation Crosssections. Stationery Office Books, Norwich, Inglaterra, 1974.
- [24] R. B. Firestone. Table of isotopes: 2 Volume set. John Wiley & Sons, 8 edition, 1998.

- [25] J. H. Neiler and P.R. Bell. Alpha-, beta- and gamma-ray spectroscopy. North-Holland, 2012.
- [26] P. J. Sellin. Recent advances in compound semiconductor radiation detectors. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 513(1-2):332–339, 2003.
- [27] T. E. Schlesinger, J. E. Toney, H. Yoon, E. Y. Lee, B. A. Brunett, L. Franks, and R. B. James. Cadmium zinc telluride and its use as a nuclear radiation detector material. *Mater. Sci. Eng. R Rep.*, 32(4-5):103–189, 2001.
- [28] L. Bao, G. Zha, L. Xu, B. Zhang, J. Dong, Y. Li, and W. Jie. Neutron irradiationinduced defects in Cd0.9Zn0.1Te:In crystals. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, 100:179–184, 2019.
- [29] Sigma-Aldrich. Ficha de datos de seguridad: Gadolinium(III) chloride, 2024.

Apéndice A Código Python

A lo largo del trabajo se han escrito diferentes archivos de Python 3.8. En la lista A.1 se muestra un ejemplo de un código empleado, que lee los espectros, los representa en una gráfica, realiza los ajustes a las funciones gaussianas y guarda los resultados relevantes en formato word y excel.

```
1 # -*- coding: utf-8 -*-
2 """
3 Este script procesa archivos de espectros en formato .spe, ajusta curvas gaussianas
4 a picos especificos, y guarda los resultados en un documento de Word y un archivo
      Excel.
5
6 Cambios necesarios para adaptar el script a otros datos:
      - Lista 'nombres_archivos': Archivos de espectros a procesar.
7
      - Variable 'ruta_archivo': Ruta al directorio donde se encuentran los archivos .
8
          spe.
9
10 Autor: Iker
11 Fecha de creacion: 18 de abril de 2024
12 """
13
14 import os
15 import numpy as np
16 import matplotlib.pyplot as plt
17 from scipy.optimize import curve_fit
18 from docx import Document
19 from openpyxl import Workbook
20
21 def leer_archivo_spe(ruta_archivo):
22
      Lee un archivo .spe y devuelve los datos del espectro.
23
24
25
      Args:
        ruta_archivo (str): Ruta del archivo .spe.
26
27
28
      Returns:
29
          list: Datos del espectro.
      .....
30
31
      try:
          with open(ruta_archivo, 'r') as archivo:
32
               lineas = archivo.readlines()
33
               datos = []
34
               leer = False
35
36
               for linea in lineas:
                   if "$DATA:" in linea:
37
                       leer = True
38
```

```
39
                       continue
                   if leer:
40
                       if linea.strip() == "":
41
42
                            break
                       datos.extend([int(x) for x in linea.split()])
43
44
               return datos
       except Exception as e:
45
          print(f"Error al leer el archivo {ruta_archivo}: {e}")
46
47
           return None
48
  def doble_gaussiana(x, a1, x01, sigma1, a2, x02, sigma2):
49
50
       Funcion de doble gaussiana.
51
52
53
       Args:
           x (array): Array de valores de la variable independiente.
54
           a1, x01, sigma1, a2, x02, sigma2: Parametros de las dos gaussianas.
55
56
57
      Returns:
          array: Valores de la funcion doble gaussiana.
58
59
      return a1 * np.exp(-(x - x01)**2 / (2 * sigma1**2)) + a2 * np.exp(-(x - x02)**2 /
60
           (2 * sigma2**2))
61
      guardar_figura_en_word(figura, nombre_imagen, doc):
62 def
63
64
       Guarda una figura en un documento Word.
65
66
       Args:
           figura (matplotlib.figure.Figure): Figura de matplotlib.
67
           nombre_imagen (str): Nombre del archivo de la imagen.
68
           doc (Document): Documento Word donde se guardara la imagen.
69
       ......
70
71
       figura.savefig(nombre_imagen)
      doc.add_picture(nombre_imagen)
72
73
      plt.close(figura)
74
75 def escribir_resultados_en_word(doc, nombre_pico, params, incertidumbres,
      chi_squared_ndof, figura, nombre_imagen):
76
      Escribe los resultados de ajuste en un documento Word.
77
78
79
      Args:
80
           doc (Document): Documento Word.
81
           nombre_pico (str): Nombre del pico ajustado.
82
           params (array): Parametros ajustados.
           incertidumbres (array): Incertidumbres de los parametros ajustados.
83
           chi_squared_ndof (float): Chi-cuadrado reducido del ajuste.
84
           figura (matplotlib.figure.Figure): Figura de matplotlib.
85
           nombre_imagen (str): Nombre del archivo de la imagen.
86
       .....
87
      doc.add_heading(f'Resultados de {nombre_pico}', level=2)
88
      doc.add_paragraph(f"Amplitud 1: {params[0]:.4f} +/- {incertidumbres[0]:.4f}")
89
       doc.add_paragraph(f"Media 1: {params[1]:.4f} +/- {incertidumbres[1]:.4f}")
90
      doc.add_paragraph(f"Desviacion estandar 1: {params[2]:.4f} +/- {incertidumbres
91
           [2]:.4f}")
92
      doc.add_paragraph(f"Amplitud 2: {params[3]:.4f} +/- {incertidumbres[3]:.4f}")
      doc.add_paragraph(f"Media 2: {params[4]:.4f} +/- {incertidumbres[4]:.4f}")
93
94
       doc.add_paragraph(f"Desviacion estandar 2: {params[5]:.4f} +/- {incertidumbres
           [5]:.4f}")
95
       doc.add_paragraph(f"Chi^2/ndof: {chi_squared_ndof:.4f}")
96
       guardar_figura_en_word(figura, nombre_imagen, doc)
97
      guardar_resultados_en_excel(nombres_archivos, resultados_media, ruta_excel):
98 def
99
```

```
Guarda los resultados de media en un archivo Excel.
100
       Args:
           nombres_archivos (list): Lista de nombres de archivos.
           resultados_media (list): Resultados de media.
104
105
           ruta_excel (str): Ruta del archivo Excel donde se guardaran los resultados.
       .....
106
       wb = Workbook()
108
       ws = wb.active
       ws.title = "Resultados de Media"
109
       # Escribir encabezados
111
       ws.append(["Archivo", "Pico", "Media", "Incertidumbre"])
112
113
114
       # Escribir resultados
       for resultado in resultados_media:
115
           ws.append(resultado)
116
117
       # Guardar archivo Excel
118
       wb.save(ruta_excel)
119
120
121 def ajustar_doble_gaussiana(energias, datos, energia_inicio, energia_fin, nom_pico):
122
       Ajusta una doble gaussiana a un rango especifico de datos.
123
124
125
       Args:
            energias (array): Array de energias correspondientes a los canales.
126
127
            datos (list): Datos del espectro.
            energia_inicio (float): Energia de inicio para el ajuste.
128
            energia_fin (float): Energia de fin para el ajuste.
129
           nom_pico (str): Nombre del pico a ajustar.
130
131
132
       Returns:
            tuple: Parametros ajustados, energias y datos de ajuste, matriz de covarianza,
133
                   chi-cuadrado reducido, medias ajustadas y sus incertidumbres.
       . . . .
135
       mask = (energias >= energia_inicio) & (energias <= energia_fin)</pre>
136
       energias_ajuste = energias[mask]
137
138
       datos_ajuste = np.array(datos)[mask]
139
       max_index = np.argmax(datos_ajuste)
140
141
       peak_x = energias_ajuste[max_index]
142
       peak_y = datos_ajuste[max_index]
143
       # Suposicion inicial para los parametros de ajuste
144
145
       initial_guess = [peak_y / 2, peak_x - 5, 1, peak_y / 2, peak_x + 5, 1]
146
       try:
           params, covariance = curve_fit(doble_gaussiana, energias_ajuste, datos_ajuste,
147
                 p0=initial_guess)
            varianzas = np.diag(covariance)
148
           incertidumbres = np.sqrt(varianzas)
149
150
           medias = params[1], params[4]
151
           incertidumbres_medias = incertidumbres[1], incertidumbres[4]
152
153
           print(f"\nParametros ajustados, {nom_pico}:")
154
155
            print("Amplitud 1:", params[0], "+/-", incertidumbres[0])
           print("Media 1:", params[1], "+/-", incertidumbres[1])
156
            print("Desviacion estandar 1:", params[2], "+/-", incertidumbres[2])
157
           print("Amplitud 2:", params[3], "+/-", incertidumbres[3])
158
           print("Media 2:", params[4], "+/-", incertidumbres[4])
159
           print("Desviacion estandar 2:", params[5], "+/-", incertidumbres[5])
160
161
162
            residuals = datos_ajuste - doble_gaussiana(np.array(energias_ajuste), *params)
            chi_squared = np.sum((residuals / np.sqrt(datos_ajuste))**2)
163
```

```
ndof = len(datos_ajuste) - len(params)
164
           chi_squared_ndof = chi_squared / ndof
165
166
           print(f"Chi^2/ndof: {chi_squared_ndof:.4f}")
167
168
           return params, energias_ajuste, datos_ajuste, covariance, chi_squared_ndof,
169
                medias. incertidumbres medias
170
171
       except Exception as e:
           print(f"Error al ajustar la doble gaussiana: {e}")
172
173
            return None, None, None, None, None, None, None
174
175 # Lista con nombres de archivos espectrales para procesar
176 nombres_archivos = [
        '0.25_150min.spe', '0.1A_150min.spe', '0.01A_150min.spe',
177
        '0.001A_150min.spe', 'H20_A_150min.spe'
178
179 ]
180
181 # Crear el documento Word para los resultados
182 doc = Document()
183
184 # Lista para guardar los resultados de media
185 resultados_media = []
186
187 for nombre_archivo in nombres_archivos:
       # Ajustar la ruta segun corresponda. Debe modificarse segun la estructura de
188
           archivos.
189
       ruta_archivo = f'./ruta/a/tu/carpeta/{nombre_archivo}'
190
       # Leer datos del archivo .spe
191
       espectro_datos = leer_archivo_spe(ruta_archivo)
192
       num_canales = len(espectro_datos)
193
194
195
       if espectro datos is not None:
            # Definir el rango de energias. Ajustar estos valores segun los datos
196
                especificos.
197
            energia_inicio = 2.06
            energia_fin = 3072.53
198
199
           paso_energia = (energia_fin - energia_inicio) / (num_canales - 1)
200
            energias = np.arange(energia_inicio, energia_fin + paso_energia, paso_energia)
201
202
           # Ajuste de picos especificos (los rangos deben ajustarse a los datos)
203
            energia_inicio_ajuste_1 = energias[611]
204
            energia_fin_ajuste_1 = energias[656]
205
           params_1, energias_ajuste_1, datos_ajuste_1, covariance_1, chi_squared_ndof_1,
                medias_1, incertidumbres_medias_1 = ajustar_doble_gaussiana(energias,
                espectro_datos, energia_inicio_ajuste_1, energia_fin_ajuste_1, "Pico 1")
206
207
            if params_1 is not None:
                figura_1, ax_1 = plt.subplots()
208
                ax_1.plot(energias_ajuste_1, datos_ajuste_1, label='Datos')
209
210
                ax_1.plot(energias_ajuste_1, doble_gaussiana(energias_ajuste_1, *params_1)
                    , label='Ajuste')
                ax_1.set_xlabel("Energia (keV)")
211
                ax_1.set_ylabel("Cuentas")
212
213
                ax_1.set_title("Ajuste Doble Gaussiana - Pico 1")
214
                ax_1.legend()
215
                escribir_resultados_en_word(doc, "Pico 1", params_1,
216
                    incertidumbres_medias_1, chi_squared_ndof_1, figura_1, f"{
                    nombre_archivo}_pico1.png")
                resultados_media.append([nombre_archivo, "Pico 1", medias_1[0],
217
                    incertidumbres_medias_1[0]])
                resultados_media.append([nombre_archivo, "Pico 1", medias_1[1],
218
                    incertidumbres_medias_1[1]])
```

219 # Ajuste para otros picos puede anadirse de manera similar 220 221 else: 222 print(f"No se pudieron obtener datos del archivo: {nombre_archivo}") 223 224 225 **# Guardar el documento Word** 226 ruta_documento_word = "resultados_ajustes.docx" 227 doc.save(ruta_documento_word) 228 229 **#** Guardar resultados de media en un archivo Excel 230 ruta_archivo_excel = "resultados_medias.xlsx" 231 guardar_resultados_en_excel(nombres_archivos, resultados_media, ruta_archivo_excel)

Listing A.1: Ejemplo de un código de Python.

Apéndice B Piezas de la impresión 3D

En la figura B.1 se muestra el resto de piezas diseñadas e impresas con la impresora 3D que se describe en el capítulo 5.



Figura B.1: Diseño del resto de piezas 3D del montaje experimental.